

## ПРИБОРЫ И МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЙ

# Генерация высших гармоник излучения мощных лазеров в плазме, образованной при воздействии предымпульса на поверхность твердотельных мишеней

Р.А. Ганеев

*Рассматриваются исследования по генерации высших гармоник в лазерной плазме. Анализируются условия генерации гармоник (вплоть до 101-го порядка,  $\lambda = 7,9$  нм) при прохождении лазерного излучения через слабоионизированную плазму, приготовленную на поверхности различных мишеней в результате воздействия на них лазерного предымпульса. Обсуждаются результаты исследований резонансного увеличения интенсивности отдельных гармоник в ряде плазменных образований, продемонстрировавших значительное возрастание эффективности преобразования в области платообразного распределения гармоник (в частности, 13-й гармоники в индиевой плазме с эффективностью  $10^{-4}$ ). Приводятся результаты исследований генерации гармоник в плазме, содержащей наночастицы. Обсуждаются различные методы увеличения интенсивности и порядка генерируемых гармоник.*

PACS numbers: 42.65.Ky, 42.79.Nv, 52.38. – r

DOI:10.3367/UFNr.0179.200901c.0065

## Содержание

1. Введение (65).
  2. Основные принципы генерации высших гармоник в изотропных средах (67).
  3. Резонансное усиление одиночных гармоник (69).  
3.1. Усиление 13-й гармоники в плазме индия. 3.2. Усиление одиночных гармоник в лазерной плазме Cr, GaAs, Sb, Sn, Mn и InSb. 3.3. Анализ результатов исследования генерации усиленных гармоник в плазме ряда мишеней.
  4. Генерация гармоник излучения с длиной волны 400 нм при прохождении через лазерную плазму (74).
  5. Особенности генерации высших гармоник в плазме В, Ag, Au, Mn и V (76).  
5.1. Бор. 5.2. Серебро. 5.3. Золото. 5.4. Марганец и ванадий.
  6. Генерация высших гармоник в лазерной плазме, создаваемой импульсами с различной длительностью (81).
  7. Анализ характеристик лазерной плазмы для оптимизации генерации высших гармоник (84).
  8. Преобразование частоты лазерного излучения в дальней ультрафиолетовой области с использованием плазмы, содержащей наночастицы (85).
  9. Заключение (88).
- Список литературы (89).

Р.А. Ганеев. Научно-производственное объединение "Академприбор", Академия наук Узбекистана, ул. Ф. Ходжаева 28, Академгородок, 100125 Ташкент, Узбекистан  
Тел. (998) 71-262-13-45  
E-mail: rashid\_ganeev@mail.ru

Статья поступила 24 апреля 2008 г.,  
после доработки 15 августа 2008 г.

## 1. Введение

Генерация высших гармоник (ГВГ) к настоящему времени может рассматриваться как наиболее простой и эффективный метод получения когерентного коротковолнового излучения в широком спектральном диапазоне [1–9]. Альтернативными путями в этом направлении является использование рентгеновских лазеров [10, 11], а также — лазеров на свободных электронах [12]. Однако пока рентгеновские лазеры не могут генерировать излучение в широком диапазоне дальней ультрафиолетовой (ДУФ) области спектра, в отличие от источников на основе генерации гармоник. Другим недостатком рентгеновских лазеров является их плохая пространственная когерентность, а также расходимость генерируемого излучения. Что касается лазеров на свободных электронах, генерирующих излучение в ДУФ-области спектра, то имеется лишь несколько сообщений о работе подобных устройств, которые представлены в ограниченном количестве. Кроме того, высокая стоимость этих лазеров в значительной степени ограничивает их применение.

Процесс ГВГ активно исследуется благодаря доступности новых мощных и компактных лазерных систем, обладающих высокими выходными характеристиками (большая энергия и высокая интенсивность импульса и его малая длительность, а также большая частота повторения импульсов). Для ГВГ используются два механизма: генерация гармоник в газах [1, 3–7] и генерация гармоник от поверхности [2, 8, 9]. Значительные успехи, достигнутые при этом, позволили продвинуть диапазон генерируемого когерентного излучения в спектральную область, где оно может проходить через водосодержащие компоненты (так называемый water-

window-диапазон, 2,3–4,6 нм [6, 7]). Последнее обстоятельство привлекательно с точки зрения практического применения когерентного коротковолнового излучения для исследования биологических объектов. Однако полученные до сих пор результаты по генерации подобного излучения с использованием вышеупомянутых методик демонстрируют незначительную эффективность преобразования в ДУФ-диапазон ( $10^{-5}$  и ниже), что существенно ограничивает их практическое применение. Видимо, поэтому основные усилия в последнее время были направлены на оптимизацию другого процесса, обнаруженного в этих исследованиях, — генерации импульсов в аттосекундном временном диапазоне (см. обзор [13]).

Поиск путей увеличения эффективности ГВГ в ДУФ-области спектра в течение длительного времени оставался (и остаётся) одной из актуальных задач нелинейной оптики. Однако эффективность преобразования в высшие гармоники в большинстве случаев оказывается недостаточной для того, чтобы их можно было использовать в качестве реальных источников когерентного коротковолнового излучения в биологии, плазменной диагностике, медицине, микроскопии, фотолитографии и т.д. Возможность увеличения интенсивности высших гармоник, генерируемых в газоструйных источниках, посредством использования атомных и ионных резонансов исследовалась в основном лишь теоретическими методами [14, 15]. Результаты ряда вычислений показали, что в условиях резонанса гармоники с переходами в спектрах атомов и ионов газов возможно значительное увеличение интенсивности этой гармоники. Данный подход может служить альтернативой (либо дополнением) использовавшемуся методу фазовой синхронизации волн гармоник и лазерного излучения [6, 7].

Значительно менее успешными оказались первые исследования ГВГ при прохождении лазерного излучения через плазму, создаваемую на поверхности твердотельных мишеней. Как отмечалось в недавно опубликованном обзоре по бифуркационным свойствам гармоник в плазме, "явление генерации гармоник (в плазме) требует к себе большего внимания и более глубоких фундаментальных исследований" [16]. Результаты с использованием *сильновозбуждённой плазмы, содержащей многократно заряженные ионы*, продемонстрировали ряд ограничивающих факторов, не позволивших получать достаточно высокие гармоники [17–22]. При этом распределение гармоник не соответствовало так называемой трёхступенчатой модели ГВГ [23], согласно которой должно наблюдаться платообразное (т.е. примерно равное по интенсивности) распределение высших гармоник. Эти исследования, проведённые в середине 1990-х годов, ограничились демонстрацией довольно низких гармоник (с 11-й по 27-ю) (см. раздел 9, рис. 20). Отмеченные выше недостатки, а также малая эффективность преобразования привели к падению интереса к данному методу ГВГ, особенно на фоне достижений с использованием газоструйных источников.

Тем не менее есть основания надеяться на более эффективное применение лазерной плазмы с целью дальнейшего повышения интенсивности гармоник и получения более коротковолнового когерентного излучения. Принципиальных ограничений здесь нет, необходимо лишь найти оптимальные условия для создания плазменного факела, который мог бы применяться в качестве эффективной нелинейной среды для ГВГ. Лазер-

ная плазма может эффективно использоваться для этого процесса при реализации условий, при которых влияние ограничивающих факторов (самодефокусировка и фазовая расстройка между волнами гармоник и преобразуемого излучения) будет минимизировано [17, 20, 22]. При этом авторы работы [17] отмечали, что вне зависимости от физических и химических свойств материала мишени создаваемая на ней плазма должна являться эффективной средой для ГВГ. Забегая вперед, отметим, что проведённые в последнее время исследования ГВГ в плазме показали решающее влияние физических параметров мишени на генерационные особенности процесса преобразования частоты лазерного излучения.

Среди особенностей ГВГ в лазерной плазме следует выделить, в первую очередь, широкий диапазон характеристик нелинейной среды для варьирования условий создания лазерного факела на поверхности твёрдых тел. Это относится к таким параметрам плазмы, как размер её области, концентрация ионов, электронов и нейтральных частиц, а также степень их возбуждения. Использование любых элементов периодической таблицы, которые могут быть представлены в твердотельной форме, в значительной степени расширяет круг используемых материалов, в то время как в газоструйных схемах ГВГ в основном используются лишь четыре лёгких благородных газа. Это приводит в ряде случаев к возможности реализации квазирезонансных условий для резкого увеличения эффективности генерации одиночной гармоники вследствие влияния ионных переходов на нелинейно-оптический отклик в данном спектральном диапазоне. Этот эффект вряд ли может быть реализован в газоструйных схемах ГВГ ввиду малой вероятности совпадения частот подобных энергетических переходов атомов газов с частотами отдельных гармоник.

В значительной степени преимущества плазменной ГВГ могли бы быть реализованы в случае использования *слабовозбуждённой и слабоионизированной плазмы*, поскольку тогда ограничивающие процессы, определяющие динамику преобразования частоты лазерного излучения, играли бы меньшую роль. На подобную особенность было обращено внимание на ранних стадиях исследования генерации третьей гармоники в слабоионизированной плазме (см. обзор [24]). Анализ низших (третьей [25, 26] и пятой [27]) гармоник, генерируемых в подобной лазерной плазме, образованной с помощью предимпульса на поверхности твердотельной мишени, позволил выработать ряд рекомендаций по дальнейшему продвижению в область коротковолнового диапазона. Важным обстоятельством здесь является то, что использование импульсов с фемтосекундной длительностью позволило получать низшие гармоники со сравнительно высокой эффективностью (порядка  $10^{-3}$  для случая третьей гармоники в плазме, образованной при оптическом пробое воздуха [28, 29]).

Данное предположение нашло подтверждение в ряде недавних работ по генерации высших гармоник в плазменной среде [30–34]. Значительное увеличение максимального порядка генерируемых гармоник, появление плато в энергетическом распределении высших гармоник, высокие эффективности, полученные для ряда плазменных образований, реализация резонансного усиления отдельных гармоник, эффективное усиление гармоник в плазменных факелах, содержащих кластеры различных материалов, и другие особенности, продемонстрированные в этих и других [35–38] работах, показали

преимущества использования специально подготовленной плазмы для ГВГ.

К настоящему времени в плазменных средах получены высшие гармоники шестидесятых и семидесятых порядков [30, 32, 39, 40]. Наивысшие гармоники (101-я гармоника,  $\lambda = 7,9$  нм) получены в плазме марганца [41]. Эффективность преобразования в области плато достигла значения  $\sim 10^{-5}$  [42]. Наряду с этим эффективность преобразования в отдельную (резонансно усиленную) высшую гармонику приблизилась к  $10^{-4}$  [31, 32]. Большинство из этих параметров находится на одном уровне с результатами, полученными в газовых средах. Однако максимальные порядки гармоник, получаемых с помощью этих двух методов, остаются существенно различными. Сейчас появились сообщения о генерации в газах гармоник с порядком, превышающим 2000-й [43]. Существенное различие в порядке гармоник, генерируемых в газах и плазме, ставит задачу поиска новых возможностей для получения более высокоэнергетичных когерентных фотонов в процессе ГВГ в плазменных факелах. В разделе 5 на примере плазмы, создаваемой на поверхности марганца и ванадия, показано, что такую возможность дают двукратно заряженные ионы, которые повышают предельно достижимую энергию генерируемых когерентных коротковолновых фотонов.

Другая проблема связана с поиском новых плазменных сред, в которых можно было бы реализовать усиление одиночной гармоники. Получение высокоинтенсивной одиночной гармоники (а не группы гармоник с одинаковой интенсивностью в области плато) открыло бы путь к практическому применению подобных источников коротковолнового когерентного излучения. Поскольку резонансно усиленные гармоники уже наблюдались в ряде плазменных сред, имеются серьезные основания рассчитывать на обнаружение аналогичных условий в других плазменных образованиях. При этом подстройка частоты генерируемой гармоники к переходам с большой силой осциллятора может быть осуществлена как посредством перестройки частоты генерации лазерной системы [31, 37, 38], так и изменением chirpa лазерного излучения [32, 34, 36].

Теоретические основы ГВГ в изотропной среде детально представлены в ранних работах, относящихся к начальным этапам исследования этого процесса [23, 44, 45], а также в недавних публикациях [46–49]. Мы не будем касаться вопросов ГВГ в газовых струях в условиях проявления плазменных эффектов, обусловленных ионизацией фемтосекундными импульсами, поскольку эта тема нашла отражение в недавних обширных публикациях (см., например, [3, 4, 50, 51]). Не будут затронуты механизмы генерации чётных и нечётных гармоник при отражении лазерного излучения от поверхностей, поскольку этот вопрос детально рассмотрен в ряде обзоров и статей [2, 8, 52, 53], и, кроме того, он выходит за границы темы настоящей статьи. Поскольку целью данной статьи является ознакомление с новыми подходами при генерации гармоник в ДУФ-диапазоне с использованием изотропной среды (иной, чем в ранее применявшихся газоструйных источниках и специальных кюветках, заполненных газом), мы в основном будем обсуждать экспериментальные результаты, полученные в этой области. Отметим, что ряд обсуждаемых результатов рассматривался в опубликованном ранее кратком обзоре ГВГ в плазме [54]. В настоящей статье мы даем более развернутую картину процессов, наблюдавшихся

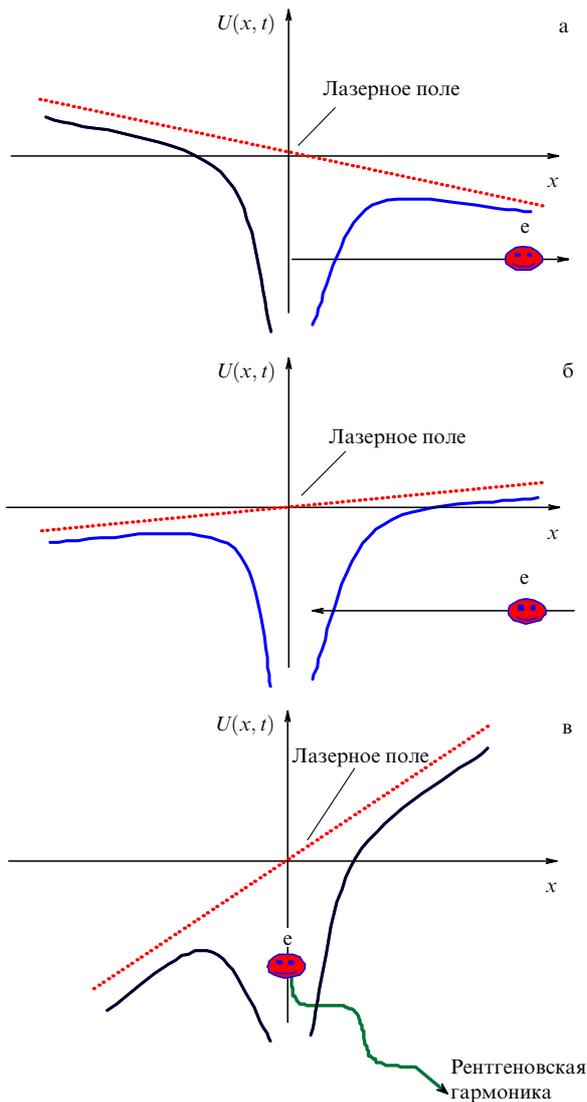
при ГВГ в плазменных факелах, а также включаем в рассмотрение новые методы, появившиеся в последнее время, в частности использование наночастиц в качестве компонента лазерной плазмы, применение численного анализа резонансного усиления гармоник, комплексных мишеней для создания плазмы и т.д.

Будут представлены результаты исследований по эффективной генерации когерентного ДУФ-излучения при прохождении лазерных фемтосекундных импульсов через слабозабужденную плазму, создаваемую на поверхности различных твердотельных мишеней. Структура статьи следующая. В разделе 2 изложены основные представления о генерации высших гармоник, а также экспериментальные схемы, используемые для ГВГ в плазме. Работы по резонансному усилению одиночных гармоник, наблюдавшемуся в различных плазменных образованиях, представлены в разделе 3. В разделе 4 обсуждается генерация гармоник от удвоенной частоты излучения титан-сапфирового лазера. Особенности ГВГ в различных слабоионизированных плазменных структурах рассматриваются в разделе 5. Раздел 6 посвящен анализу применения различных лазерных импульсов (с длительностями, варьируемыми в пределах пяти порядков) для создания оптимальной лазерной плазмы для ГВГ. Характеристики плазмы, с точки зрения оптимизации процесса преобразования частоты лазерного излучения, анализируются в разделе 7. Применение для увеличения эффективности ГВГ плазмы, содержащей наночастицы, обсуждается в разделе 8. В разделе 9 подводятся итоги проведенных исследований по ГВГ в лазерной плазме.

## 2. Основные принципы генерации высших гармоник в изотропных средах

Генерация высших гармоник лазерного излучения может быть получена следующими тремя методами: 1) при взаимодействии лазерных импульсов (интенсивность излучения  $I \sim 10^{14} - 10^{16}$  Вт см<sup>-2</sup>) с газовыми струями либо со специально подготовленным газом, находящимся в кюветках и волноводах; 2) при взаимодействии лазерных импульсов, имеющих большую интенсивность ( $I > 10^{17}$  Вт см<sup>-2</sup>) и высокий контраст ( $10^6$  и выше), с поверхностями твердых тел; 3) при прохождении лазерного излучения ( $I \sim 10^{14} - 10^{15}$  Вт см<sup>-2</sup>) через специально подготовленные (с использованием лазерных предимпульсов) плазменные среды. Мы не будем здесь рассматривать второй метод. Детальный анализ исследований ГВГ от поверхностей можно найти в монографии Гиббона [55], а также в обзоре [56]. Мы также лишь кратко коснёмся проблем, возникающих при ГВГ в газовых струях. Анализ этих процессов приводится в монографии [57]. Детальное исследование генерации гармоник в газах представлено также в обзорах [58, 59]. Основное внимание мы будем уделять анализу ГВГ при прохождении излучения с умеренной интенсивностью через лазерную плазму, т.е. плазму, создаваемую на поверхности различных твердотельных мишеней с помощью дополнительных субнаносекундных лазерных импульсов, синхронизированных с основным (преобразуемым) фемтосекундным лазерным импульсом.

Когда интенсивный лазерный импульс проходит через газовую либо плазменную среду, атомы и ионы излучают нечётные гармоники. При длине волны лазерного излучения  $\lambda$  на выходе из нелинейной среды будет



**Рис. 1.** Трёхступенчатый механизм генерации высших гармоник: (а) туннельная ионизация, (б) ускорение электрона в электромагнитном поле лазерной волны, (в) рекомбинация с атомом или ионом и излучение гармоник.

наблюдаться суперпозиция компонент  $\lambda$ ,  $\lambda/3$ ,  $\lambda/5$ ,  $\lambda/7$  и т.д. Гармоники лазерного излучения появляются в результате трёхступенчатого процесса [23, 44, 45], состоящего из ионизации атома (либо иона), ускорения электрона в электромагнитном поле и последующей рекомбинации (с атомом или ионом) и излучения гармоник (рис. 1). Этот процесс периодически повторяется каждую половину цикла колебания электромагнитной волны. Наивысшие гармоники обуславливаются ускорением электрона в момент ионизации при максимальной интенсивности лазерного импульса. Генерация высших гармоник, таким образом, представляет собой результат взаимодействия мощного светового поля с атомами [60–62], атомными кластерами [63, 64], молекулами [65, 66] и ионами [17, 19, 20, 24, 67–75].

Характерной особенностью трёхступенчатого процесса ГВГ является быстрое уменьшение интенсивности первых (низших) гармоник с последующим выходом на длинное плато, когда интенсивности высших гармоник незначительно отличаются друг от друга, и резким спадом интенсивности наибольших порядков генерируе-

мых гармоник (так называемых harmonic cutoff,  $H_c$ ). Положение  $H_c$  определяется ионизационным потенциалом  $I_i$  частиц, участвующих в процессе генерации гармоник (атомов в случае ГВГ в газах и ионов в случае ГВГ в плазме), и пондеромоторным потенциалом, определяющим энергию ускоренного электрона и зависящим от интенсивности фемтосекундного излучения и длины его волны ( $U_p \approx 9,3 \times 10^{-14} I_{fp} [\text{Вт см}^{-2}] \lambda^2 [\text{мкм}^2]$ ). Максимальная энергия фотонов генерируемых гармоник определяется соотношением  $E_c \approx I_i + 3,17 U_p$ .

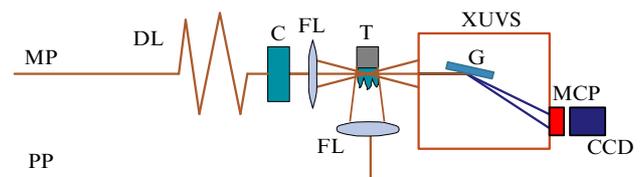
Основные свойства ГВГ могут быть охарактеризованы с помощью полуклассической модели [23, 44, 45], хотя более аккуратное описание этого процесса требует полного квантово-механического рассмотрения. В полуклассической модели электрон после отрыва от атома рассматривается в качестве свободной частицы, а влияние всех связанных состояний, помимо основного уровня, принимается пренебрежимо малым. Это выполняется при режиме туннельной ионизации, характеризующемся соотношением для параметра Келдыша  $\gamma < 1$ , где

$$\gamma = \omega_L (2I_i)^{0,5} E^{-1}, \quad (1)$$

$\omega_L$  — частота лазерного излучения,  $E$  — величина электрического вектора электромагнитной волны. Для выполнения этих условий в наибольшей степени подходят мощные лазерные импульсы с ультракороткой длительностью.

