

ОБЗОРЫ АКТУАЛЬНЫХ ПРОБЛЕМ

Современные тенденции в области генерации высших гармоник при лазерной абляции различных поверхностей

Р.А. Ганеев

Представлен обзор новых концепций, развитых за последние несколько лет, которые привели к повышению эффективности источников когерентного излучения в области дальнего ультрафиолета на базе преобразования частоты лазерного излучения в специально созданной лазерной плазме и позволили исследовать спектральные и структурные свойства веществ посредством спектроскопии генерации высших гармоник. Также представлено текущее состояние исследований генерации высших гармоник в плазме и новые тенденции развития данной области, появившиеся со времени публикации последнего обзора по этой тематике [УФН 179 65 (2009)]. В частности, рассмотрены новые методы реализации генерации высших гармоник в различных плазменных средах для исследования физических свойств материалов. В последнее время было показано, что генерация высших гармоник может найти новое применение во многих, порой неожиданных, областях взаимодействия лазерного излучения с веществом. Наряду с альтернативным методом генерации когерентного излучения дальнего ультрафиолетового диапазона, генерация высших гармоник в плазме может быть использована в качестве мощного инструмента для различных спектроскопических и аналитических приложений.

PACS numbers: 42.65.Ky, 42.79.Nv, 52.50.Jm

DOI: 10.3367/UFNr.0183.201308b.0815

Содержание

1. Введение (815).
2. Текущее состояние исследований генерации высших гармоник в плазме (816).
3. Современные тенденции, схемы и методы генерации высших гармоник в плазме (818).
4. Теоретические исследования генерации высших гармоник в различных средах (821).
 - 4.1. Генерация гармоник в фуллеренах при использовании импульсов длительностью в несколько периодов.
 - 4.2. Различные подходы для описания наблюдаемых особенностей резонансного усиления одиночной гармоники в плазме.
 - 4.3. Резонансное усиление чётных и нечётных гармоник в плазме олова в поле двухцветной накачки.
 - 4.4. Расчёт генерации одиночной гармоники в плазме Мп.
5. Генерация гармоник пикосекундного излучения Nd:YAG-лазера в лазерной плазме (830).
6. Стабильная генерация высших гармоник фемтосекундного лазерного излучения в плазменных образованиях, созданных лазерным излучением с частотой повторения импульсов 1 кГц (834).
7. Генерация высших гармоник в плазменном образовании графита при использовании ультракоротких лазерных импульсов: систематический анализ излучения гармоник и условий формирования плазмы (836).

8. Генерация одиночных фемтосекундных импульсов дальнего УФ-излучения в плазме Мп, созданной в процессе абляции (843).

9. Заключение (845).

Список литературы (846).

1. Введение

Когерентное коротковолновое излучение имеет важные применения для огромного разнообразия фундаментальных и прикладных исследований в различных областях физики, химии и биологии. Наибольшую заинтересованность вызывают дифракционные формирования изображений когерентного излучения с фемтосекундным временным разрешением и фотопроцессы на поверхности и в наночастицах, а также литография, диагностика плазмы и методика обработки и анализа материалов. Генерация высших гармоник (ГВГ) излучения фемтосекундных лазерных импульсов позволяет получать подобное когерентное излучение в области дальнего ультрафиолета (ДУФ). Использование для данных целей настольных лазеров расширяет возможности научных применений этих процессов. До сравнительно недавнего времени в качестве сред для ГВГ использовались главным образом лишь отдельные газы. Другие попытки основывались на получении гармоник от поверхности

Р.А. Ганеев, Imperial College London,
Prince Consort Road, SW7 2AZ London, United Kingdom
Tel. +44 (0) 20 75 94 76 41
E-mail: r.ganeev@imperial.ac.uk

Статья поступила 25 сентября 2012 г.,
после доработки 28 ноября 2012 г.

твёрдых тел, как с использованием механизма возбуждения когерентной волны, так и при релятивистском движении электронного газа, создающего плазменное зеркало (для случая петаваттных лазеров). Тем не менее, несмотря на огромные усилия, до настоящего времени получены лишь незначительные эффективности ГВГ. Другими методами получения когерентного коротковолнового излучения остаются ДУФ-лазеры на свободных электронах (ЛСЭ) или рентгеновские лазеры.