Наряду с микроскопическим рассмотрением процессов, протекающих при взаимодействии мощных ультракоротких импульсов с атомами и ионами, следует учитывать и макроскопические процессы, такие как эффекты прохождения через среду и групповые эффекты. К этим эффектам относят в первую очередь дефазировку, поглощение и дефокусировку. Анализ этих процессов приводится в [46].

Ниже мы остановимся на экспериментальных схемах, используемых для ГВГ в плазменных средах. На рисунке 2 приведена одна из подобных экспериментальных схем [30]. Фемтосекундный импульс лазерного излучения с длиной волны  $\lambda$  фокусируется в область плазменного факела, созданного на поверхности твердотельной мишени с помощью лазерного предимпульса длительностью в несколько сотен пикосекунд. Гармоники на длинах волн  $\lambda/(2n-1)$  генерируются в лазерной плазме в направлении распространения фемтосекундного импульса и пространственно разделяются дифракционной решёткой. Измерение интенсивности гармоник производится детектором фотонов высоких энергий.



**Рис. 2.** Пример экспериментальной схемы для генерации высших гармоник в лазерном факеле. MP — основной импульс, PP — предимпульс, DL — линия задержки, C — компрессор, FL — фокусирующие линзы, T — мишень, XUVS — ДУФ-спектрометр, G — дифракционная решётка, MCP — микроканальная пластина, CCD — прибор с зарядовой связью (ПЗС).

Большинство из описываемых ниже исследований ГВГ в лазерной плазме было проведено тремя научными группами (Институт физики твердого тела (Япония), Центр передовых технологий (Индия) и Национальный институт научных исследований (Канада)) с использованием коммерческих титан-сапфировых лазеров, работающих в режиме усиления чирпированных импульсов [31, 32, 67]. Часть несжатого субнаносекундного излучения (длительность импульса  $t = 210\text{--}300$  пс, энергия импульса  $E = 5\text{--}30$  мДж, длина волны  $\lambda = 790\text{--}800$  нм, частота следования импульсов 10 Гц) использовалась в качестве предимпульса, создающего лазерную плазму на поверхности мишени (см. рис. 2). Размер пятна на поверхности мишени сфокусированного излучения предимпульса составлял несколько сотен микрометров. Интенсивность предимпульса на поверхности мишени варьировалась в диапазоне  $I_{pp} \sim 5 \times 10^9\text{--}9 \times 10^{10}$  Вт см<sup>-2</sup>. Создаваемая в этих условиях плазма состояла в основном из нейтральных частиц и однократно заряженных ионов. После задержки (варьируемой в пределах 10–150 нс) основной лазерный импульс с фемтосекундной длительностью ( $t = 35\text{--}150$  фс,  $E = 10\text{--}100$  мДж,  $\lambda = 790\text{--}800$  нм, спектральная ширина импульса 12–38 нм) фокусировался в плазму.

Максимальная интенсивность фемтосекундного излучения в фокальной области достигала  $I_f = 4 \times 10^{17}$  Вт см<sup>-2</sup>. Эта интенсивность значительно превосходила интенсивность туннельной ионизации однократно заряженных ионов, что приводило к нарушению оптимальных условий для ГВГ вследствие образования большого количества свободных электронов. Поэтому положение фокусирования подбиралось таким образом, чтобы при фокусировании за или перед плазменным факелом интенсивность в области плазмы находилась в интервале от  $2 \times 10^{14}$  Вт см<sup>-2</sup> до  $5 \times 10^{15}$  Вт см<sup>-2</sup>. Высшие гармоники анализировались с помощью рентгеновского спектрометра с решёткой скользящего падения (Hitachi, 1200 стрихов на 1 мм<sup>-1</sup>). Дальний ультрафиолетовый спектр регистрировался микроканальной пластиной и прибором с зарядовой связью (ПЗС-камерой). Спектральные характеристики лазерной плазмы в видимом и ближнем ультрафиолетовом диапазонах анализировались спектрометром USB2000. Калибровка абсолютных значений эффективности преобразования частоты лазерного излучения в гармоники осуществлялась с использованием методики сравнения эффективности генерации третьей гармоники в кристаллах и плазме и последующего сравнения интенсивностей гармоник более высоких порядков. Детальное описание калибровки на примере генерации гармоник в плазме серебра приведено в работе [42].

### 3. Резонансное усиление одиночных гармоник

Как уже отмечалось во введении, возможности применения излучения гармоник ограничены в связи с малой эффективностью преобразования в процессе ГВГ. При использовании газовых струй в качестве нелинейной среды для ГВГ разработан ряд методик, позволяющих увеличить эффективность преобразования. Одной из таких методик является создание условий фазового согласования между волнами гармоник и основной волной с помощью заполненных газом волноводов с переменным диаметром [7]. Альтернативой этой мето-

дике может служить создание резонансных условий для возрастания нелинейно-оптического отклика среды. Роль атомных резонансов в увеличении эффективности преобразования частоты лазерного излучения интенсивно обсуждалась на ранних стадиях исследования генерации гармоник низших порядков в рамках теории возмущения (см. монографию [76] и ссылки в ней). В случае ГВГ возрастание эффективности генерируемых гармоник, обусловленное резонансными процессами, стало предметом обсуждения сравнительно недавно и подобный подход показал перспективность использования ионных и в ряде случаев атомных резонансов [14, 16, 77–80]. Цитируемые работы включают в себя как теоретическое рассмотрение предпосылок данного процесса, так и описание первых попыток создания резонансных условий в экспериментах. И если теоретические оценки указывали на возможность эффективного усиления как одиночных гармоник, так и целых групп гармоник, то экспериментальные работы показали трудности, возникающие при ГВГ в газах.

Таким образом, применение плазменных сред в значительной степени могло бы продвинуть решение задачи резонансного усиления гармоник. Рассмотрение большой группы потенциальных мишеней позволило идентифицировать некоторые из них как пригодные для демонстрации этого процесса [34]. Здесь в полной мере проявились достоинства "плазменной ГВГ" по сравнению с "газовой ГВГ", выражающиеся в значительно большем количестве возможных сред в первом случае по сравнению со вторым.

Первоначально для достижения резонансных условий при ГВГ в плазме применялась подстройка частоты генератора лазерной системы к частоте резонансного перехода, который мог бы быть ответственным за возрастание нелинейно-оптического отклика среды на длине волны той или иной одиночной гармоники [31, 37, 38]. Отметим, что подобный метод имеет ряд недостатков. В частности, перестройка спектра генератора сложного лазерного комплекса не может привести непосредственно к соответствующему изменению выходного спектра импульсов лазерной системы (вследствие сужения спектра усиления в результате сдвига длины волны от "оптимального" для этой лазерной системы значения). Необходимо также учитывать насыщение усиления на центральной длине волны, которое при сдвиге спектра генератора приведёт к необходимости переустройства системы. Кроме того, потребуется переустройство стретчера и компрессора, и, таким образом, перестройка спектра всей лазерной системы с сохранением остальных выходных параметров (энергии, длительности и ширины спектра лазерного импульса) оказывается нетривиальной проблемой. Намного более простой метод спектральной перестройки частоты гармоник (без перестройки спектра лазерной системы) может быть реализован посредством чирпирования лазерного излучения [81]. Длина волны гармоники сдвигается в длинноволновую область спектра в случае положительного чирпа преобразуемого импульса, при котором передний фронт импульса содержит в основном длинноволновые компоненты спектра лазерного излучения. То же самое можно сказать и о гармониках, сдвинутых в коротковолновую область спектра в случае отрицательно чирпированных импульсов. Детальное описание подобной методики изложено в [34, 81].

### 3.1. Усиление 13-й гармоники в плазме индия

Типичный спектр гармоник, генерируемых в плазме индия с использованием импульсов на длине волны 796 нм длительностью 150 фс, приведен на рис. 3. В этих экспериментах получены гармоники с порядком вплоть до 39-го ( $\lambda = 20,4$  нм). Распределение гармоник высших порядков имело платообразную форму, т.е. интенсивности соседних гармоник отличались друг от друга на незначительную величину, вплоть до момента достижения максимально генерируемого порядка, когда интенсивность гармоник с наибольшей энергией фотона резко уменьшалась (см. рис. 3, кривая 1). Для сравнения приведено также распределение гармоник, полученных в плазме серебра (см. рис. 3, кривая 2). Эффективность преобразования в гармоники в области плато в случае плазмы индия составила  $1 \times 10^{-6}$ . На этом спектре можно увидеть значительное превышение 13-й гармоникой с соседними порядками. Эффективность преобразования в 13-ю гармонику составила  $8 \times 10^{-5}$ , что соответствовало 0,8 мкДж при энергии фемтосекундных импульсов 10 мДж [31]. Ещё большая эффективность преобразования в эту гармонику ( $10^{-4}$ ) была зарегистрирована при использовании более коротких импульсов с большей энергией (48 фс, 25 мДж). В этом случае интенсивность 13-й гармоники в 200 раз превосходила интенсивности соседних гармоник [32, 75].

Наблюдение столь значительного превышения интенсивности одиночной гармоники интенсивностей всех остальных ставит вопрос о том, является ли излучение, которое было ассоциировано с 13-й гармоникой ( $\lambda = 61,2$  нм), усиленной спонтанной эмиссией, результатом перевозбуждения плазмы, связанным с прохождением фемтосекундного импульса, либо результатом процесса, обусловленного увеличением нелинейно-оптического отклика плазменного факела на длине волны этой одиночной гармоники вследствие квазирезонанса с ионными переходами, обладающими большой силой осциллятора.

Во-первых, для подтверждения того, что излучение на длине волны 61 нм обусловлено нелинейно-оптическим процессом, а не результатом переизлучения плазменной линии, было исследовано влияние поляризации фемтосекундного излучения на интенсивность этой линии. Перед

фокусирующей линзой устанавливалась четвертьволновая пластина, изменяющая поляризацию излучения, взаимодействующего с плазмой. Незначительные отклонения от линейной поляризации приводили к существенному снижению интенсивности излучения с длиной волны 61,2 нм, а также интенсивности остальных генерируемых гармоник, что является типичным для процесса ГВГ в изотропной среде. Применение циркулярно поляризованного излучения приводило к полному исчезновению гармоник, в то время как свечение плазмы в наблюдавшемся спектре оставалось неизменным.

Во-вторых, проводилась перестройка длины волны фемтосекундного излучения с целью определения того, является ли совпадение линии плазмы индия с частотой гармоники лазерного излучения причиной столь значительного превышения интенсивности одной гармоники интенсивностей других. Центральная длина волны лазерного излучения титан-сапфирового лазера перестраивалась в диапазоне длин волн от 770 до 796 нм. Интенсивность 13-й гармоники значительно снижалась при отстройке длины волны от 796 нм в сторону более коротких длин волн. Наряду с этим наблюдалось значительное увеличение интенсивности 15-й гармоники на длине волны 782 нм, в то время как интенсивности других гармоник не претерпевали существенных изменений. Эти эксперименты продемонстрировали влияние ионных переходов индия на интенсивность отдельных гармоник.

В результате проведённых исследований возникает вопрос: почему было получено столь значительное превышение интенсивности одиночной гармоники над остальными в случае индиевой плазмы? Ранее проведённые исследования плазмы индия показали, что большая часть эмиссии в диапазоне длин волн 40–65 нм обусловлена радиационными переходами в основное состояние ( $4d^{10}5s^2^1S_0$ ) и низколежащее возбуждённое состояние ( $4d^{10}5s5p$ ) [82]. Эти исследования также выявили сильную линию на длине волны 62,1 нм (19,92 эВ), соответствующую переходу  $4d^{10}5s^2^1S_0 \rightarrow 4d^95s^25p(^2D)^1P_1$ . Сила осциллятора этого перехода gf составила 1,11, что более чем в 12 раз превышало аналогичные параметры других переходов в этом диапазоне. Этот переход может быть подстроен под резонанс с 13-й гармоникой ( $\lambda = 61,2$  нм,  $E_{ph} = 20,26$  эВ) за счёт эффекта Штарка.

### 3.2. Усиление одиночных гармоник в лазерной плазме Cr, GaAs, Sb, Sn, Mn и InSb

Выбору указанных мишеней предшествовал анализ ГВГ в различных средах, продемонстрировавший возможность получения резонансно-усиленных гармоник в некоторых из них. Распределение гармоник в случае большинства плазменных источников, созданных на разных мишенях, имело платообразный вид с различной степенью уменьшения интенсивности каждой последующей гармоники в ДУФ-области. Указанные выше мишени исследовались более подробно, поскольку в этих случаях наблюдалось усиление той или иной гармоники излучения титан-сапфирового лазера (48 фс, 795 нм) в различных областях плато. Спектры преобразованного излучения, полученные от этих мишеней, сравнивались со спектром гармоник, полученным от индиевой плазмы.

В плазме InSb, GaAs и Cr наблюдались высшие гармоники с порядком вплоть до 29-го (27,3 нм), 43-го (18,4 нм) и 47-го (16,9 нм). В этих исследованиях

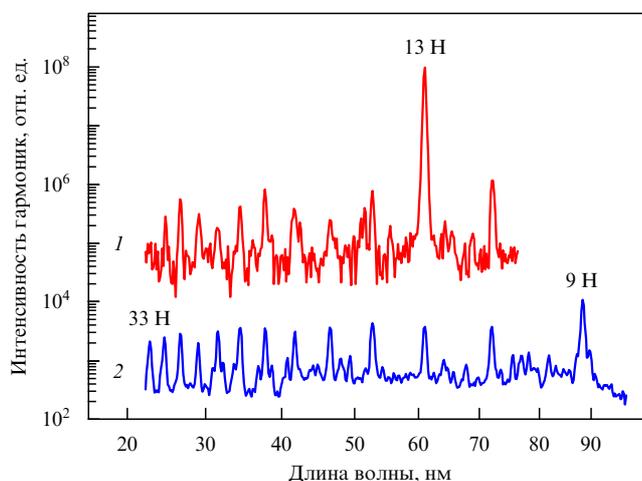


Рис. 3. Спектры высших гармоник, генерируемых в плазме индия (1) и серебра (2).

использовались нечирпированные 48-фемтосекундные импульсы. В данных условиях в этих плазменных средах наблюдалось то или иное усиление (а в ряде случаев ослабление) одиночных гармоник. В последующих экспериментах было проведено варьирование чирпа лазерного импульса посредством изменения расстояния между решётками компрессора лазерной системы. Изменение чирпа лазерного импульса приводило к существенному перераспределению интенсивностей усиленных гармоник в спектре, в то время как неусиленные гармоники оставались почти неизменными. Целью этих исследований являлось показать возможность реализации усиления одиночной гармоники не только в начале плато (как в случае плазмы индия), но и в середине и даже в конце плато.

При генерации гармоник в плазме Cr наблюдались значительные вариации интенсивности 27-й гармоники при различных чирпах лазерного излучения [34, 83]. Отношение интенсивностей 27-й гармоники и соседних гармоник в спектре плазмы хрома при этом изменялось от 0 до 1. Наряду с этим 29-я гармоника ( $\lambda = 27,3$  нм) значительно превосходила соседние гармоники в центральной области плато (рис. 4). Усиление этой гармоники наблюдалось в случае нечирпированных лазерных импульсов. Вариации чирпа излучения приводили к изменению интенсивности этой гармоники, так же как и в случае 27-й гармоники. Максимальное отношение интенсивностей 29-й и 31-й гармоник составило 23. Следует отметить, что в случае отрицательно чирпированных импульсов спектральная ширина гармоник сужалась. Из рисунка 4 видно, что при больших значениях отрицательного чирпа спектр гармоник значительно отстраивался от условий, при которых наблюдались существенные вариации интенсивностей 27-й и 29-й гармоник.

Аналогичные вариации распределения интенсивностей гармоник наблюдались в плазме ряда полупроводников (GaAs, InSb). В случае нечирпированных импульсов, а также отрицательно чирпированного излучения гармоники, генерируемые в плазме арсенида галлия, имели платообразное распределение интенсивности с небольшим уменьшением интенсивности гармоник каждого последующего порядка. Однако при положительно чирпированных импульсах картина существенно менялась: наблюдалась интенсивная 27-я гармоника ( $\lambda = 29,4$  нм). Интенсивность этой гармоники, находящейся в конце платообразного распределения, в шесть раз превосходила интенсивности соседних гармоник [36]. Отметим, что эффективность преобразования в гармоники в этом случае в значительной степени зависела от положения фокальной плоскости линзы относительно

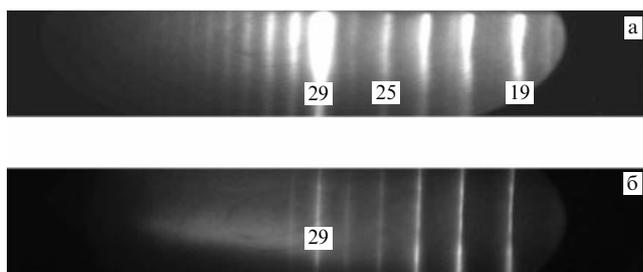


Рис. 4. Распределение гармоник, полученных в плазме хрома в случае (а) нечирпированных 48-фемтосекундных импульсов и (б) отрицательно чирпированных 160-фемтосекундных импульсов.



Рис. 5. Распределение гармоник нечирпированных 48-фемтосекундных импульсов в InSb-плазме.

области лазерного факела. Наиболее эффективно излучение преобразовывалось в гармоники в случае фокусирования перед либо за лазерным факелом, в зависимости от конкретных условий эксперимента [84].

В плазме InSb наблюдалось значительное усиление 21-й гармоники ( $\lambda = 37,8$  нм) при использовании нечирпированных лазерных импульсов (рис. 5). При этом было получено 20-кратное превышение интенсивности этой гармоники интенсивностей гармоник с соседними порядками [32]. В этой плазме, как и в предыдущих случаях, интенсивная гармоника испытывала значительные изменения при вариациях чирпа. В частности, коэффициент усиления 21-й гармоники при использовании положительно чирпированных импульсов длительностью 140 фс равнялся 10. Усиление этой гармоники существенно уменьшалось в случае отрицательно чирпированных импульсов.

Для установления механизма усиления излучения вблизи длин волн 27,3 нм (в случае 29-й гармоники, генерируемой в плазме Cr), 29,4 нм (в случае 27-й гармоники в плазме GaAs) и 37,8 нм (в случае 21-й гармоники в плазме InSb) было проанализировано действие лазерного излучения с различной поляризацией (как и в случае с индиевой плазмой). Показано, что циркулярно поляризованное излучение приводит к исчезновению излучения на вышеотмеченных длинах волн, чего следовало ожидать ввиду нелинейно-оптической природы наблюдавшихся спектров.

В ДУФ-области в плазменном спектре сурьмы доминируют два пика Sb I: один — широкий (1 эВ) в области 31,24 эВ, и другой — узкий (0,2 эВ) в области 32,22 эВ [85]. Спектр излучения слабозабуждённой плазмы также содержит значительное количество линий Sb II, приводящих к возрастанию интенсивности излучения в диапазоне от 32,4 эВ до 32,7 эВ. Однако наибольшим значением  $gf$  среди переходов ионов и нейтральных атомов Sb обладает переход  $4d^{10}5s^25p^3\ ^2D_{5/2} - 4d^95s^25p^4\ (^3P)^2F_{7/2}$  ( $E \approx 31,5$  эВ,  $gf = 1,54$ ). Данное значение  $gf$  в несколько раз превосходит другие значения этого параметра в указанном спектральном диапазоне. В то же время среди рассчитанных значений  $gf$  для переходов  $4d^{10}5s^25p^2 - 4d^95s^25p^3$  иона Sb II значение этого параметра для перехода  $^3P_2 - (^2D)^3D_3$  ( $E \approx 32,8$  эВ) также достаточно велико ( $gf = 1,36$ ), что в определённой степени может повлиять на нелинейно-оптический отклик плазмы вследствие близости длины волны гармоники к длине волны этого перехода. В частности, 21-я гармоника (37,8 нм,  $E_{ph} \approx 32,9$  эВ) использовавшегося лазера может быть подстроена к этим переходам как посредством изменения чирпа лазерного излучения, так и за счёт штарковского сдвига в поле интенсивной волны, что должно приводить к возрастанию интенсивности этой гармоники. Данный эффект наблюдался в экспериментах, в которых использовалось излучение с различными длительностью и чирпом. Максимальное усиление этой гармоники было получено при положительно чирпированных импульсах длительностью 210 фс [86].

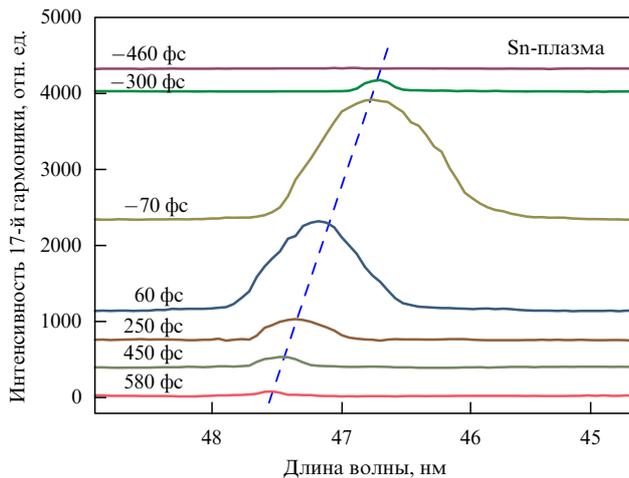


Рис. 6. Вариации интенсивности и спектра усиленной 17-й гармоники, генерируемой в плазме Sn, при различных значениях чирпа и длительности лазерных импульсов.

В плазме олова наблюдалось усиление 17-й гармоники (47,1 нм, 26,5 эВ). Как и в предыдущих случаях, вариации чирпа преобразуемого лазерного импульса приводили к значительным изменениям интенсивности этой гармоники относительно интенсивности соседних гармоник (рис. 6), вследствие изменения длины волны гармоники и соответствующей подстройки к резонансным переходам ионов Sn. Максимальное значение усиления (в 15 раз) этой гармоники получено в случае отрицательно chirпированных импульсов длительностью 70 фс. Аналогичный процесс усиления 17-й гармоники (в 20 раз) в плазме олова исследован в работе [37], где подстройка гармоники к частоте перехода иона Sn с большой силой осциллятора осуществлялась с использованием перестройки генератора лазерной системы. Анализ фотоабсорбционных спектров Sn II показал наличие сильного перехода ( $4d^{10}5s^25p^2P_{3/2} - 4d^95s^25p^2(^1D)^2D_{5/2}$ ) на длине волны 47,20 нм ( $E_{ph} = 26,24$  эВ) [87, 88], параметр  $gf = 1,52$  которого более чем в 5 раз превышал аналогичные параметры других переходов однократно заряженного иона олова из основного состояния. Этот переход, по-видимому, являлся ответственным за усиление 17-й гармоники при перестройке её длины волны [86].

Наряду с вышеотмеченными однокомпонентными образцами исследовались и двухкомпонентные мишени [89–92]. Одновременное возбуждение хрома и теллура приводило к усилению 27-й и 29-й гармоник в подобном плазменном факеле. Эти исследования показали независимость нелинейных процессов, протекающих в различных компонентах плазмы.

Практически полное отсутствие сообщений о резонансном увеличении эффективности генерации одиночных гармоник в экспериментах по преобразованию частоты лазерного излучения в газовых струях может быть объяснено на основе сравнения спектров возбуждения атомов и ионов, получаемых в плазме твердотельных мишеней и газовых струях. В последнем случае в основном используются 4–5 газов и вероятность достижения оптимальных резонансных условий значительно меньше, по сравнению с таковой для многочисленных твердотельных мишеней. Но даже в случае твердотельных мишеней до сих пор удалось обнаружить лишь несколько образцов, в которых реализуются условия усиления отдельной гармоники.

### 3.3. Анализ результатов исследования генерации усиленных гармоник в плазме ряда мишеней

Основное различие между экспериментальными результатами по резонансному усилению гармоник и результатами теории, изложенной в работе [15], заключается в том, что теория предсказывает при определенных условиях резонансное усиление группы гармоник, а не одиночной гармоники. В описанных же в разделах 3.1, 3.2 случаях, а также в аналогичных работах, связанных с анализом усиления гармоник [31, 32, 34, 38, 86], наблюдалось усиление лишь одной гармоники. В то же время эти исследования продемонстрировали усиление группы гармоник (с 33-й по 41-ю (см. раздел 5.4)) в случае преобразования частоты лазерного излучения в плазме марганца, что, возможно, является первым экспериментальным подтверждением теории резонансного усиления, развитой в работе [15].

В основе теоретических предположений лежит представление о динамике свободных электронов. Находясь на возбужденных уровнях и являясь "вытянутыми" из атомов в результате туннельной ионизации, электроны могут обладать ненулевой начальной скоростью. В результате ускорения в поле электромагнитной волны и упругих соударений с родственными ионами электрон может испытывать последующие упругие столкновения дважды в течение каждого периода колебаний волны. Теория предсказывает, что наличие многофотонного резонанса с переходами, обладающими большими значениями  $gf$ , а также влияние эффекта Штарка могут привести к тому, что гармоники с энергией  $\hbar\omega_n$ , удовлетворяющие соотношению

$$1,4U_p + I_{pn} \leq \hbar\omega_n \leq 2U_p + I_{pn}, \quad (2)$$

могут быть резонансно усилены. Здесь  $I_{pn}$  — ионизационный потенциал  $n$ -го возбужденного связанного состояния ( $n = 0$  соответствует основному состоянию), в котором переходит электрон в результате рекомбинации.

При подстановке значений оптимальной интенсивности в экспериментах с марганцевой плазмой ( $I_{fp} = 4 \times 10^{14}$  Вт см<sup>-2</sup>) и второго ионизационного потенциала Mn (15,6 эВ) из соотношения (2) следует, что в случае длины волны преобразуемого излучения 800 нм возможно усиление группы гармоник с порядками между 33-м и 41-м, в то время как в случае излучения с длиной волны 400 нм возможно усиление лишь одиночной (17-й) гармоники. Эти оценки нашли подтверждение как в рецензируемых исследованиях (см. раздел 5.4), так и в экспериментах со второй гармоникой 800-нанометрового излучения, в которых наблюдалось усиление 17-й гармоники в плазме марганца при прохождении через нее 400-нанометровых импульсов (см. раздел 4). Отметим, что марганец обладает сильными резонансными переходами в области длин волн, соответствующих длинам волн гармоник от 33-й до 41-й излучения титан-сапфирового лазера ( $\sim 800$  нм).

Из вышеописанных экспериментальных результатов следует, что основой усиления одиночной гармоники в области плато является возрастание эффективности ГВГ в условиях резонансного увеличения нелинейно-оптического отклика лазерной плазмы. Поэтому ниже этот механизм анализируется более детально. Отметим, что изучение роли атомных и ионных резонансов при генерации гармоник являлось одной из основных целей на ранних стадиях исследования генерации гармоник срав-

нительно низких порядков и влияние атомных и ионных резонансов удовлетворительно описывалось теорией возмущения [76, 93]. В недавних исследованиях [15] усиление гармоник было связано с наличием осциллирующих траекторий электронов, которые взаимодействуют с ионом в процессе перемещения ускоряемого электрона после его туннелирования из атома или иона. Увеличение интенсивности отдельных гармоник также может быть рассмотрено в рамках модели резонансного усиления, основанной на одномерном и зависящем от времени уравнении Шрёдингера для простых модельных потенциалов [14]. Однако, как отмечалось выше, согласно этой модели происходит усиление наряду с "резонансной" гармоникой группы гармоник более высоких порядков [77], что не соответствует экспериментальным наблюдениям, при которых усиливалась лишь гармоника, находящаяся в условиях резонанса с возбуждёнными атомными и ионными состояниями.

Усиление одиночной (13-й) гармоники в случае электронов с ненулевой начальной энергией было рассмотрено и продемонстрировано в [15] для определённых условий. Согласно оценкам подобное увеличение 13-й гармоники может наблюдаться при интенсивностях лазерного излучения  $1,2 \times 10^{14}$  Вт см<sup>-2</sup> и  $2,3 \times 10^{14}$  Вт см<sup>-2</sup> для случаев генерации гармоник с учётом влияния  $\ln I$  и  $\ln P$  соответственно. Результаты работы [15] показывают, что возрастание интенсивности одиночной гармоники в значительной степени зависит от длины волны и интенсивности лазерного излучения. В то же время в эксперименте увеличение интенсивности одиночной гармоники, обусловленное резонансными процессами, наблюдалось в широком диапазоне интенсивности лазерного излучения. Данный факт указывает на возможность подстройки резонансного усиления во время действия лазерного импульса. Для объяснения наблюдавшихся особенностей следует провести детальный анализ, учитывающий влияние электронов внутренних оболочек (наряду с влиянием электронов внешней оболочки).

Подобное усиление одиночной гармоники может быть обусловлено такими траекториями электрона, при которых он дважды за цикл колебаний лазерной волны приближается к "родному" иону и взаимодействует с ним [15]. Поскольку подобные траектории электронов начинаются с резонансно населённого возбуждённого состояния с ненулевой начальной кинетической энергией, электроны имеют соответственно ненулевую энергию при приближении к иону. Как следует из трёхуровневой модели, рекомбинация приводит к излучению гармоник. Однако вследствие малой вероятности подобного процесса концентрация электронов, ускоряемых лазерным полем, увеличивается, а также возрастает вероятность переизлучения избыточной энергии электронов в виде излучения гармоник при увеличении числа столкновений электронов с ионами. Эти многократные столкновения приводят к повышению интенсивности тех гармоник, которые находятся вблизи атомных или ионных резонансов.

Ряд экспериментальных наблюдений (таких как зависимость интенсивности гармоник от положения точки фокусирования лазерного пучка, размеров области плазмы и интенсивности излучения) указывает на то, что подобные особенности связаны с коллективным характером процесса ГВГ. Анализ процессов, связанных с особенностями фазовых соотношений между волнами лазерного излучения и гармоник, должен включать в

себя исследование влияния пространственной и временной неоднородности преобразуемого излучения. Среди факторов, приводящих к возрастанию отдельных гармоник, следует отметить также процессы, связанные с различием фазового синхронизма для разных гармоник. Фазовая расстройка ( $\Delta k = nk_{\text{laser}} - k_i$ , где  $k_i$  — волновое число  $i$ -й гармоники) изменяется по мере прохождения лазерного импульса через плазменный факел вследствие сопутствующей этому процессу дальнейшей ионизации нелинейной среды. Согласно теоретическим оценкам при одинаковой концентрации частиц в плазме фазовая расстройка, вызванная влиянием свободных электронов, для гармоник в области плато на один-два порядка превышает расстройку, обусловленную влиянием атомов и однозарядных ионов. В резонансных условиях, когда частота какой-либо гармоники становится близкой к частоте атомных переходов с внутренних оболочек, вариации волнового числа такой гармоники, обусловленные влиянием атомов, могут достигать значительных величин и при этом влияние свободных электронов может быть компенсировано. В подобных условиях возможно создание оптимальных фазовых соотношений для одной гармоники, что должно привести к возрастанию эффективности преобразования только этой гармоники.

Анализ усиления одиночных гармоник важен для понимания процессов, влияющих на нелинейно-оптический отклик плазменных факелов. Здесь мы кратко представим приложения теоретической модели резонансной ГВГ [46, 47] в случаях ионов Sb II, Cr II и Te II [92]. О генерации усиленных гармоник в этих ионных средах сообщалось в работах [34, 38, 72, 83, 86]. Отметим, что резонансное усиление гармоник также проанализировано и в случае сложных мишеней: двухатомных молекул [90] и мишеней, состоявших из двух компонентов [92]. Теоретическая модель предполагает, что вследствие значительного поглощения на определённых переходах этих ионов населённость метастабильных возбуждённых состояний в результате воздействия энергии возбуждения  $\Delta\omega = E_2 - E_1$  увеличивается. При этом создается когерентная суперпозиция основного (с энергией  $E_1$ ) и возбужденного (с энергией  $E_2$ ) состояний. Если длина волны линейно поляризованного излучения находится в резонансе с этим переходом, то наряду с излучением стандартных гармоник на частоте  $(2k + 1)\omega$  возможно излучение нечётных гармоник на частоте  $\Omega = \Delta\omega \pm 2n\omega = (2n_R + 1 \pm 2n)\omega$ ,  $n = 0, 1, 2, \dots$

Первые численные результаты для случая ионов олова [46, 47], которые показывают заметное усиление 17-й гармоники, находятся в удовлетворительном качестве в согласии с экспериментальными данными [37]. Другие гармоники формируют плато с последующим резким снижением интенсивности гармоник, в соответствии с трёхступенчатой моделью ГВГ [23, 44, 45]. В теоретической модели, описывающей резонансно усиленные гармоники, соседние (15-я и 19-я) гармоники также несколько усилены. Возможное объяснение такого несогласования с результатами эксперимента (в котором усиления соседних гармоник не наблюдалось, как и во всех других случаях с усиленными гармониками (см. раздел 3.2)) заключается в том, что данная теоретическая модель использует приближение сильного поля, которое может быть недостаточно корректным в случае процессов низших порядков вблизи резонансов и не учитывает влияния кулоновских эффектов. Полученные

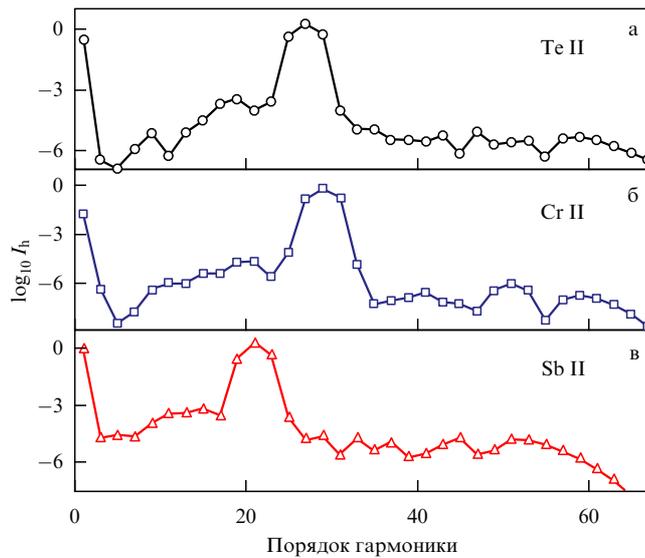


Рис. 7. Результаты расчёта распределения интенсивностей  $I_h$  гармоник в случае ГВГ в Te II (а), Cr II (б) и Sb II (в).

результаты показывают, что для наблюдения усиления гармоник необязательна точная подстройка излучения гармоник (либо основной лазерной волны) к резонансу. Принимая во внимание качественное согласие предложенной модели и эксперимента в случае Sn II, представляется интересным провести сравнение её результатов с другими экспериментальными данными по резонансному усилению, в частности для случаев ионов Sb II, Cr II и Te II.

На рисунке 7 приведены результаты численного расчёта ГВГ для этих плазменных сред при длинах волн основного излучения, использовавшихся в экспериментах. Видно, что для Sb II (рис. 7в,  $E_1 = -16,63$  эВ,  $\Delta\omega = 32,79$  эВ) наблюдается усиленная 21-я гармоника, что качественно соответствует результатам эксперимента [38]. В случае ионов хрома (рис. 7б,  $E_1 = -16,48$  эВ,  $\Delta\omega = 45,23$  эВ) получено усиление 29-й гармоники в соответствии с результатами, представленными в работе [83]. Наконец, теоретический расчёт показал усиление 27-й гармоники в плазме теллура (рис. 7а,  $E_1 = -18,6$  эВ,  $\Delta\omega = 40,18$  эВ), что также качественно согласуется с результатами эксперимента [72]. Все три расчётных кривых спектрального распределения гармоник завершаются резким понижением интенсивности последних гармоник. Некоторое усиление гармоник, ближайших к той, которая усилена в большей степени, объясняется теми же причинами, которые изложены выше для случая расчётов ГВГ в плазме олова. Авторы работы [92] указывают на то, что до сих пор отсутствует теоретическое описание резонансного усиления одиночных гармоник, которое бы в точности соответствовало экспериментальным результатам, в частности усилению лишь одиночной гармоники.

#### 4. Генерация гармоник излучения с длиной волны 400 нм при прохождении через лазерную плазму

Коротковолновые источники большой интенсивности для преобразования частоты лазерного излучения в ДУФ-диапазон имеют ряд привлекательных достоинств

по сравнению со стандартным источником (титан-сапфировый лазер), применяемым в большинстве экспериментов по ГВГ. В частности, при использовании излучения с меньшей длиной волны снижается влияние свободных электронов на фазовую синхронизацию процесса ГВГ. В то же время в соответствии с трёхступенчатой моделью, описывающей ГВГ в газах и плазме, предельно высокая энергия генерируемых фотонов ( $E_c$ ) должна снижаться с уменьшением длины волны пропорционально  $\lambda^2$ . Соответственно наивысший порядок генерируемой гармоники будет изменяться с длиной волны пропорционально  $\lambda^3$ .

О первых наблюдениях ГВГ с использованием коротковолновых лазеров (KrF-эксимерный лазер,  $\lambda = 248$  нм) сообщалось в работах [17, 18]. В этих работах была получена генерация гармоник в плазме свинца вплоть до гармоники 21-го порядка. Была также проанализирована положительная фазовая расстройка, обусловленная свободными электронами, в случае использования для ГВГ инфракрасного и ультрафиолетового излучения. Существенная разница в фазовой расстройке в этих двух случаях позволяла рассчитывать на улучшение выходных характеристик генерируемых гармоник для коротковолновых лазеров. Аналогичные выводы были сделаны и на начальных этапах исследования ГВГ в газах [94]. В связи с этим представляет интерес сравнительный анализ использования излучения с длиной волны в два раза меньшей по сравнению с длиной волны традиционного источника (титан-сапфировый лазер,  $\lambda \approx 800$  нм).

Недавно для увеличения эффективности преобразования частоты лазерных импульсов была предложена так называемая двухцветная (two-color) схема ГВГ в газах, в которой в качестве накачки использовались как основное излучение, так и его вторая гармоника [95]. Последующие исследования по использованию второй гармоники для улучшения фазовой синхронизации и оптимизации траекторий электронов выявили ряд новых особенностей этого процесса [96, 97]. Аналогичные исследования могли бы быть проведены и в экспериментах с плазменной ГВГ, что позволило бы выявить возможность генерации аттосекундных импульсов в такой экспериментальной схеме. В связи с этим следует более тщательно исследовать процесс ГВГ в плазме с использованием коротковолнового излучения.

В этом разделе анализируются результаты исследования ГВГ с использованием второй гармоники излучения титан-сапфирового лазера ( $\lambda \approx 400$  нм). Экспериментальная схема ГВГ описана в разделе 2. Основное различие в данном случае заключалось в применении в качестве преобразуемого излучения импульсов со следующими характеристиками:  $E = 5$  мДж,  $t = 35$  фс,  $\lambda_{\text{лр}} = 400$  нм, спектральная ширина 9 нм.

Отличительной чертой распределения гармоник в случае импульсов с длиной волны 400 нм являлось отсутствие характерной для 800-нанометрового излучения платообразной картины, которая здесь наблюдалась лишь в случае бериллиевой плазмы ( $H_c = 31$ ,  $\lambda = 12,9$  нм) [98]. Гармоники, полученные от серебряной плазмы, характеризовались значительно меньшей интенсивностью (по сравнению с таковой в случае излучения с длиной волны 800 нм, преобразуемого в Ag-плазме), а также очень низким порядком максимальной гармоники (17). Сравнение с гармониками в области плато, генерируемыми 800-нанометровым излучением в плазме серебра, показало примерно десятикратное уменьшение

эффективности преобразования при использовании излучения с удвоенной частотой [73].

Измерения параметров гармоник, генерируемых в плазме серебра, показали четырёхкратное снижение максимального порядка гармоник в случае 400-нанометрового излучения по сравнению с таковым при преобразовании импульсов с длиной волны 800 нм. В последнем случае наивысший порядок генерируемых гармоник достигал 60 [39, 42, 99]. Отметим, что из трёхступенчатой модели ГВГ в этом случае (двукратное уменьшение длины волны лазерного излучения) следует восьмикратное снижение максимального порядка гармоники (поскольку  $H_c \propto \lambda^3$ ). Аналогичные отклонения от этой зависимости наблюдались в случае алюминиевой мишени (15-я и 43-я гармоники при преобразовании импульсов с длинами волн 400 и 800 нм).

Причинами подобного отклонения могут быть несколько механизмов. Один из них может быть связан с участием в ГВГ различных компонентов плазмы (атомов, однократно или двукратно заряженных ионов) в случае импульсов с длинами волн 400 и 800 нм. Поскольку максимально достижимый порядок гармоники линейно зависит от интенсивности преобразуемого излучения, то необходимо проводить сравнение этого параметра при одинаковых интенсивностях импульсов с длинами волн 400 и 800 нм. В описываемых же экспериментах интенсивность второй гармоники излучения титан-сапфирового лазера значительно уступала интенсивности основного излучения вследствие малой эффективности преобразования во вторую гармонику (соответствующие энергии импульсов 5 и 50 мДж). Другой причиной может являться то, что кубическая зависимость от длины волны излучения справедлива лишь для очень больших порядков гармоник. Соответствующую роль здесь может играть и разница в дефокусировке, обусловленной ионизованной плазмой, в случае этих двух длин волн. Меньшее влияние свободных электронов на фазовое согласование волн гармоник и основного излучения в случае коротковолнового излучения также может быть причиной отклонения от кубической зависимости.

В некоторых из исследованных образцов наблюдалась генерация усиленных одиночных гармоник, как и в случае излучения с длиной волны 800 нм (см. раздел 3). Усиленные гармоники генерировались вблизи ионных резонансов с большими силами осциллятора. На рисунке 8а приведен подобный спектр, на котором хорошо видно усиление 9-й гармоники ( $\lambda = 44,4$  нм) в плазме олова, интенсивность которой в восемь раз превышает интенсивности соседних гармоник. Аналогичное усиление в плазме олова с использованием 800-нанометрового импульса обсуждалось в разделе 3. В случае 400-нанометрового излучения значительную роль в усилении 9-й гармоники ( $E_{ph} = 27,92$  эВ), наряду с указанными выше переходами, могли играть и переходы  $4d^{10}5s5p \rightarrow 4d^95s5p^2$  (28,33–28,71 эВ) иона Sn III вследствие большого значения параметра  $gf$  [87].

В плазме хрома наблюдалась усиленная 15-я гармоника (рис. 8б), которая, как и при усилении 29-й гармоники 800-нанометрового излучения, была обусловлена влиянием коротковолнового крыла группы переходов  $3p \rightarrow 3d$  однократно заряженного иона хрома [34, 73, 83].

Максимальный порядок гармоник, генерируемых в плазме Mn, оказался значительно ниже по сравнению с таковым в случае преобразования 800-нанометровых

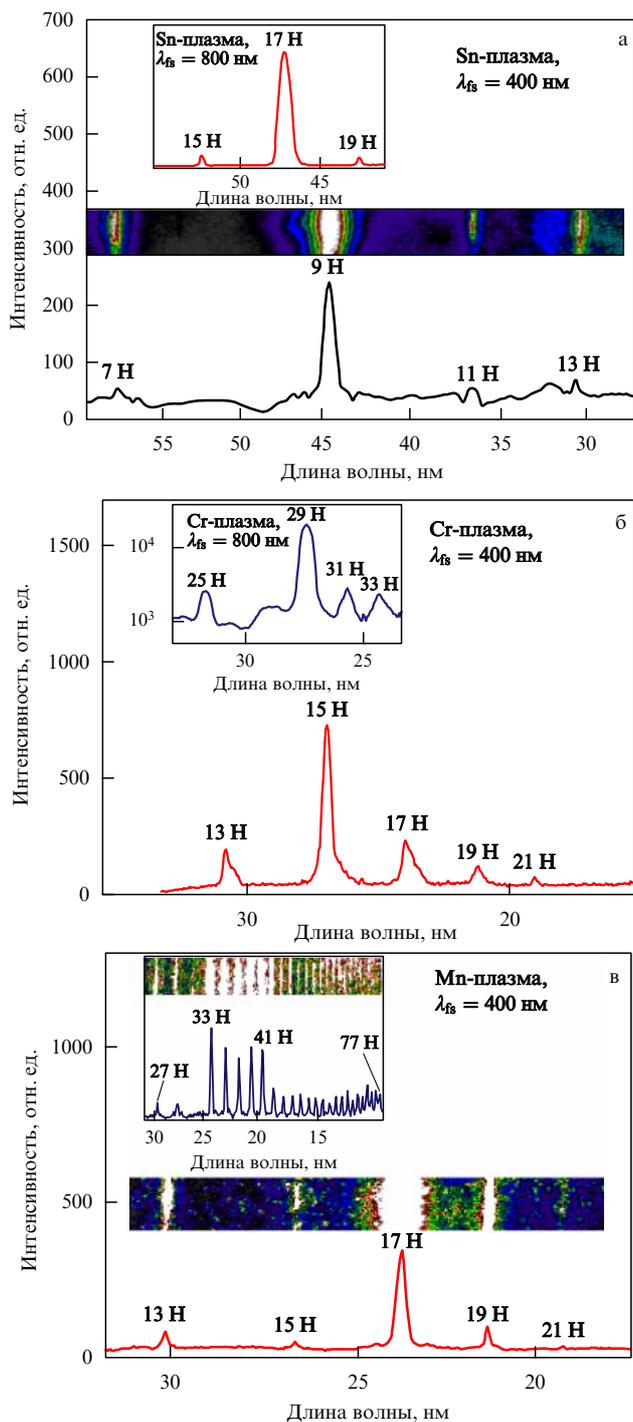


Рис. 8. Усиление одиночных гармоник 400-нанометрового излучения, проходящего через плазму (а) Sn, (б) Cr и (в) Mn. На вставках для сравнения показано усиление соответствующих гармоник или групп гармоник при использовании 800-нанометрового излучения.

импульсов (соответственно 21-я и 101-я гармоники). В спектре гармоник излучения 400-нанометровой накачки выделялась 17-я гармоника, которая в шесть раз превышала гармоники с соседними порядками (рис. 8в). Усиление одиночной гармоники в этом случае значительно контрастировало с усилением группы гармоник при использовании 800-нанометровых импульсов (см. вставку к рис. 8в). Более детальный анализ генерации гармоник 800-нанометрового излучения в плазме марганца будет представлен в разделе 5.4. Здесь же мы отметим при-

мерно трёхкратное превышение интенсивности гармоник, имеющих порядок с 33-го по 41-й, интенсивности соседних гармоник. 17-я гармоника 400-нанометрового излучения ( $\lambda = 23,5$  нм,  $E_{ph} = 52,7$  эВ) соответствует максимальной достигнутой к настоящему времени энергии усиленного фотона.

Изменения chirpa 800-нанометрового излучения в этих экспериментах с 400-нанометровым излучением не приводили к сдвигу длины волны гармоники, обуславливающему изменение квазирезонансных условий усиления одиночных гармоник. Это было связано с узкой шириной спектра 400-нанометровых импульсов (9 нм), что не позволяло существенно сдвигать спектр гармоник.

Использование более коротковолновых источников для преобразования частоты лазерного излучения в процессах ГВГ имеет ряд преимуществ. Как отмечалось выше, важной особенностью использования лазерного излучения с меньшей длиной волны является меньшая фазовая расстройка между волнами гармоник и преобразуемого излучения вследствие меньшего влияния свободных электронов на условия фазового синхронизма. В случае высших гармоник фазовая расстройка определяется в основном влиянием свободных электронов ( $\Delta k = (n^2 - 1)(\omega_p)^2 / 2nc\omega$ , где  $\omega_p$  — плазменная частота,  $n$  — порядок гармоник,  $c$  — скорость света,  $\omega$  — частота лазерного излучения). При средней плотности лазерного пламени ( $N = 2 \times 10^{17}$  см $^{-3}$ ), наиболее часто использовавшейся в экспериментах по плазменной ГВГ, и при степени ионизации равной единице (соответствовавшей оптимальной плотности факела в зоне взаимодействия с фемтосекундным импульсом) фазовая расстройка составляет примерно 90 см $^{-1}$  (для 400-нанометровых импульсов). Соответствующая когерентная длина для гармоник вплоть до гармоник 21-го порядка (т.е. до  $\lambda \sim 19$  нм) составляет 0,7 мм, что сопоставимо с размерами области использовавшейся плазмы (0,6 мм). В то же время в случае 800-нанометровых импульсов аналогичная фазовая расстройка, обусловленная свободными электронами, позволяет достигать условий фазовой синхронизации лишь для гармоник с длиной волны не ниже 38 нм. Эти оценки показывают, что источники с меньшей длиной волны имеют преимущество с точки зрения создания благоприятных условий синхронной перекачки энергии для более коротковолновых гармоник (при одинаковой плотности свободных электронов).

Эксперименты с 400-нанометровыми импульсами продемонстрировали как положительные, так и отрицательные стороны использования коротковолнового излучения для ГВГ в лазерной плазме. Порядки гармоник, полученных в этих экспериментах, не превышали значения порядков гармоник, генерируемых посредством 800-нанометрового излучения. В то же время к потенциальным преимуществам использования коротковолнового излучения можно отнести большие эффективности преобразования в некоторых областях спектра. В частности, низшие гармоники 400-нанометрового излучения соответствуют гармоникам среднего порядка в случае 800-нанометровой накачки, и в области длин волн 100–200 нм можно ожидать более эффективной генерации гармоник посредством коротковолнового излучения. Лучшая когерентность и меньшая длительность в случае второй гармоники излучения титан-сапфирового лазера также могут быть отнесены к достоинствам в этом спектральном диапазоне, поскольку

обеспечивают условия лучшей синхронизации гармоник и основной волны.

Отмеченное выше свойство коротковолнового излучения, позволяющее в меньшей степени учитывать негативное влияние свободных электронов, может быть соответствующим образом использовано при условии достижения хорошего энергетического преобразования во вторую гармонику в нелинейных кристаллах. В то же время эффективность преобразования во вторую гармонику в случае фемтосекундных импульсов и тонких нелинейных кристаллов (необходимых для предотвращения удлинения импульсов вследствие дисперсии групповых скоростей преобразуемых волн) пока недостаточно высока ( $\sim 20$ – $25$  %), что является ограничивающим фактором в использовании этого излучения для преобразования в ДУФ-область.

## 5. Особенности генерации высших гармоник в плазме В, Ag, Au, Mn и V

Как отмечалось во введении, одной из главных задач исследования ГВГ является поиск плазменных сред, позволяющих получить максимальные порядки генерируемых гармоник, а также увеличить энергию импульсов преобразованного коротковолнового излучения. В этом разделе анализируется преобразование частоты лазерного излучения в плазме различных материалов с целью решения указанной задачи.

### 5.1. Бор

При исследовании преобразования частоты лазерного излучения в плазме бора использовались две схемы ГВГ. В случае первой (ортогональной) схемы, которая использовалась в большинстве исследований ГВГ, часть несжатого излучения титан-сапфирового лазера возбуждала плазму, после чего фемтосекундное излучение с определённой задержкой фокусировалось в плазму с ортогонального направления. В случае второй (продольной) схемы субнаносекундный импульс фокусировался в область, прилегающую к отверстию, просверленному на поверхности мишени, и создавал плазму, после чего второй (фемтосекундный) импульс направлялся параллельно первому импульсу и проходил через плазму и отверстие. Генерируемые при этом гармоники регистрировались способом, описанным в разделе 2.

В экспериментах с плазмой бора, проведённых по ортогональной схеме, получены высшие гармоники вплоть до 63-го порядка ( $\lambda = 12,6$  нм [30]). Платообразная картина, проявлявшаяся в распределении гармоник с порядком выше 21-го (рис. 9), была аналогична распределению гармоник в многочисленных экспериментах с "газовыми" гармониками. Эффективность преобразования в гармоники варьировалась от  $10^{-4}$  (для третьего порядка) до  $10^{-7}$  в случае гармоник, расположенных в области плато. Платообразная картина пропадала при превышении интенсивностью излучения предимпульса на поверхности мишени определённого предела, при котором генерировалось большое количество свободных электронов и наблюдался континуум в свечении плазмы. При этом максимальный порядок гармоник не превышал 19-го. С дальнейшим возрастанием интенсивности предимпульса в области мишени в спектре плазмы бора появлялись интенсивные линии двукратно заряженных ионов, наряду с сильным свечением континуума,

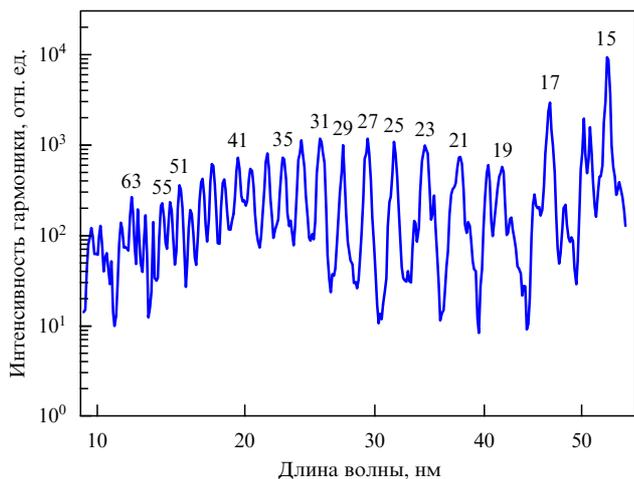


Рис. 9. Спектр гармоник, генерируемых в плазме бора, в случае ортогональной схемы преобразования.

которое не позволяло наблюдать гармоники с длиной волны менее 65 нм.

Оптимизация ГВГ осуществлялась вариацией геометрии эксперимента, при которой фокусировка фемтосекундного импульса изменялась от "слабой" ( $b = 4,8$  мм,  $L_p \approx 0,6$  мм,  $b \gg L_p$ , здесь  $b$  и  $L_p$  — соответственно конфокальный параметр сфокусированного излучения и длина плазмы) до "сильной" ( $b = 1,2$  мм,  $L_p \approx 0,6$  мм,  $b \propto L_p$ ). При этом несколько увеличивался порядок генерируемых гармоник (65-я гармоника,  $\lambda = 12,24$  нм), а также эффективность преобразования в области плато ( $5 \times 10^{-7}$ ).

Анализ генерируемого излучения гармоник с использованием второй (продольной) схемы ГВГ продемонстрировал решающую роль характеристик гребенчатого излучения предимпульса для создания оптимальных условий преобразования частоты лазерного излучения. При малых энергиях предимпульса наблюдалась степенная зависимость с показателем 3,5 интенсивности гармоник от интенсивности предимпульса в области мишени. В этих исследованиях получены гармоники с порядком вплоть до 57-го. Эффективность преобразования, однако, оставалась на низком уровне ( $10^{-7}$  [100]).

## 5.2. Серебро

В случае серебряной плазмы платообразная картина наблюдалась для гармоник с порядком выше 9-го (см. рис. 3). Эффективность преобразования ( $1 \times 10^{-6}$ ) значительно превышала эффективность преобразования в аналогичных условиях эксперимента в случае плазмы бора. Калибровка регистрационной аппаратуры в области высших и низших гармоник позволила осуществить абсолютные измерения эффективности преобразования [42]. Последующая оптимизация этого процесса привела к значительному увеличению эффективности ГВГ в области плато ( $8 \times 10^{-6}$ ), которая оказалась сравнимой с эффективностью преобразования в газоструйных источниках.

Важной характеристикой этого процесса является зависимость максимального порядка генерируемых гармоник от интенсивности фемтосекундного импульса. В случае Ag-плазмы эта зависимость,  $H_c(I_{fp})$ , имела линейный характер и достигала насыщения при  $I_{fp} = 3,5 \times 10^{14}$  Вт см<sup>-2</sup>. Такая интенсивность 150-фемтосекундных импульсов значительно превышает интенсив-

ность туннельной ионизации нейтральных атомов серебра. Результаты исследований показывают, что роль свободных электронов, генерируемых при ионизации нейтральных атомов, незначительна вследствие их малой концентрации. Поскольку ионизация нейтральных атомов не приводит к насыщению указанной зависимости, а также не влечёт за собой значительной фазовой расстройке, самодефокусировки и подавления пиковой интенсивности в области плазмы, то это насыщение (57-я гармоника) может быть обусловлено последующей ионизацией однократно заряженных ионов и возрастанием концентрации свободных электронов. Расчёт порога туннельной ионизации однократно заряженных ионов серебра ( $2,1 \times 10^{14}$  Вт см<sup>-2</sup>,  $I_{2i} = 21,48$  эВ) показывает, что он примерно совпадает с интенсивностью, при которой начинается насыщение зависимости  $H_c(I_{fp})$ .

Последующие эксперименты с плазмой серебра, проведённые с использованием 795-нанометровых 48-фемтосекундных импульсов, продемонстрировали возрастание  $H_c$  (61-я гармоника,  $\lambda = 13$  нм (рис. 10)). Оптимальные условия генерации гармоник наблюдались при расстоянии между областью взаимодействия излучения с плазмой и поверхностью мишени 100–200 мкм (в зависимости от порядка генерируемой гармоника). Оптимальное расстояние также зависело от временной задержки между импульсами. В этих экспериментах, как и в предыдущих, было показано отрицательное влияние чрезмерной интенсивности предимпульса в области мишени, приводящей к снижению эффективности преобразования (при  $I_{pp} > 3 \times 10^{10}$  Вт см<sup>-2</sup>) либо к полному нарушению условий ГВГ (при  $I_{pp} > 8 \times 10^{10}$  Вт см<sup>-2</sup>) [39].

Важным моментом этих исследований являлось определение условий для оптимальной ГВГ при различных положениях фокальной плоскости линзы, фокусирующей основной фемтосекундный пучок в область Ag-плазмы. Зависимость интенсивности гармоник от положения фокуса относительно плазменного факела в значительной степени зависела от энергии импульса, а также интенсивности в области фокуса используемой линзы. При малой интенсивности наблюдался одиночный максимум в зависимости  $I_h(z)$  (здесь  $I_h$  и  $z$  — соответственно интенсивность гармоника и продольная координата) в области фокусирования, совпадающей с плазменным факелом. Однако при больших интенсивностях фемтосекундного излучения в этой зависимости наблюдались два максимума: один — меньший, когда фокальная плоскость располагалась перед лазерным факелом, и другой — больший, когда фокусирование осуществлялось за областью факела. При такой интенсивности фокусирование в область плазмы вызывало значительную дополнительную ионизацию плазменного факела и последующее интенсивное свечение в ДУФ-области. Появление избыточных свободных электронов и фазовая самомодуляция приводили в этом случае к нарушению фазовой синхронизации между волнами основного

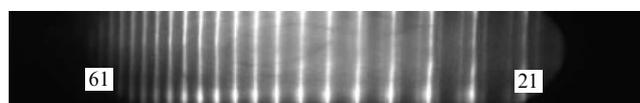


Рис. 10. Распределение гармоник, генерируемых в серебряной плазме, при использовании 48-фемтосекундных импульсов.

излучения и гармоник и, следовательно, к резкому снижению эффективности ГВГ.

В случае фокусирования за область нелинейной среды можно ожидать изменения пространственной формы лазерного излучения (от гауссова распределения к более плоскому распределению в центральной области пучка) вследствие большей концентрации свободных электронов в осевой области, приводящей к расфокусированию этой части пучка. Детальный анализ этих условий дается в работе [101]. Когда нелинейная среда располагается перед плоскостью фокусирования фемтосекундного импульса, центральная часть лазерного пучка подвергается воздействию отрицательной нелинейной рефракции, обусловленной свободными электронами, что приводит к увеличению расходимости этой области пучка. В то же время "крылья" пространственного распределения такого пучка продолжают фокусироваться в плазме. При этом возможно достижение синхронной перекачки энергии от волны накачки в волны гармоник на более протяжённом участке плазмы, что ведет к увеличению интенсивности гармоник, наблюдавшемуся ранее в газовых средах [102, 103].

Важность точного контроля над энергиями предимпульса и основного импульса для получения эффективной ГВГ была продемонстрирована в последующих экспериментах с более короткими (35 фс) лазерными импульсами. С возрастанием интенсивности предимпульса в экспериментах с Ag-плазмой наблюдались вариации спектральной ширины гармоник [99]. На рисунке 11 приведены зависимости спектральной ширины 17-й, 25-й и 43-й гармоник от интенсивности предимпульса. Форма этих зависимостей четко показывает, что в то время как спектральная ширина низших гармоник увеличивается с возрастанием  $I_{pp}$ , аналогичный параметр высших гармоник остается неизменным.

Расчёты характеристик плазменных факелов производились с использованием кода HYADES. Этот одномерный код ранее был создан для расчётов при лабораторных экспериментах с плазмой, полученной в результате воздействия на вещество мощных источников энергии. Код был разработан с учётом следующих требований: 1) удобное использование экспериментатором, 2) применение простых, но в то же время аккурат-

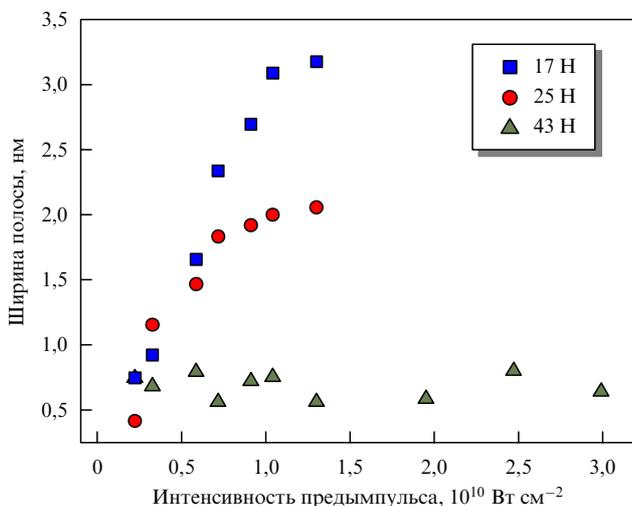


Рис. 11. Зависимость ширины спектра 17-й, 25-й и 43-й гармоник от интенсивности 35-фемтосекундных импульсов.

Таблица 1. Расчётные характеристики плазмы серебра

|   |      |      |      |      |      |      |      |
|---|------|------|------|------|------|------|------|
| Интенсивность предимпульса, $10^{10}$ Вт см <sup>-2</sup> | 0,3  | 0,59 | 0,9  | 1,3  | 1,95 | 2,6  | 3,25 |
| Концентрация электронов, $10^{17}$ см <sup>-3</sup>       | 0,89 | 2,56 | 3,2  | 4,0  | 5,79 | 6,33 | 8,0  |
| Концентрация ионов, $10^{17}$ см <sup>-3</sup>            | 0,89 | 2,56 | 3,17 | 3,41 | 4,45 | 4,55 | 5,06 |
| Степень ионизации   | 0,5  | 0,7  | 1,01 | 1,17 | 1,3  | 1,39 | 1,58 |

ных приближений различных физических моделей, 3) возможность сравнительно легкой модификации и включения в рассмотрение новых моделей, 4) возможность использования различных компьютерных операционных систем. Недавние модификации этого кода позволили получить более реалистичные результаты расчёта параметров плазмы, в частности температур в диапазоне нескольких электронвольт. Разработанные Ларсоном и Лейном [104] эти модификации кода HYADES в дальнейшем применялись для расчётов динамики напыления с использованием плазменного факела [105], моделирования различных плазменных неустойчивостей [106], оптимизации характеристик разреженной плазмы для различных приложений [107] и т.д.

Эксперименты с гармониками, генерируемыми в серебряной плазме, вариации яркости (иными словами, спектральной ширины) гармоник, а также расчёты с помощью кода HYADES показали, что изначально (при малой интенсивности предимпульса,  $I_{pp} < 0,9 \times 10^{10}$  Вт см<sup>-2</sup>) степень ионизации плазмы сохраняется в пределах между 0,5 и 1 (табл. 1). Плазма состоит в этом случае из нейтральных атомов и однократно заряженных ионов, ответственных за ГВГ. При интенсивностях предимпульса в диапазоне  $(0,9 - 3) \times 10^{10}$  Вт см<sup>-2</sup> ионизационный уровень становится выше единицы. Плазма в этих условиях состоит преимущественно из однократно заряженных ионов серебра, а также небольшого количества двукратно заряженных ионов. При этом наблюдается возрастание ширины спектра низших гармоник, в то время как спектр высших гармоник остаётся неизменным. Для значений интенсивности больших  $3 \times 10^{10}$  Вт см<sup>-2</sup> ионизационный уровень превышает 1,5. Возрастание концентрации свободных электронов в этом случае препятствует дальнейшему протеканию ГВГ, вследствие рассинхронизации волн, участвующих в данном процессе.

### 5.3. Золото

Анализ характеристик лазерной плазмы играет важную роль в оптимизации процесса преобразования частоты излучения мощных лазерных систем. Одним из таких параметров является спектральный состав свечения плазмы в видимом и ультрафиолетовом диапазонах. На первых этапах исследования ГВГ в лазерной плазме анализ спектра проводился на основе наблюдения интегральных по времени спектральных характеристик плазменного факела. Иными словами, регистрировался спектр факела в течение всего времени его свечения [35]. Однако при исследовании ГВГ в плазме, образованной на поверхности некоторых мишеней, недавно была применена методика анализа плазменного факела на различных этапах его развития [108]. Это позволило

обнаружить ряд особенностей в динамике перевозбуждения плазмы под действием фемтосекундного излучения в случае разных мишеней и интенсивностей греющего импульса. Ниже приведены результаты анализа плазмы, образованной на поверхности золота, с целью оптимизации ее характеристик для ГВГ.

Интервал между каждым измерением спектра составил 20 нс с начала возбуждения Au-плазмы до момента, когда плазма заметно рекомбинировала при оптимальных для ГВГ условиях (150 нс). Эти исследования проводились как для "оптимальной" плазмы, так и для "неоптимальной" плазмы. Термин "оптимальная" плазма характеризует такое состояние плазменного факела, при котором ГВГ реализуется с максимальной эффективностью, и, наоборот, в "неоптимальной" плазме эффективность заметно снижена в результате действия ряда ограничивающих факторов. Измерение плазменного спектра было проведено в узком ультрафиолетовом (УФ) диапазоне (266–295 нм), в котором можно было проследить динамику изменения возбуждения однократно заряженных ионов. "Оптимальная" плазма обеспечивала генерацию платообразного распределения гармоник, при этом наблюдалась генерация гармоник с наиболее высокими порядками.

Динамика УФ-спектра плазмы золота с учётом воздействия на плазму фемтосекундного излучения через 100 нс после начала развития плазмы приведена на рис. 12. Времена затухания возбуждённых нейтральных линий значительно отличались от времён затухания ионных линий. На рисунке можно наблюдать быстрое снижение интенсивности линий Au II (280,20 нм, 282,25 нм и 291,18 нм), возбуждённых при этих условиях, в то время как времена свечения линий, обусловленных нейтральными атомами золота (267,59 нм и 274,82 нм), значи-

тельно превосходили времена свечения ионных линий. Из этих же спектров можно видеть, что основной импульс, приходящий через 100 нс после начала плазмообразования, возбуждает в основном ионные линии, в то время как линии нейтральных атомов не претерпевают значительных изменений [74].

Другая картина наблюдалась в динамике УФ-спектра с увеличением интенсивности предимпульса на поверхности мишени. Возрастание этого параметра от  $1 \times 10^{10}$  Вт см<sup>-2</sup> до  $(2-3) \times 10^{10}$  Вт см<sup>-2</sup> приводило к значительному увеличению эмиссии плазмы. Наряду с приблизительно четырёхкратным возрастанием интенсивности ионных линий появлялись и другие составляющие спектра, связанные с дополнительными ионными переходами в спектре золота. УФ-спектры плазмы в случаях оптимальных и неоптимальных условий генерации гармоник через 90 и 100 нс после начала плазмообразования значительно отличались друг от друга. Аналогичной картины следовало ожидать и в случае спектрального распределения в ДУФ-области спектра ( $\lambda < 30$  нм). Условия эксперимента не позволяли проанализировать динамику спектра плазмы с временным разрешением в указанном диапазоне. Однако появление интенсивных линий ионов в диапазоне генерации платообразного распределения гармоник, наблюдавшееся с использованием анализа интегральных спектров гармоник и плазмы, приводило к значительному снижению интенсивности гармоник, а иногда и к полному их исчезновению. В частности, сравнительно небольшое увеличение интенсивности предимпульса на поверхности мишени (от  $1 \times 10^{10}$  до  $2,5 \times 10^{10}$  Вт см<sup>-2</sup>) вызывало снижение интенсивности 13-й гармоники в 2,5 раза.

Проведённый анализ позволил оптимизировать ГВГ путем выбора наиболее приемлемых значений интенсив-

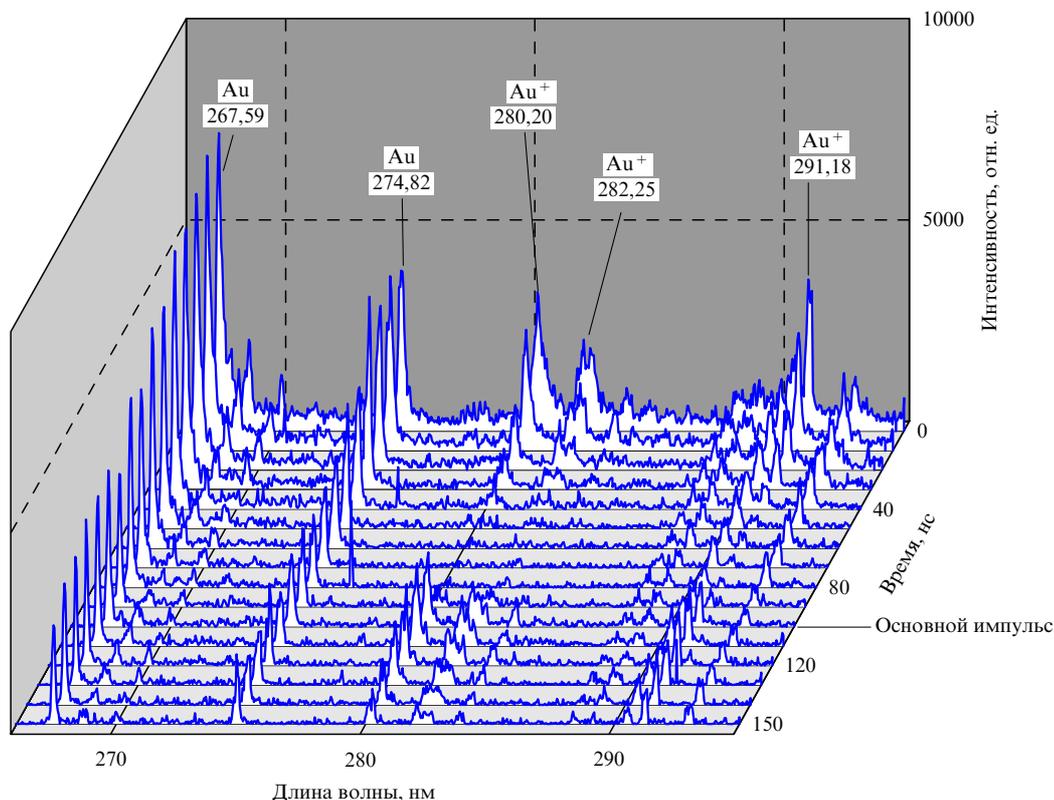


Рис. 12. Динамика спектров свечения плазмы золота в ультрафиолетовой области,  $I_{pp} = 1 \times 10^{10}$  Вт см<sup>-2</sup>.

ностей предимпульса и основного импульса, а также временной задержки между ними. Подобная оптимизация позволила уменьшить влияние основного ограничивающего фактора ГВГ при преобразовании излучения в плазме — избыточной концентрации свободных электронов, приводящей к фазовой расстройке и самодефокусировке. Проведённая таким образом оптимизация позволила достичь продвижения генерируемых гармоник в Au-плазме в область более коротких длин волн. В этих условиях порядок генерируемых гармоник достигал 53 ( $\lambda = 15,09$  нм). Сравнение эффективности преобразования в плазмах Ag и Au показало, что в последнем случае интенсивности гармоник с порядками между 25-м и 49-м оказались в несколько раз ниже. Эффективность преобразования в плазме золота в области плато составила  $2 \times 10^{-6}$ .

Эти исследования продемонстрировали достоинства анализа плазмы на различных этапах ее развития с высоким временным разрешением. Представленная выше методика является первой попыткой оптимизировать характеристики плазмы, используемой в качестве нелинейной среды для ГВГ, на основе анализа динамики лазерной плазмы в процессе её развития.

#### 5.4. Марганец и ванадий

Соотношение между максимальным порядком генерируемых гармоник и ионизационным потенциалом  $I_i$  частиц, участвующих в ГВГ, анализировалось в работах [35, 39, 41]. В большинстве случаев генерация гармоник в плазме осуществлялась при взаимодействии ультракоротких импульсов с однократно заряженными ионами. В этом случае в качестве параметра, от которого зависит  $H_c$ , следует рассматривать второй ионизационный потенциал атомов мишени. Эмпирическое соотношение  $H_c \approx 4I_i - 32,1$  нашло подтверждение при многочисленных измерениях параметра  $H_c$  разными группами [35, 39, 41] с использованием титан-сапфировых лазеров, генерирующих импульсы с различной длительностью (35, 48 и 130 фс) (рис. 13). Из этого соотношения следует, что в случае, когда однократно заряженные ионы играют решающую роль в ГВГ, наиболее коротковолновые гармоники будут генерироваться в плазменных факелах, создаваемых на поверхности мишеней, обладающих наибольшими вторыми ионизационными потенциалами. Появление избыточной концентрации электронов вследствие последующей ионизации однократно заряженных ионов при возрастании интенсивности лазерного излучения приводит к насыщению зависимости  $H_c(I_{\text{пр}})$ , что ограничивает дальнейшее увеличение энергии генерируемых фотонов. В большинстве случаев нет необходимости в привлечении двукратно заряженных ионов для объяснения природы генерируемых гармоник в лазерной плазме, поскольку их появлению сопутствует возрастание концентрации свободных электронов, вызывающее фазовую расстройку процесса ГВГ и самодефокусировку лазерного импульса.

Однако недавние исследования ГВГ в плазме марганца выявили новые интересные особенности этого процесса. Как и в предыдущих исследованиях, в этой среде генерировались гармоники вплоть до  $H_c = 29$ , что соответствовало эмпирическому соотношению при величине второго ионизационного потенциала Mn  $I_{2i} = 15,64$  эВ (рис. 13). Однако с последующим изменением плазменных характеристик (когда поверхность марганцевой мишени возбуждалась субнаносекундными им-

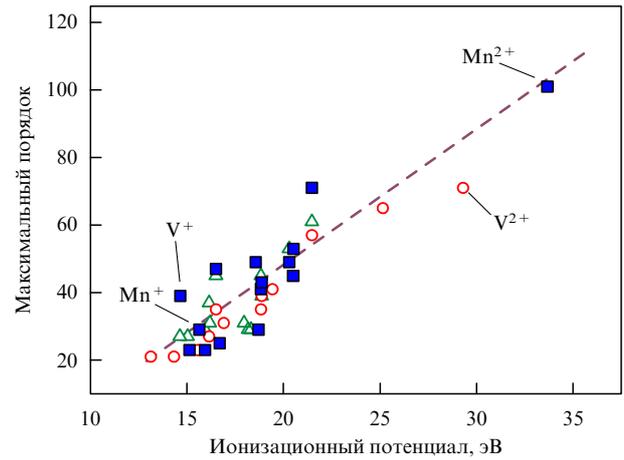


Рис. 13. Зависимость между максимальным порядком  $H_c$  генерируемых гармоник и ионизационными потенциалами однократно и двукратно заряженных ионов, участвующих в процессе ГВГ. Штриховая линия соответствует соотношению максимального порядка гармоник  $H_c \approx 4I_i - 32,1$ . Квадратами представлены результаты, полученные в Национальном институте научных исследований (Канада) [41], кружками — результаты, полученные в Институте физики твердого тела (Япония) [35], и треугольниками — результаты Центра передовых технологий (Индия) [39].

пульсами с более высокой интенсивностью, чем та, которая соответствовала "оптимальной" плазме для большинства мишеней ( $I_{\text{пр}} \approx 1 \times 10^{10}$  Вт см $^{-2}$ )), происходило значительное возрастание числа генерируемых гармоник. В экспериментах наблюдались гармоники с порядком вплоть до 101-го (рис. 14). При этом вместо платообразного распределения гармоник, имеющих порядок между 15-м и 29-м (наблюдавшегося при умеренных интенсивностях возбуждения мишени), появлялось другое плато (для гармоник порядка от 33-го по 93-й) с последующим резким снижением интенсивности высших гармоник вплоть до гармоник 101-го порядка ( $\lambda = 7,9$  нм) [41]. Новое значение  $H_c$  удовлетворительно совпадало с оценками, вытекающими из эмпирического соотношения  $H_c(I_i)$  с учётом вовлечения в процесс ГВГ

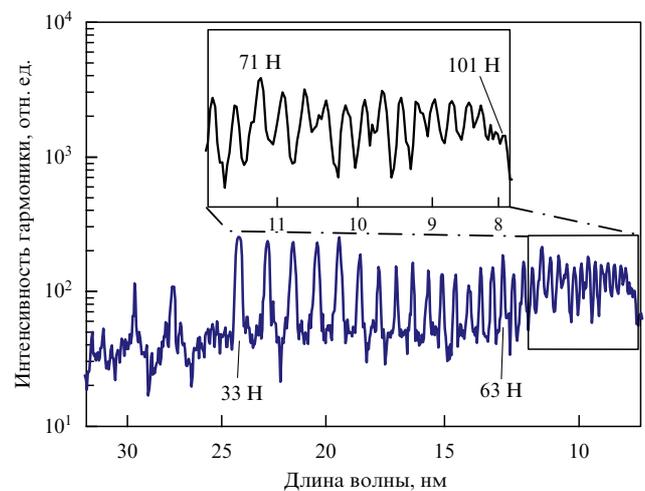


Рис. 14. Спектр гармоник, полученных в марганцевой плазме ( $I_{\text{пр}} = 3 \times 10^{10}$  Вт см $^{-2}$ ,  $I_{\text{р}} = 2 \times 10^{15}$  Вт см $^{-2}$ ). На вставке показана область спектра между 67-й и 101-й гармониками.

**Таблица 2.** Расчётные характеристики плазмы марганца и золота

| Интенсивность предимпульса, $10^{10}$ Вт см <sup>-2</sup> | Мишень | 1,04 | 2    | 3    | 5    |
|---|--------|------|------|------|------|
| Концентрация электронов, $10^{17}$ см <sup>-3</sup>       | Mn     | 1,3  | 3,25 | 3,77 | 6,13 |
|   | Au     | 7,32 | 14,2 | 18,5 | 25,2 |
| Концентрация ионов, $10^{17}$ см <sup>-3</sup>            | Mn     | 1,3  | 3,25 | 3,77 | 4,50 |
|   | Au     | 4,7  | 6,03 | 6,8  | 7,52 |
| Степень ионизации   | Mn     | 0,62 | 1,0  | 1,0  | 1,36 |
|   | Au     | 1,56 | 2,35 | 2,72 | 3,35 |

двукратно заряженных ионов и третьего ионизационного потенциала марганца  $I_{3i} = 33,67$  эВ (см. рис. 13). Отметим, что при исследовании плазмы, генерируемой на поверхности других мишеней, возрастание интенсивности предимпульса ( $I_{pp} > 3 \times 10^{10}$  Вт см<sup>-2</sup>) привело к значительному ухудшению картины генерируемых гармоник, при котором интенсивные спектральные линии свечения плазмы в ДУФ-диапазоне не позволяли осуществлять регистрацию гармоник с длиной волны, меньшей определённого значения.

Как и в случае серебряной плазмы, для анализа причин, приводящих к различной картине ГВГ в случае разных мишеней, были проведены расчёты с помощью кода HYADES для двух мишеней (Mn и Au). Исследовалась динамика развития плазмы на поверхности этих мишеней, что позволило оценить концентрацию электронов и ионов, а также ионизационное состояние плазмы на расстоянии 300 мкм от поверхности мишеней через 100 нс после возбуждения субнаносекундным импульсом (табл. 2). Из приведённых данных следует, что уже при  $I_{pp} = 1 \times 10^{10}$  Вт см<sup>-2</sup> наблюдалось существенное различие в ионизационном состоянии плазмы этих двух мишеней, что и приводило к различию нелинейно-оптических откликов Mn- и Au-плазменных факелов. При этой интенсивности ионизационное состояние плазмы золота превышало единицу, что приводило к появлению дополнительных свободных электронов вследствие ионизации однократно заряженных ионов. Отношение между концентрациями электронов и ионов в плазме Au продолжало возрастать с увеличением интенсивности греющего предимпульса на поверхности мишеней, и при  $I_{pp} = 5 \times 10^{10}$  Вт см<sup>-2</sup> оно становилось больше 3. Возрастание концентрации свободных электронов в этом случае препятствовало генерации гармоник и увеличению  $H_c$ .

Качественно иная картина возникала при расчётах характеристик плазмы марганца. Появление двукратно заряженных ионов согласно результатам этих расчётов должно происходить начиная лишь с  $I_{pp} > 3 \times 10^{10}$  Вт см<sup>-2</sup>, ограничивая возрастание концентрации свободных электронов при меньших интенсивностях. Это обстоятельство приводило к меньшему проявлению самодефокусировки фемтосекундных импульсов и фазовой расстройки (по сравнению с таковыми в случае плазмы золота), что, в свою очередь, вызывало возрастание  $H_c$ .

Вывод, вытекающий из вышеприведённого анализа, заключается в необходимости поиска оптимальных условий ГВГ в плазменных образованиях на основе расчётов плазменных характеристик, а также анализа состояния плазмы с применением спектральной мето-

дики с высоким временным разрешением, описанной в разделе 5.3. Данный подход дает возможность обнаружить плазменные образования, которые могут обеспечить дальнейшее продвижение в коротковолновую область спектра. Подтверждением правильности подобного подхода явилось недавнее исследование ГВГ в плазме ванадия. Максимальное значение генерируемого порядка гармоник в этой плазме согласно оценкам, вытекающим из эмпирического соотношения (при значении ионизационного потенциала  $I_{2i} = 14,65$  эВ), ожидалось в диапазоне тридцатых порядков с учётом участия однократно заряженных ионов в процессе ГВГ. В эксперименте, подтвердившем результаты этих расчётов, наблюдалась генерация 39-й гармоники 800-нанометрового излучения (см. рис. 13). В то же время недавние исследования ГВГ в плазме ванадия продемонстрировали возможность значительного увеличения  $H_c$  при дальнейшей оптимизации плазменного факела и интенсивности преобразуемого излучения. При этом получены гармоники вплоть до 71-го порядка [40]. Следуя подходу, описанному в этом разделе, и учитывая близость плазменных характеристик V и Mn (выявленную в результате расчётов с использованием кода HYADES), можно предположить, что ГВГ в случае оптимизированной ванадиевой плазмы происходила с участием двукратно заряженных ионов ( $I_{3i} = 29,31$  эВ). В этом случае, принимая во внимание эмпирическое соотношение, можно ожидать генерации гармоник с порядком вплоть до 79-го (см. рис. 13), что близко к экспериментальному значению (71-я гармоника). Аналогичный подход к поиску сред, в которых гармоники реализуются с участием двукратно заряженных ионов, позволил получить значительное увеличение порядкового номера гармоник в случае ГВГ в плазме титана [109].

## 6. Генерация высших гармоник в лазерной плазме, создаваемой импульсами с различной длительностью

Результаты исследований, представленные в разделах 2–5, показали определяющую роль характеристик плазмы в достижении максимальной эффективности преобразования когерентного излучения в ДУФ-диапазоне, а также в получении максимальных порядков гармоник. Для этих целей использовались различные методы, такие как: а) анализ ионизационного состояния и концентрации электронов и ионов на основе расчётов с помощью кода HYADES [99]; б) исследование интегральных спектров лазерной плазмы [35, 39], а также спектров плазмы с использованием высокоскоростной методики, позволяющей проанализировать динамику лазерного пламени с высоким временным разрешением [67, 74]; в) исследование расходимости фемтосекундного пучка, прошедшего через лазерную плазму [110]; г) анализ нелинейно-оптических параметров плазмы с использованием методики Z-сканирования [110] и т.д.

Между тем при создании плазмы не использовалась в качестве варьируемого параметра такая важная характеристика, как длительность греющего предимпульса. Абсолютное большинство исследований гармоник, генерируемых в плазме, проводилось с помощью импульсов длительностью в несколько сотен пикосекунд. Вывод, который был сделан при этом, заключался в определении "оптимальной" интенсивности предимпульса на поверхности мишени ( $\sim (1-4) \times 10^{10}$  Вт см<sup>-2</sup> в зависи-

мости от физических свойств материалов [32, 35, 99]), при которой достигались максимальная величина  $H_c$ , а также предельно высокая эффективность ГВГ в области плато. В связи с этим представлялось важным проведение сравнительного анализа ГВГ в плазме, создаваемой импульсами с различной длительностью, поскольку подобные исследования позволили бы определить, какой параметр греющего излучения (энергия импульса или интенсивность излучения на поверхности мишени) играет основную роль в формировании оптимальной плазмы.

Другой интересный момент связан с влиянием атомного числа материала мишени ( $Z$ ) на эффективность ГВГ при различных задержках между двумя импульсами, участвующими в этом процессе. Здесь важно определить, влияют ли характеристики мишени на величину оптимальной задержки между предимпульсом и фемтосекундным импульсом. Из общих соображений можно ожидать различной динамики ГВГ в случае "лёгких" и "тяжёлых" атомов мишени (т.е. для материалов с соответственно малым и большим значениями  $Z$ ), поскольку нагрев, плавление, испарение, отлет от поверхности мишени, а также последующее охлаждение и рекомбинация частиц мишени зависят от атомного веса и плотности мишени. Различие в скоростях отлёта и рекомбинационных процессов в случае лёгких и тяжёлых атомов и ионов лазерной плазмы может значительно влиять на концентрационные характеристики плазмы при варьируемых задержках и на разных расстояниях от мишени. В этом случае оптимизация задержки между предимпульсом и преобразуемым импульсом будет способствовать достижению лучших характеристик преобразованного излучения в случае лёгких либо тяжёлых мишеней.

В этом разделе анализируются результаты исследования ГВГ в плазме, полученной на поверхности мишени с большим, средним и малым значениями  $Z$  при воздействии на них излучения с длительностью импульсов, варьируемой в пределах пяти порядков (от 160 фс до 20 пс). Эти исследования показали, что формирование плазмы играет решающую роль для оптимизации процесса ГВГ и характеристики оптимальной плазмы в значительной степени определяются энергией импульса, в то время как интенсивность излучения на поверхности мишени в гораздо меньшей степени влияет на динамику генерации гармоник. В ходе этих экспериментов выявлено различие в протекании процесса ГВГ в плазме, создаваемой на поверхности мишеней, состоящих из лёгких либо тяжёлых атомов, когда задержка между импульсами становится определяющим фактором в достижении эффективной генерации гармоник [111].

Схема описываемых ниже экспериментов была аналогична схеме предыдущих. На первых этапах использовался предимпульс длительностью 210 пс. Длительность этого импульса варьировалась с помощью его сжатия в дополнительном компрессоре. В частности, в исследованиях ГВГ в этом случае использовались импульсы длительностью 160 фс и 1,5 пс. Энергия этих импульсов поддерживалась примерно на одном уровне (10 мДж). С помощью сферической (либо цилиндрической) линзы импульс фокусировался на мишень. В качестве мишеней использовались материалы с большим (серебро, барий), средним (цинк, никель, марганец) и малым (графит, бор, литий) значениями атомного числа. Интенсивность 210-пикосекундных импульсов на поверхности мишеней поддерживалась в интервале  $I_{pp} = (1-5) \times 10^{10}$  Вт см<sup>-2</sup>. В случае 160-фемтосекундных и 1,5-пи-

косекундных импульсов интенсивность излучения на поверхности мишеней была значительно выше, поскольку эти исследования проводились при одной и той же геометрии экспериментов, а энергии предимпульсов с различной длительностью являлись примерно одинаковыми.

После соответствующей задержки через созданную плазму проходило сфокусированное излучение основного импульса (115 фс, 20 мДж, 795 нм). Поскольку максимально возможное значение интенсивности этого импульса в фокальной плоскости ( $6 \times 10^{16}$  Вт см<sup>-2</sup>) значительно превышало пороги туннельной ионизации однократно и двукратно заряженных ионов плазмы, положение области фокусировки (за мишенью либо перед мишенью) подбиралось таким образом, чтобы достичь максимального значения интенсивности гармоник. При этом положении значение интенсивности основного импульса в плазменном факеле находилось в пределах  $7 \times 10^{14} - 3 \times 10^{15}$  Вт см<sup>-2</sup>. Эксперименты проводились в условиях "мягкой" фокусировки ( $b > L_p$ ).

На рисунке 15 приведены результаты исследования зависимости  $H_c$  от длительности импульсов в случае тяжёлой (Ag ( $Z = 47$ )), промежуточной (Zn ( $Z = 30$ )) и лёгких (B ( $Z = 5$ ) и Li ( $Z = 3$ )) мишеней. Результаты этих экспериментов указывают на существенное различие в характеристиках гармоник для этих трёх групп мишеней. В случае тяжёлых мишеней (и для большинства мишеней со средними значениями  $Z$ ) не наблюдалось изменения максимального порядка генерируемой гармоники при использовании 160-фемтосекундных, 1,5- и 210-пикосекундных предимпульсов. В ряде случаев в качестве греющего предимпульса использовалось излучение второй гармоники лазера на иттрий-алюминиевом гранате длительностью 20 нс. Применение таких импульсов также не приводило к существенным изменениям (в случае тяжёлых мишеней) величины  $H_c$ .

Однако в случае лёгких мишеней наблюдалась значительная зависимость  $H_c$  от длительности греющего импульса. Но и в этих условиях не было обнаружено каких-либо принципиальных ограничивающих факторов, которые приводили бы к кардинальному нарушению условий ГВГ при существенной разнице интенсивностей греющего излучения, достигавшей пяти порядков. Единственным исключением являлась плазма лития, в которой высшие гармоники генерировались лишь при использовании предимпульсов большой длительности (210 пс) и коротких задержек. В этом случае основное различие в характеристиках процесса ГВГ было связано с величиной задержки между греющим и преобразуемым импульсами. Эти исследования продемонстрировали, что энергия предимпульса играет решающую роль в создании оптимальных условий для ГВГ в плазме.

Интегральные спектры лазерной плазмы в видимой и ультрафиолетовой областях спектра показали, что, несмотря на различие в длительностях предимпульсов, генерирующих плазму на поверхности мишеней, общая картина распределения спектральных линий оставалась примерно одинаковой. Спектры свечения Mn- и Ag-плазмы в видимой и ближней ультрафиолетовой областях спектра при возбуждении 160-фемтосекундными, 1,5- и 210-пикосекундными импульсами показали, что длительность импульса греющего излучения не влияет существенно на динамику свечения лазерного факела и основную роль в возбуждении плазмы играет энергия

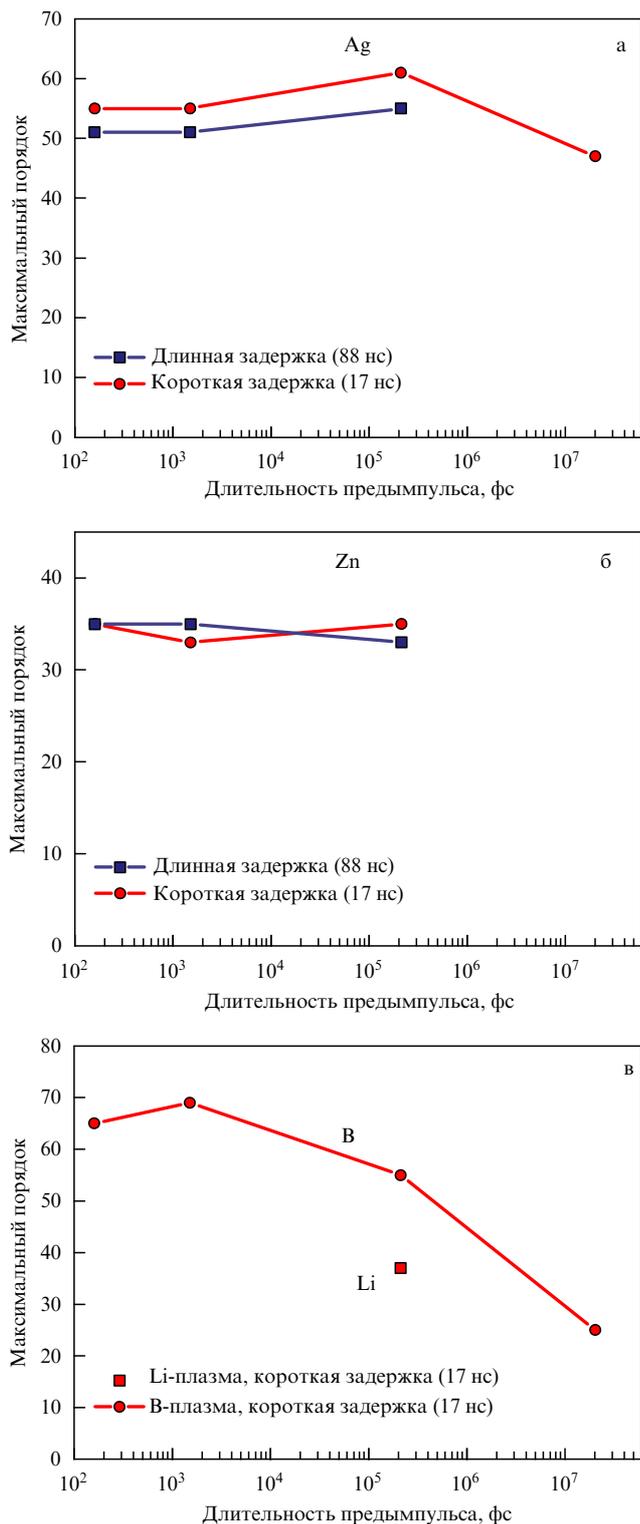


Рис. 15. Максимальные порядки генерируемых гармоник, полученные в плазме (а) тяжёлой (Ag), (б) промежуточной (Zn) и (в) лёгких (Li и B) мишеней при различных задержках и длительности предимпульса.

импульса в условиях нелинейной среды, близкой к оптимальной для ГВГ. То же самое можно сказать и об эмиссии плазмы в ДУФ-диапазоне, что указывает на примерно одинаковые характеристики лазерного пламени при существенно различающихся интенсивностях предимпульса на поверхности мишени при её возбуждении излучением с различной длительностью импульса.

Эффективность ГВГ в значительной степени зависела от времени задержки между предимпульсом и основным импульсом. При очень маленьких задержках (5 нс и меньше) генерации гармоник не наблюдалось вследствие недостаточной концентрации нелинейной среды в зоне взаимодействия с фемтосекундным импульсом. С последующим возрастанием времени задержки проявлялось существенное различие между генерационными свойствами лёгких и тяжёлых мишеней. При 17-наносекундной задержке ГВГ наблюдалась при использовании всех исследовавшихся мишеней, в то время как при 88-наносекундной задержке гармоники генерировались лишь в плазме мишеней с большим и средним значениями  $Z$  (см. рис. 15). При этой большой задержке гармоники не генерировались в плазме лёгких мишеней (за исключением графита). Отметим примерное равенство значений  $H_c$  для мишеней с большими и средними  $Z$  при малых и больших задержках между импульсами.

Подобное различие в генерационных свойствах может быть связано с динамическими характеристиками плазмы в случае лёгких и тяжёлых мишеней. Лёгкие частицы обладают более высокими скоростями отлёта от мишеней, что может приводить к снижению концентрации лазерной плазмы в зоне взаимодействия с преобразуемым импульсом через несколько десятков наносекунд после начала плазмообразования. В то же время более тяжёлые частицы продолжают оставаться вблизи мишени (где происходит процесс преобразования частоты лазерного излучения) в течение более длительного времени. В случае тяжёлых мишеней влияние задержки между предимпульсом и основным импульсом на интенсивность генерируемых гармоник оказалось менее существенным, чем для лёгких мишеней. Таким образом, при поиске возможных мишеней следует принимать во внимание (наряду со спектральными характеристиками) их физические параметры.

В разделе 5 было отмечено, что второй ионизационный потенциал мишеней играет важную роль в определении максимального порядка генерируемой гармоники. Исследования, результаты которых приведены в этом разделе, выявили дополнительные параметры мишеней и предимпульса, а также величины задержек между импульсами, которые следует принимать во внимание при последующем определении материалов, в плазме которых возможна генерация гармоник более высоких порядков с наивысшей эффективностью преобразования.

Из эмпирического соотношения, связывающего максимальный порядок генерируемой гармоники с ионизационным потенциалом частиц, участвующих в процессе преобразования частоты лазерного излучения ( $H_c \approx 4I_i - 32,1$  [41]), следует, что максимальное значение  $H_c$  будет наблюдаться в среде с наивысшим ионизационным потенциалом этих частиц. В большинстве случаев, когда в качестве основного компонента, участвующего в ГВГ, выступали однократно заряженные ионы, наивысшие значения  $H_c$  наблюдались в плазменных факелах материалов, обладающих наибольшим значением второго ионизационного потенциала (в частности, в плазме серебра и бора). В то же время, как было отмечено в разделе 5.4, в ряде случаев наблюдалось превышение параметром  $H_c$  ожидаемого значения, следующего из вышеприведённого соотношения, что может быть объяснено участием в процессе преобразования двукратно заряженных ионов. Наблюдавшиеся при этом высшие порядки гармоник и третьи ионизационные потенциалы

этих материалов (ванадия и марганца) удовлетворительно соответствовали друг другу согласно приведённому соотношению. Из этого следует, что поиск плазменных сред, в которых возможна реализация условий генерации предельно высоких гармоник, должен идти по пути выбора материалов с наибольшими значениями третьего ионизационного потенциала.

Мишени, использовавшиеся для исследований, описанных в данном разделе, выбирались именно по такому принципу. Однако в этих экспериментах не удалось достичь значений  $H_c$ , превышающих ранее сообщавшиеся максимальные величины порядка генерируемых гармоник (71-й для ванадиевой плазмы и 101-й для марганцевой). Причиной этого могут являться специфические соотношения фазовой синхронизации в различных плазменных средах, которые могут приводить к эффективной ГВГ с привлечением двукратно заряженных ионов лишь в ограниченном ряде материалов, в то время как в других плазменных факелах с большим значением третьего ионизационного потенциала влияние избыточной концентрации свободных электронов может в значительной степени ухудшить синхронный процесс преобразования частоты лазерного излучения. Лазерная плазма является очень сложной средой с точки зрения её нелинейно-оптических свойств. Поведение такой плазменной системы в значительной степени подвержено изменениям, связанным с вариациями ионизационного состояния, концентрации ионов и электронов, ионизационных потенциалов, а также ряда термодинамических параметров. Процессы, определяющие эффективность ГВГ в подобной среде, достаточно сложны и включают в себя ряд дополнительных факторов, отсутствующих в случае ГВГ в газах. В частности, плазменная среда уже изначально состоит из нейтральных частиц, ионов и свободных электронов, и концентрация этих элементов плазмы в значительной степени зависит от характеристик предимпульса и мишени. Как отмечалось выше, избыточная концентрация свободных электронов (в частности, генерируемых при последующей ионизации однократно заряженных ионов) существенно ухудшает условия фазовой синхронизации волн преобразуемого излучения и гармоник.

## 7. Анализ характеристик лазерной плазмы для оптимизации генерации высших гармоник

Ионная среда модифицирует временные характеристики фемтосекундных лазерных импульсов вследствие фазовой самомодуляции. Кроме того, спектральная структура высших гармоник критически зависит от частотной модуляции (чирпа) преобразуемого излучения. В литературе имеются сообщения об исследованиях динамики распространения чирпированных импульсов через ионизированные газоструйные источники и приводятся данные о пространственных, спектральных и временных параметрах лазерного излучения, прошедшего через подобную среду, а также параметры гармоник (см. [112] и приведённые там ссылки). Важную роль среди процессов, влияющих на параметры лазерного излучения, играет самодефокусировка. Поскольку самодефокусировка представляется одним из основных ограничивающих механизмов для процессов ГВГ (как в газах, так и в лазерной плазме) важно было проанализировать этот процесс более детально в условиях, близких к "оптимальной" плазме, при которых ГВГ реализуется наиболее

эффективно, а также определить экспериментальные условия, при которых влияние самодефокусировки оказывается менее значительным.

В обсуждаемых ниже экспериментах пространственное распределение преобразуемого излучения ( $t = 150$  фс), прошедшего через лазерный факел при различных значениях плотности плазмы (от  $5 \times 10^{16}$  см<sup>-3</sup> до  $2 \times 10^{17}$  см<sup>-3</sup>) и интенсивности лазерного излучения, анализировалось в дальнем поле с использованием ПЗС-камеры. Нелинейно-оптические характеристики индиевой и молибденовой плазмы исследовались с помощью Z-сканирования.

Пространственное распределение излучения, прошедшего через плазму, оставалось неизменным при малых интенсивностях фемтосекундных импульсов даже при превышении порога ионизации атомов мишеней. Это наблюдение показало, что концентрация свободных носителей, генерируемых в процессе образования плазмы, а также при последующей ионизации нейтральных частиц плазмы фемтосекундным импульсом, оказывается недостаточной для самодефокусировки лазерного пучка. Иная картина пространственного распределения лазерного излучения, прошедшего через плазму, наблюдалась при превышении порогов туннельной ионизации однократно и двукратно заряженных ионов. Расчёты показывают, что пороги туннельной ионизации Мо I, Мо II и Мо III составляют соответственно  $1,2 \times 10^{13}$ ,  $7 \times 10^{13}$  и  $2,4 \times 10^{14}$  Вт см<sup>-2</sup>. Концентрация свободных электронов, появляющихся в фокальной области за время значительно меньшее времени прохождения фемтосекундного импульса, при  $I_{fp} \geq 3 \times 10^{14}$  Вт см<sup>-2</sup> оказывалась достаточной для возникновения процесса самодефокусировки лазерного пучка. В этом случае в профиле прошедшего пучка наблюдалась кольцевая структура, указывающая на вариации показателя преломления среды вдоль оси прохождения излучения.

Подобным образом было проведено Z-сканирование различных плазменных факелов (рис. 16). При малых интенсивностях лазерных импульсов нормализованное пропускание лазерного излучения, прошедшего через плазму и ограничивающую апертуру в дальнем поле, оставалось неизменным. Однако с возрастанием интенсивности пучка проявлялась специфическая особенность в нормализованном пропускании, представляющая собой небольшой пик с последующим значительным снижением пропускания через диафрагму, которая связана с проявлением самодефокусировки и нелинейного поглощения, обусловленного туннельной ионизацией нейтральных частиц и ионов. Схема с ограничивающей диафрагмой позволяла определить величину и знак нелинейного показателя преломления  $\gamma$ , а также величину коэффициента нелинейного поглощения  $\beta$  плазменных факелов. В частности, для индиевой плазмы  $\gamma$  и  $\beta$  составили соответственно  $-2 \times 10^{-18}$  см<sup>2</sup> Вт<sup>-1</sup> и  $5 \times 10^{-13}$  см Вт<sup>-1</sup> [110]. Параметр  $\beta$  в значительной степени зависел от интенсивности излучения в области плазменного факела, чего следовало ожидать, принимая во внимание многофотонную природу процесса нелинейного поглощения. В частности, в плазме индия ( $I_i = 5,8$  эВ) доминирующим процессом является четырёхфотонное поглощение ( $E_{ph} = 1,56$  эВ), тогда как в плазме Мо ( $I_i = 7,1$  эВ) — пятифотонное поглощение. Рассчитанное значение коэффициента четырёхфотонного поглощения индиевой плазмы составило  $5 \times 10^{-42}$  см<sup>5</sup> Вт<sup>-3</sup>.

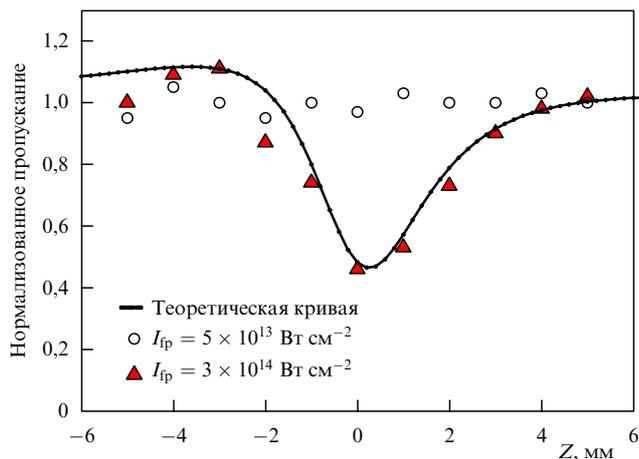


Рис. 16. Z-сканирование индиевой плазмы при малой (кружки) и большой (треугольники) интенсивности фемтосекундного импульса. Результат теоретического расчёта представлен сплошной кривой.

Исследования формы лазерного пучка, проходящего через плазму при различных значениях интенсивности излучения и концентрации плазменного факела, позволили определить роль свободных электронов, генерируемых в ходе ионизации нейтральных частиц и ионов, в изменении пространственных и соответственно фазовых характеристик лазерного импульса в фокальной плоскости. Самодефокусировка и соответствующие вариации фазовых характеристик лазерного импульса не позволяют сохранять неизменными фазовые соотношения между волнами гармоник и преобразуемого излучения на всём пути прохождения импульса через нелинейную среду. При этом также уменьшается интенсивность лазерного излучения, что обусловлено возрастанием расходимости на оси пучка в зоне взаимодействия. Эти процессы препятствуют достижению благоприятных условий для эффективной ГВГ при прохождении лазерного излучения через плазму, что приводит к снижению эффективности преобразования и уменьшению максимального значения порядков генерируемых гармоник. Исследования плазмы методом Z-сканирования подтвердили ограничивающую роль таких процессов, как самодефокусировка и нелинейное поглощение при преобразовании длины волны лазерных импульсов.

Оптимизация ГВГ в плазме связана с выполнением ряда условий. Поскольку время развития плазмы составляет от нескольких наносекунд до нескольких сотен наносекунд, следует синхронизировать прохождение лазерного импульса через "оптимально подготовленную" плазму. Описанные выше исследования выявили, что основными параметрами, требующими оптимизации для достижения этих условий, являются плотность плазмы, степень её возбуждения и ионизации, а также линейные размеры области плазмы. Присутствие возбуждённых компонентов в плазме в значительной степени может увеличить нелинейно-оптический отклик плазменного факела. Другим важным параметром является величина задержки между греющим субнаносекундным предимпульсом и преобразуемым фемтосекундным импульсом. Здесь также следует отметить важную роль геометрии эксперимента, в зависимости от которой можно получить как точечную плазму, так и протяжённый факел вдоль оси распространения преоб-

разуемого импульса. Увеличение линейных размеров области плазмы будет влиять на ГВГ вследствие конкуренции между возрастанием эффективности этого процесса, обусловленным увеличением длины нелинейной среды, и перепоглощением генерируемых гармоник, наряду с деструктивной интерференцией, обусловленной превышением размером среды длины когерентного взаимодействия гармоник в различных областях спектра. Подобные особенности отмечались при исследовании ГВГ в плазме индия и бора [32, 33], а также в экспериментах с графитом [113], магнием [114], алюминием [115] и молибденом [116].

## 8. Преобразование частоты лазерного излучения в дальней ультрафиолетовой области с использованием плазмы, содержащей наночастицы

Исследования наночастиц продемонстрировали возможность увеличения эффективности генерируемых гармоник при использовании кластерных сред. Отметим, что большинство ранее проведённых работ по ГВГ с участием наночастиц [63, 64, 117–129] ограничивалось анализом довольно экзотических кластеров (Ag, Xe), которые формировались в процессе быстрого охлаждения в результате адиабатического расширения газов, вытекающих из струйных источников под большим давлением. Исключением здесь является работа [130], в которой анализируется ГВГ в существенно более крупных образованиях (аэрозолях).

Физическая природа этого процесса в газовых кластерах в основном описывается стандартной теорией ГВГ в атомарных средах с небольшими модификациями, обусловленными тем, что атомы в кластерах находятся на близком расстоянии друг от друга. Наблюдавшиеся при этом высшие гармоники характеризовались некоторым увеличением эффективности преобразования по сравнению с таковой в атомных средах. При этом очевидным становилась определённая трудность анализа пространственных характеристик подобных кластеров, а также установления процентной доли наночастиц в общем объёме, где происходил процесс ГВГ. В связи с этим естественным являлось предложение использовать коммерчески производимые наночастицы, параметры которых можно определить с высокой точностью. Подобные структуры можно использовать в качестве мишеней для создания плазменных факелов, содержащих наночастицы.

В этом разделе обсуждается использование наночастиц серебра для увеличения нелинейно-оптического отклика высшего порядка (в частности, ГВГ) в сильных световых полях. Параметры наночастиц перед экспериментами по ГВГ анализировались с помощью сканирующего электронного микроскопа. Эти измерения показали, что диаметр наночастиц варьировался в диапазоне 80–160 нм при среднем его значении 110 нм. Наночастицы приклеивались к различным поверхностям, и перед экспериментом проводилась проверка с целью удостовериться, что генерация гармоник от субстанций, находящихся в контакте с этими кластерами (капли клея, клейкая лента, поверхность стекла), является малоэффективной по сравнению с ГВГ в плазме, содержащей наночастицы серебра. Для сравнения эффективности преобразования частоты лазерного излучения в

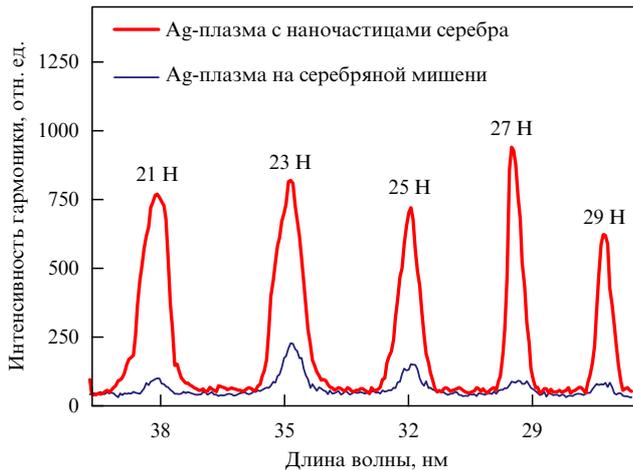


Рис. 17. Распределение гармоник в средней части плато при малых задержках между импульсами в случае плазмы, созданной на поверхности серебряной пластины (тонкая кривая) и плазмы, содержащей наночастицы серебра (жирная кривая).

случае атомов и наночастиц, состоящих из тех же атомов, эксперименты проводились с использованием как наночастиц серебра, так и серебряной пластины. На первом этапе ГВГ оптимизировалась в плазме, создаваемой на серебряной пластине, с последующим перемещением мишеней с целью исследования генерации гармоник в плазме, содержащей наночастицы серебра, при тех же экспериментальных условиях.

На рисунке 17 приведено распределение интенсивностей генерируемых гармоник с порядками в диапазоне между 21-м и 29-м для случаев плазменных факелов, содержащих атомы и наночастицы серебра. Эти исследования продемонстрировали шестикратное возрастание эффективности ГВГ в плазме, содержащей наночастицы, по сравнению с эффективностью ГВГ в плазме, содержащей атомы того же вещества при идентичных экспериментальных условиях. Эффективность преобразования в плазме, содержащей наночастицы, оценивалась на основе ранее проведенных измерений эффективности преобразования в плазме, создаваемой на поверхности серебряной пластины ( $8 \times 10^{-6}$ ). Исходя из шестикратного превышения энергии гармоник в случае среды, содержащей наночастицы, эффективность процесса ГВГ была оценена величиной  $4 \times 10^{-5}$  [54].

Сравнение параметра  $H_c$  для двух сред с атомными и наноструктурированными частицами показало небольшое увеличение этого параметра при использовании наночастиц. В последнем случае получены порядки гармоник вплоть до 67-го ( $E_{ph} = 103$  эВ), в то время как в случае серебряной пластины, использовавшейся в качестве мишени,  $H_c$  равнялось 61 ( $E_{ph} = 94$  эВ). Подобное незначительное увеличение максимального порядка генерируемых гармоник наблюдалось и ранее в случае сравнения ГВГ в кластерах Ag и в атомарном аргоне [63]. В работе [63] значение  $H_c$  в случае кластерсодержащей среды соответствовало 33-й гармонике, в то время как в мономерной среде (атомы аргона) — 29-й гармонике. Разница в значениях  $H_c$  объяснялась возрастанием энергии сродства электронов в случае кластеров. Большая величина этого параметра позволяет кластеру противостоять ионизации в лазерном поле даже при значительных интенсивностях (в отличие от атомных систем), что, в свою очередь, приводит к возрастанию  $H_c$ .

В экспериментах с серебряными мишенями генерация гармоник в случае Ag-пластины носила стабильный характер и в течение длительного периода не требовала смены положения мишени при частоте следования импульсов 10 Гц. Другая картина наблюдалась в случае мишеней, содержащих наночастицы серебра. Вследствие быстрого испарения и незначительного количества этого материала на поверхности подложки, генерация гармоник являлась особенно эффективной при нескольких первых лазерных выстрелах, в последующем эффективность преобразования спадала, что было обусловлено значительным уменьшением активного материала (наночастиц серебра) в зоне прохождения фемтосекундного импульса. На рисунке 18а приведена динамика спада эффективности ГВГ с каждым последующим лазерным выстрелом в случае, когда мишень в ходе эксперимента не перемещалась. Первый лазерный выстрел сопровождался высокоэффективной ГВГ с типичной структурой платообразного распределения гармоник, начинавшейся с гармоник 17-го порядка. Последующие выстрелы по поверхности мишени с наночастицами и соответствующее преобразование в генерируемой плазме сопровождалось

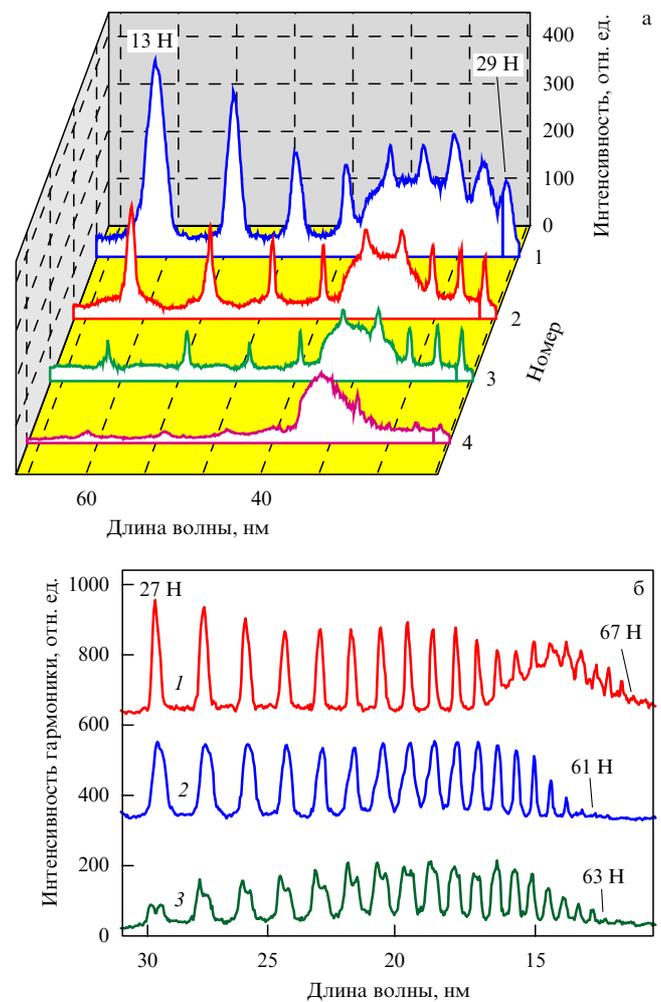


Рис. 18. (а) Динамика вариаций спектра гармоник, полученных в плазме, содержащей наночастицы серебра, с каждым последующим лазерным выстрелом. (б) Спектры высших гармоник, генерируемых в плазме, содержащей 110-нанометровые наночастицы серебра (1), моночастицы серебра (2) и блоки (100–2000 нм) серебряных частиц (3).

лись резким снижением эффективности ГВГ, вплоть до полного исчезновения гармоник из наблюдаемого спектра.

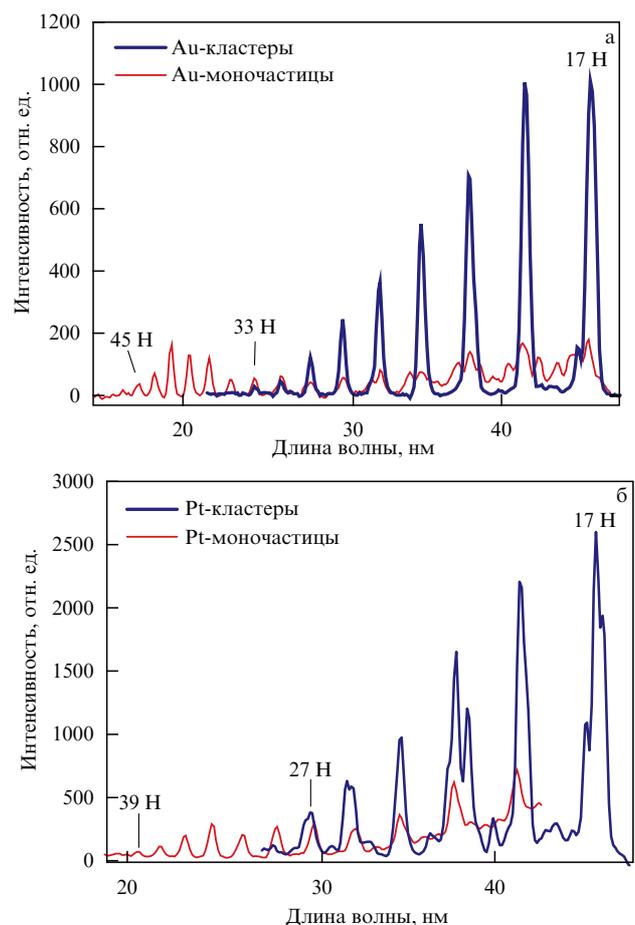
Описанное наблюдение позволяет представить примерную картину процесса абляции мишени с наночастицами. Материал, непосредственно окружающий наночастицы серебра, представлял собой полимер (эпоксидная смола, клей), который имеет значительно меньшую энергию плавления и испарения, чем материал сплошной (объёмной) металлической мишени. Вследствие этого полимер начинает испаряться при значительно меньших энергиях предимпульса, захватывая при этом окружающие наночастицы серебра. Многократное облучение подобной мишени приводило к изменению её параметров, истощению содержания наночастиц, соответствующему уменьшению их концентрации в факеле и снижению эффективности преобразования в гармоники при последующих импульсах. Вследствие такого резкого изменения условий генерации гармоник в среде с истощающейся концентрацией активных частиц определение зависимости эффективности ГВГ от параметров предимпульса и основного импульса было значительно затруднено. Несмотря на это, оценочные измерения зависимости энергии гармоник от интенсивности основного импульса в плазме, содержащей наночастицы серебра, показали насыщение этого процесса при сравнительно умеренных интенсивностях фемтосекундного импульса ( $I_{\text{пр}} \sim 8 \times 10^{14}$  Вт см<sup>-2</sup>).

Для анализа влияния размерных характеристик наночастиц на ГВГ были проведены сравнительные эксперименты с плазмой, содержащей наноблоки серебра размером от 100 до 2000 нм. Плазма с подобными структурами генерировалась на поверхности мишени, содержащей коллоидное серебро с наночастицами различных размеров, что было подтверждено предварительными структурными исследованиями с помощью сканирующего электронного микроскопа. Результаты этих исследований показали, что эффективность преобразования гармоник в подобных нанокластерах (характеризующихся как значительным разбросом в размерах, так и разнообразием геометрической формы) существенно уступала аналогичному параметру в случае вышеописанных экспериментов с меньшими наночастицами (к тому же характеризовавшимися сферической формой). На рисунке 18б показан спектр гармоник, генерируемых в плазме, содержащей 100–2000-нанометровые частицы серебра, в сравнении со спектрами гармоник в случае плазмы, содержащей 110-нанометровые сферические наночастицы и атомы серебра. Эти исследования продемонстрировали негативное влияние увеличения размера кластеров на выходные характеристики преобразованного излучения в случае субмикрометровых размеров этих частиц. Увеличение размера частицы приводит, с одной стороны, к увеличению её поляризуемости, которая определяет эффективность процесса преобразования частоты лазерного излучения [66]. С другой стороны, возрастание размера наночастиц вызывает уменьшение эффективности ГВГ вследствие вовлечения в процесс генерации гармоник только поверхностных атомов, перепоглощения гармоник, рекомбинации электронов из внутренних областей кластера и т.д.

Проведённые в последнее время исследования других наночастиц с целью установления возможности их использования в качестве нелинейной среды для ГВГ продемонстрировали аналогичные свойства, что и в

случае с серебряными наночастицами. Так, использование наночастиц титаната бария (150 нм) и титаната стронция (38 нм) позволило генерировать гармоники с примерно теми же максимальными значениями порядков гармоник, что и в случае твердотельных аналогов этих мишеней [131]. В то же время относительно большие размеры этих наночастиц ограничивали возможность достижения условий, при которых гармоники, генерируемые в плазме, содержащей подобные кластеры, превышали бы по интенсивности гармоники, генерируемые в плазме, содержащей моноатомы и ионы титаната бария и титаната стронция.

Качественно иная картина наблюдалась при использовании наночастиц с характерными размерами порядка 3–6 нм [132]. В этом случае наблюдалось заметное увеличение интенсивности гармоник по сравнению с таковой в плазме, содержащей атомы и ионы тех же материалов (рис. 19). Это увеличение эффективности преобразования может быть объяснено возрастанием эффективного сечения захвата ускорившегося электрона наночастицами. В то же время для подобных наночастиц меньшую роль играют отмеченные выше отрицательные факторы, ограничивающие эффективность ГВГ в кластерах более крупных размеров [133].



**Рис. 19.** (а) Спектры высших гармоник, полученных в плазме, содержащей 6-нанометровые кластеры золота (жирная кривая) и моночастицы золота (тонкая кривая). (б) Спектры высших гармоник, полученных в плазме, содержащей 3-нанометровые кластеры платины (жирная кривая) и моночастицы платины (тонкая кривая).

Эти исследования ГВГ с привлечением кластерных сред продемонстрировали, что использование последних не приводит к заметному увеличению максимального порядка генерируемых гармоник. В то же время в экспериментах наблюдалось значительное возрастание эффективности преобразования в гармоники по сравнению с таковой в случае плазменных факелов, содержащих ионы и атомы тех же материалов.

В работе [63], в которой приводятся результаты сравнения ГВГ в агрегированных кластерах и атомах аргона, показано, что среда из наночастиц, содержащих несколько тысяч атомов инертного газа, является более эффективной с точки зрения генерации гармоник по сравнению со средой из изолированных атомов газа при одинаковой концентрации. В экспериментах с газовыми кластерами получено 5-кратное увеличение эффективности для гармоник, имеющих порядки с 3-го по 9-й. В то же время большие значения усиления, причем в более коротковолновой области (между 17-й и 23-й гармониками), получены в случае ГВГ в плазменных средах, содержащих кластеры металлов (см. рис. 17 и 19). Эти исследования также показали большую зависимость эффективности ГВГ от интенсивностей предимпульса и основного импульса в случае наночастиц по сравнению с таковой в случае монокристаллов.

Важным моментом здесь является вопрос о вариациях геометрических параметров наночастиц в результате лазерной абляции. При этом можно ожидать как агрегации, так и распада кластеров в результате их плавления при взаимодействии мощных лазерных импульсов с поверхностью, содержащей наночастицы. В описанных выше экспериментах присутствие наночастиц серебра с изначальными геометрическими параметрами в плазме было подтверждено в результате анализа пространственных характеристик материала, напылённого в процессе лазерной абляции на расположенную рядом подложку. В то же время желательно было бы провести дополнительные исследования компонентов лазерной плазмы, созданной при абляции поверхности, содержащей наночастицы, с целью более тщательного определения структуры кластеров в пламени к моменту прохождения через него преобразуемого фемтосекундного излучения.

Вопрос о преимуществах и недостатках использования кластеров в качестве нелинейной среды для преобразования в высшие гармоники всё ещё остается открытым. Приведённые в этом разделе экспериментальные данные знакомят читателя с состоянием дел в этой области исследования оптических нелинейностей наночастиц. Более подробный анализ ГВГ в кластерных плазменных средах, полученных в результате абляции мишеней, содержащих наночастицы, приведён в обзоре [134]. Здесь же мы отметим следующее. Несмотря на то, что ряд параметров эксперимента недостаточно хорошо контролируем (в частности, доля фрагментации либо агрегации кластеров при абляции предимпульсом мишеней, содержащих наночастицы), представленные результаты указывают на перспективность дальнейшего изучения процессов ГВГ в кластерных средах. С этой точки зрения интересным объектом могут являться фуллерены, обладающие поверхностным плазмонным резонансом в области энергии 20 эВ, что позволяет надеяться на реализацию усиления нелинейно-оптического отклика в указанной спектральной области (в частности, это касается 13-й и соседних с ней гармоник излучения

титан-сапфирового лазера). Предварительные результаты показывают, что подобные предположения могут быть реализованы при определённых условиях возбуждения фуллеренов.

## 9. Заключение

Проведённые в последнее время исследования, представленные в этой статье, значительно улучшили как эффективность ГВГ в лазерной плазме, так и максимальный порядок генерируемых гармоник, по сравнению с таковыми, полученными в ранних работах в этой области. На рисунке 20 приведены лучшие результаты, достигнутые на ранних стадиях исследования плазменной ГВГ (графики 1–8), и результаты недавних исследований генерации гармоник в слабовозбуждённой плазме (графики 9–10). При этом эффективность преобразования в гармоники в области плато превысила  $10^{-5}$ . Отметим, что на ранних этапах исследования ГВГ в газоструйных источниках в том же диапазоне распределения гармоник эффективность этого процесса не превышала  $10^{-6}$ . Эффективность преобразования была затем несколько улучшена (до  $10^{-5}$ ) за счёт достижения лучших фазовых соотношений между волнами гармоник и преобразуемого излучения. В случае ГВГ от поверхностей, при которой генерируются как нечётные, так и чётные

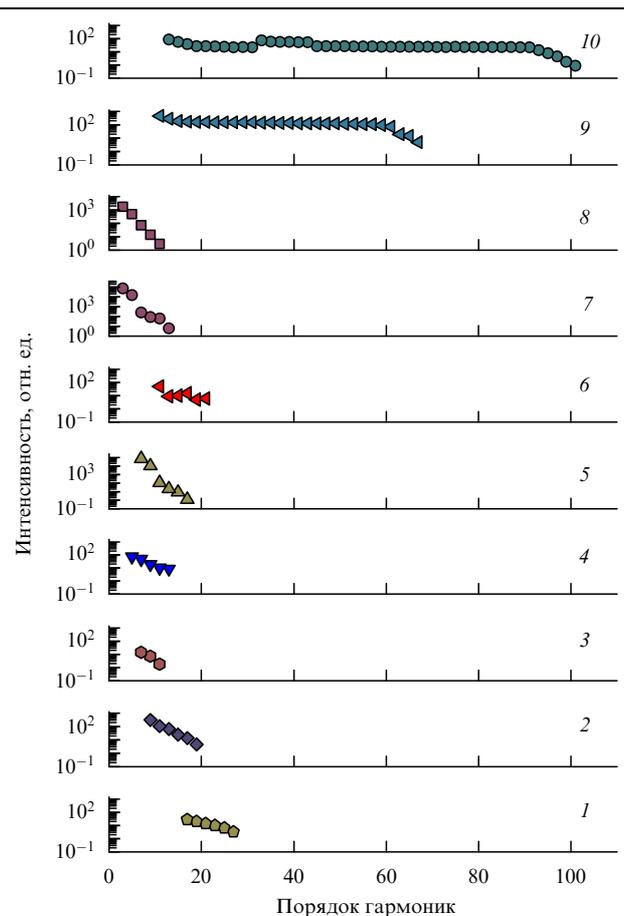


Рис. 20. Спектры высших гармоник, полученных в лазерной плазме на ранней стадии изучения этого процесса (1–8) и в описанных в обзоре исследованиях с использованием слабовозбуждённой и слабоионизированной плазмы (9, 10). 1 — K II [19], 2 — LiF II [22], 3 — Na II [17], 4 — C II [20], 5 — C II [18], 6 — Pb III [18], 7 — Li II [17], 8 — Al II [21], 9 — Ag II [99], 10 — Mn III [41].

гармоники, эффективность преобразования в гармоники низшего порядка значительно превышает таковую для процессов ГВГ в газах и лазерном факеле. Однако вследствие резкого уменьшения эффективности для гармоник каждого последующего порядка при ГВГ от поверхностей, эффективность этого процесса в ДУФ-области становится сравнимой с эффективностью в случае изотропных сред (газы и лазерная плазма) или оказывается меньше её. Отметим, что создание резонансных условий, обеспечивающих возрастание эффективности отдельных гармоник в области плато (вплоть до эффективности  $10^{-4}$ , превышающей все ранее достигнутые значения этого параметра в ДУФ-диапазоне) позволяет в значительной степени улучшить энергетические характеристики когерентных ДУФ-импульсов для последующего практического применения этого излучения в различных областях (нелинейная спектроскопия, аттосекундная физика, микролитография, биологические приложения, наноструктурирование объектов и т.д.). Использование наночастиц также позволяет улучшить эффективность процесса ГВГ в лазерной плазме.

Среди других основных достижений в этой области исследования нелинейно-оптических свойств лазерной плазмы отметим сравнительно высокие порядки генерируемых гармоник (вплоть до 101-го порядка,  $\lambda = 7,9$  нм). Наличие платообразного распределения гармоник позволяет получать примерно одинаковые интенсивности гармоник в широком ДУФ-диапазоне. Эффективность ГВГ, продемонстрированная для ряда плазменных образований (особенно в случае мишеней благородных металлов), позволяет использовать это излучение не только в вышеотмеченных целях, но и для последующего преобразования в более коротковолновый диапазон спектра, а также генерировать серии гармоник и импульсов аттосекундной длительности. Подобные эксперименты в настоящее время находятся на подготовительной стадии. Возможность усиления лишь одной гармоники (а не серии гармоник) позволяет использовать подобные источники излучения без предварительной спектральной селекции с помощью дисперсионных элементов и фильтров (приводящих к заметному снижению энергии преобразованных импульсов). В перспективе возможен поиск подобных резонансных процессов в ещё более коротковолновой области, чем та, которая достигнута к последнему времени и в которой наблюдался процесс усиления отдельной гармоники ( $\lambda = 23$  нм). Достигнутое сейчас понимание процессов, протекающих в плазме при ГВГ, позволяет рассчитывать на дальнейшее улучшение характеристик преобразованного излучения.

Эта статья основана на анализе экспериментов по ГВГ, проведённых с использованием слабозабуждённой лазерной плазмы и продемонстрировавших ряд новых подходов к решению задачи увеличения эффективности этого процесса по сравнению с эффективностью при применении стандартной методики ГВГ в газах. В то же время очевидным фактом является то, что газовая ГВГ пока демонстрирует гораздо более высокие порядки генерируемых гармоник (по сравнению с описанными в этой статье результатами по плазменной ГВГ). Не давая чрезмерно оптимистических прогнозов в отношении превышения генерируемых порядков плазменных гармоник порядков газовых гармоник в ближайшем будущем, мы в основном сконцентрировали внимание читателей на реализации новых методов увеличения интенсивности

преобразованного излучения с использованием плазменных факелов, что вряд ли может быть реализовано в случае стандартной газовой ГВГ.

В дальнейших исследованиях можно ожидать улучшения плазменной ГВГ за счёт двойного возбуждения лазерной плазмы, оптимизации продольной схемы генерации гармоник в лазерном факеле, оптимизации наноструктурированной плазмы, использования многокомпонентных плазменных факелов, создания условий квазифазовой синхронизации волн, обеспечения режима волноводного распространения накачки через плазменную среду, анализа возможности генерации аттосекундных импульсов в лазерной плазме и т.д. Исходя из вышесказанного следует, что в динамически развивающихся исследованиях в этой области нелинейной оптики возможно достижение новых успехов в недалеком будущем.

**Благодарности.** Автор благодарит своих многочисленных коллег, с которыми было проведено большинство из представленных в статье исследований. Особую признательность автор выражает Х. Куроде, П. Д. Гупте, П.А. Наику и Т. Озаки за продуктивные обсуждения различных аспектов генерации гармоник в лазерной плазме. Автор также выражает благодарность многим участникам этих исследований (М. Сузуки, Х. Сингхал, Л. Б. Элоуга Бом, Д. А. Чакера, М. Баба, У. Чакраварти, И. А. Кулагин, П. В. Редькин, Р. А. Хан, М. Рагурамаиах, В. Арора) за содействие в их проведении.

## Список литературы

1. Tsakiris G D et al. *New J. Phys.* **8** 19 (2006)
2. Dromey B et al. *Nature Phys.* **2** 456 (2006)
3. Reitze D H et al. *Opt. Lett.* **29** 86 (2004)
4. Pfeifer T et al. *Appl. Phys. B* **80** 277 (2005)
5. Froud C A et al. *Opt. Lett.* **31** 374 (2006)
6. Gibson E A et al. *Science* **302** 95 (2003)
7. Kazamias S et al. *Phys. Rev. Lett.* **90** 193901 (2003)
8. Teubner U et al. *Phys. Rev. A* **67** 013816 (2003)
9. Norreys P A et al. *Phys. Rev. Lett.* **76** 1832 (1996)
10. Pert G J *Phys. Rev. A* **75** 023808 (2007)
11. Ozaki T et al. *Phys. Rev. Lett.* **89** 253902 (2002)
12. Grüner F et al. *Appl. Phys. B* **86** 431 (2007)
13. Corkum P B, Krausz F *Nature Phys.* **3** 381 (2007)
14. Figueira de Morisson Faria C et al. *Phys. Rev. A* **65** 023404 (2002)
15. Taïeb R et al. *Phys. Rev. A* **68** 033403 (2003)
16. Силин В П, Силин П В *УФН* **177** 763 (2007) [Silin V P, Silin P V *Phys. Usp.* **50** 729 (2007)]
17. Akiyama Y et al. *Phys. Rev. Lett.* **69** 2176 (1992)
18. Kubodera S et al. *Phys. Rev. A* **48** 4576 (1993)
19. Wahlström C-G et al. *Phys. Rev. A* **51** 585 (1995)
20. Theobald W et al. *Opt. Commun.* **133** 587 (1995)
21. Ganeev R A, Redkorechev N I, Usmanov T *Opt. Commun.* **135** 251 (1997)
22. Krushelnick K, Tighe W, Suckewer S J. *Opt. Soc. Am. B* **14** 1687 (1997)
23. Corkum P B *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994 (1993)
24. Гладков С М, Коротеев Н И *УФН* **160** (7) 105 (1990) [Gladkov S M, Koroteev N I *Sov. Phys. Usp.* **33** 554 (1990)]
25. Гладков С М и др. *Пульсы в ЖТФ* **14** 1399 (1988) [Gladkov S M et al. *Sov. Tech. Phys. Lett.* **14** 610 (1988)]
26. Fedotov A B et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **8** 363 (1991)
27. Fedotov A B, Koroteev N I, Zheltikov A M *Laser Phys.* **5** 835 (1995)
28. Fedotov A B et al. *Opt. Commun.* **133** 587 (1997)
29. Ganeev R A et al. *Appl. Opt.* **45** 748 (2006)
30. Ganeev R et al. *Opt. Lett.* **30** 768 (2005)
31. Ganeev R A et al. *Opt. Lett.* **31** 1699 (2006)
32. Ganeev R A et al. *Phys. Rev. A* **74** 063824 (2006)
33. Ganeev R A et al. *J. Appl. Phys.* **99** 103303 (2006)
34. Ganeev R A et al. *Opt. Lett.* **32** 65 (2007)
35. Ganeev R A et al. *Appl. Phys. B* **81** 1081 (2005)
36. Ganeev R A et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **23** 2535 (2006)

37. Suzuki M et al. *Opt. Lett.* **31** 3306 (2006)
38. Suzuki M et al. *Opt. Express* **15** 1161 (2007)
39. Ganeev R A et al. *Appl. Phys. B* **87** 243 (2007)
40. Suzuki M et al. *Opt. Express* **15** 4112 (2007)
41. Ganeev R A et al. *Phys. Rev. A* **76** 023831 (2007)
42. Ganeev R A et al. *Phys. Lett. A* **339** 103 (2005)
43. Seres E, Seres J, Spielmann C *Appl. Phys. Lett.* **89** 181919 (2006)
44. Krause J L, Schafer K J, Kulander K C *Phys. Rev. Lett.* **68** 3535 (1992)
45. Lewenstein M et al. *Phys. Rev. A* **49** 2117 (1994)
46. Milošević D B *J. Opt. Soc. Am. B* **23** 308 (2006)
47. Milošević D B *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **40** 3367 (2007)
48. Milošević D B *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **33** 2479 (2000)
49. Fischer R, Lein M, Keitel C H *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **40** F113 (2007)
50. Reagan B A et al. *Phys. Rev. A* **76** 013816 (2007)
51. Cohen O et al. *Phys. Rev. Lett.* **98** 043903 (2007)
52. von der Linde D et al. *Phys. Rev. A* **52** R25 (1995)
53. Tarasevitch A et al. *Phys. Rev. Lett.* **98** 103902 (2007)
54. Ganeev R A *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **40** R213 (2007)
55. Gibbon P *Short Pulse Laser Interactions with Matter: An Introduction* (London: Imperial College Press, 2005)
56. von der Linde D, Rzażewski K *Appl. Phys. B* **63** 499 (1996)
57. Jaeglé P *Coherent Sources of XUV Radiation: Soft X-Ray Lasers and High-Order Harmonic Generation* (New York: Springer, 2006)
58. Milošević D B, Ehlötzky F *Adv. At. Mol. Opt. Phys.* **49** 373 (2003)
59. Antoine P et al. *Phys. Rev. A* **53** 1725 (1996)
60. Miyazaki K, Takada H *Phys. Rev. A* **52** 3007 (1995)
61. Christov I P, Murnane M M, Kapteyn H C *Phys. Rev. Lett.* **78** 1251 (1997)
62. Tempea G et al. *Phys. Rev. Lett.* **84** 4329 (2000)
63. Donnelly T D et al. *Phys. Rev. Lett.* **76** 2472 (1996)
64. Hu S X, Xu Z Z *Appl. Phys. Lett.* **71** 2605 (1997)
65. Ivanov M Yu, Corkum P B *Phys. Rev. A* **48** 580 (1993)
66. Liang Y et al. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **27** 5119 (1994)
67. Ganeev R A et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **24** 1319 (2007)
68. Kuroda H et al. *Laser Part. Beams* **23** 183 (2005)
69. Ganeev R A et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **24** 1138 (2007)
70. Ganeev R A et al. *Phys. Rev. A* **76** 023832 (2007)
71. Ozaki T et al. *Laser Part. Beams* **25** 321 (2007)
72. Suzuki M et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **24** 2686 (2007)
73. Ganeev R A, Elouga Bom L B, Ozaki T *Appl. Phys. Lett.* **91** 131104 (2007)
74. Ganeev R A, Elouga Bom L B, Ozaki T *J. Appl. Phys.* **102** 073105 (2007)
75. Ganeev R A et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **24** 3823 (2007)
76. Reintjes J F *Nonlinear Optical Parametric Processes in Liquids and Gases* (New York: Academic Press, 1984)
77. Gaarde M B, Schafer K J *Phys. Rev. A* **64** 013820 (2001)
78. Toma E S et al. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **32** 5843 (1999)
79. Zeng Z et al. *Phys. Scripta* **66** 321 (2002)
80. Bartels R et al. *Nature* **406** 164 (2000)
81. Kim H T et al. *Phys. Rev. A* **69** 031805 (2004)
82. Duffy G, Dunne P J *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **34** L173 (2001)
83. Ganeev R A et al. *Appl. Phys. Lett.* **86** 131116 (2005)
84. Singhal H et al. *J. Appl. Phys.* **103** 013107 (2008)
85. D'Arcy R et al. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **32** 4859 (1999)
86. Ganeev R A et al. *Phys. Rev. A* **75** 063806 (2007)
87. Duffy G, van Kampen P, Dunne P J *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **34** 3171 (2001)
88. Dunne P et al. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **32** L597 (1999)
89. Suzuki M et al. *Appl. Phys. Lett.* **90** 261104 (2007)
90. Ganeev R A, Redkin P V *Opt. Commun.* **281** 4126 (2008)
91. Suzuki M et al. *Phys. Lett. A* **372** 4480 (2008)
92. Ganeev R A, Milošević D B *J. Opt. Soc. Am. B* **25** 1127 (2008)
93. Balcou P, L'Huillier A *Phys. Rev. A* **47** 1447 (1993)
94. Reintjes J, She C-Y, Eckardt R *IEEE J. Quantum Electron.* **14** 581 (1978)
95. Pfeifer T et al. *Opt. Lett.* **31** 975 (2006)
96. Ishikawa K L, Takahashi E J, Midorikawa K *Phys. Rev. A* **75** 021801 (2007)
97. Zeng Z et al. *Phys. Rev. Lett.* **98** 203901 (2007)
98. Ozaki T et al. *Laser Part. Beams* **25** 321 (2007)
99. Elouga Bom L B et al. *Phys. Rev. A* **75** 033804 (2007)
100. Ganeev R A et al. *Eur. Phys. J. D* **37** 255 (2006)
101. Kim H T, Tosa V, Nam C H *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **39** S265 (2006)
102. Tosa V et al. *Phys. Rev. A* **67** 063817 (2003)
103. Brimhall N et al. *Opt. Express* **15** 1684 (2007)
104. Larsen J T, Lane S M *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.* **51** 179 (1994)
105. Rubenchik A M et al. *Appl. Surf. Sci.* **127–129** 193 (1998)
106. Wood-Vasey W M et al. *Laser Part. Beams* **18** 583 (2000)
107. Tillack M S et al. *J. Phys. IV (France)* **133** 985 (2006)
108. Ganeev R A et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **24** 2770 (2007)
109. Suzuki M et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **24** 2847 (2007)
110. Ganeev R A et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **23** 1332 (2006)
111. Ganeev R A et al. *Phys. Rev. A* **76** 023805 (2007)
112. Tosa V et al. *Phys. Rev. A* **71** 063807 (2005)
113. Ganeev R A et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **22** 1927 (2005)
114. Ganeev R A, Kuroda H *Opt. Commun.* **256** 242 (2005)
115. Ganeev R A et al. *J. Mod. Opt.* **53** 1451 (2006)
116. Ganeev R A et al. *Opt. Commun.* **249** 569 (2005)
117. Liao H B et al. *Appl. Phys. B* **65** 673 (1997)
118. Shvetsov-Shilovski N I et al. *Laser Phys. Lett.* **4** 726 (2007)
119. Tisch J W G et al. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **30** L709 (1997)
120. Vozzi C et al. *Appl. Phys. Lett.* **86** 111121 (2005)
121. Pai C-H et al. *Opt. Lett.* **31** 984 (2006)
122. Tisch J W G *Phys. Rev. A* **62** 041802 (2000)
123. Véliard V, Taieb R, Maquet A *Phys. Rev. A* **65** 013202 (2001)
124. Vázquez de Aldana J R, Roso L *J. Opt. Soc. Am. B* **18** 325 (2001)
125. Kundu M, Popruzhenko S V, Bauer D *Phys. Rev. A* **76** 033201 (2007)
126. Shim B et al. *Phys. Rev. Lett.* **98** 123902 (2007)
127. Tajima T, Kishimoto Y, Downer M C *Phys. Plasmas* **6** 3759 (1999)
128. Fomitsykyi M V et al. *Phys. Plasmas* **11** 3349 (2004)
129. Fomichev S V et al. *Phys. Rev. A* **71** 013201 (2005)
130. Flettner A et al. *Appl. Phys. B* **77** 747 (2003)
131. Ganeev R A et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **25** 325 (2008)
132. Ganeev R A et al. *J. Appl. Phys.* **103** 063102 (2008)
133. Ganeev R A et al. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **41** 045603 (2008)
134. Ganeev R A *Laser Phys.* **18** 1009 (2008)

### Higher harmonics generation for intense laser radiation in plasma created by a prepulse acting on the surface of a solid target

R.A. Ganeev

*Akademprigor, Research and Production Association Academy of Science of Uzbekistan,*  
 ul. F. Khodzhaeva 28, 100125 Tashkent, Uzbekistan  
 Tel. (998) 71-262-1345. E-mail: rashid\_ganeev@mail.ru

Research on higher harmonic generation in laser plasma is reviewed. Conditions for generating harmonics up to the 101st order ( $\lambda = 7.9$  nm) are analyzed for laser radiation propagating through a weakly ionized plasma created on the surface of various targets by an incident laser prepulse. Results on resonant increase in the intensity of individual harmonics in a number of plasma systems are discussed which demonstrate greatly increased conversion in the region of plateau-like harmonic distribution (as exemplified by the efficiency of  $10^{-4}$  for the 13th harmonic in indium plasma). Data on harmonic generation in nanoparticle-containing plasma are presented. Various methods for increasing the intensity and order of generated harmonics are discussed.

PACS numbers: 42.65.Ky, 42.79.Nv, **52.38.-r**  
 Bibliography — 134 references  
*Uspekhi Fizicheskikh Nauk* **179** (1) 65–90 (2009)

DOI: 10.3367/UFNr.0179.200901c.0065  
 Received 24 April 2008, revised 15 August 2008  
*Physics – Uspekhi* **52** (1) (2009)