В связи с этим для дальнейшего стимулирования использования ДУФ-излучения представляется весьма целесообразным перевести источники лабораторного масштаба на более высокий прикладной уровень. На основе лабораторных фемтосекундных лазеров могут быть выполнены многие интересные эксперименты в области создания источников ГВГ. Эти источники перекрывают спектральный диапазон, соответствующий энергии фотона гармоники в диапазоне 10–100 эВ, а при использовании лазерных систем с длительностью импульса порядка нескольких оптических периодов — даже до нескольких сотен электронвольт. Для практических применений источников высших гармоник желательны получение более высокой эффективности преобразования и, таким образом, увеличения потока фотонов, а также повышения максимальной энергии фотона гармоники. Сама ГВГ может быть использована в качестве спектроскопического метода анализа оптических, нелинейно-оптических и структурных свойств эмиттеров гармоник, которые до недавнего времени охватывали лишь несколько инертных газов. Увеличение продуктивности подобных исследований сулит генерация гармоник в лазерной плазме, созданной на различных твердотельных мишенях, которые для отмеченных задач являются относительно новой и в значительной степени неисследованной средой.

Интересным представляется то, что недавние исследования показали усиление высших гармоник, генерируемых при абляции наночастиц, что открывает новые перспективы для использования усиления локального поля, широкополосных плазменных резонансов и более эффективных рекомбинационных процессов для ГВГ в плазме. В качестве заманчивой перспективы может также рассматриваться увеличение эффективности гармоник при квазисинхронизме в специально подготовленной плазме. В этом случае по сравнению с нейтральными газами для плазмы могут быть использованы разнообразные и более гибкие методы. Плазма может быть модифицирована в пространстве при использовании протяжённого импульса, распространяющегося вместе с основным возбуждающим импульсом. Тогда конструктивная и деструктивная интерференция волн гармоники в такой плазме, содержащей различные эмиттеры, может дать новые сведения относительно фазовых характеристик указанного процесса. Таким образом, упомянутый подход может быть полезен для создания эффективных источников ультракоротких импульсов коротковолнового излучения для различных приложений, а также для исследований свойств эмиттеров гармоник. Спектроскопия ГВГ, реализуемая при лазерной абляции, является новым методом в материаловедении и может рассматриваться в качестве одного из наиболее важных применений генерируемых гармоник.

Ранее опубликованные обзоры по исследованию ГВГ в плазме были посвящены главным образом обсуждению

таких специфических тем, как использование для ГВГ плазмы, содержащей наночастицы [1], резонансное усиление гармоник [2] и применение фуллеренов в качестве новой среды для генерации гармоник [3], в отличие от двух первых тематических обзоров, опубликованных пять лет назад [4, 5], в которых представлен обширный диапазон исследований ГВГ в плазме. В связи с этим представляется своевременным вернуться к практике представления общей картины новых разработок в данной области. Также очевидно, что всесторонний обзор самых современных результатов может быть полезен для определения дальнейших шагов в этой относительно новой и привлекательной области исследования материалов.

В данном обзоре обсуждается реализация новых концепций, появившихся в течение последних нескольких лет, которые улучшили эффективность преобразования в ДУФ-диапазон на основе генерации гармоник в специально созданной плазме и позволили провести спектральные и структурные исследования веществ на основе спектроскопии генерации гармоник в плазме. Также представлено текущее состояние исследований ГВГ в плазме и показаны новые тенденции и перспективы развития данной области.

Структура обзора следующая. В разделе 2 очерчено текущее состояние исследований генерации гармоник в плазме. Новые тенденции и схемы ГВГ в плазме представлены в разделе 3. Теоретические методы описания наблюдаемых особенностей генерации гармоник в лазерной плазме обсуждены в разделе 4. Генерация гармоник в лазерной плазме при использовании излучения относительно протяжённых (пикосекундных) импульсов рассмотрена в разделе 5. В разделе 6 описана методика по стабилизации ГВГ фемтосекундного лазерного излучения в плазме при высокой (1 кГц) частоте повторения импульсов. В разделе 7 представлен систематический анализ излучения гармоник в процессе ГВГ в плазме графита при использовании ультракоротких лазерных импульсов. В разделе 8 проанализированы первые наблюдения отдельных субфемтосекундных импульсов в ДУФ-диапазоне в плазме марганца. На основе обобщений, представленных в заключении, намечен путь дальнейшего развития и будущее этой интригующей области физики.

2. Текущее состояние исследований генерации высших гармоник в плазме

В настоящее время ГВГ может рассматриваться как самый простой и наиболее эффективный метод получения когерентного коротковолнового излучения в широком спектральном диапазоне [6–14]. Выше было упомянуто, что в данной области альтернативными методами являются использование рентгеновских лазеров [15, 16] и ЛСЭ [17]. Однако, в отличие от источников, основанных на генерации гармоник, рентгеновские лазеры не способны генерировать излучение в широком диапазоне ДУФ-области. К другим недостаткам рентгеновских лазеров относятся их сравнительно невысокая пространственная когерентность и сильная расходимость излучения. Что касается лазеров на свободных электронах, генерирующих излучение в ДУФ-диапазоне, то в мире существует лишь несколько подобных лазеров, использование которых в значительной степени ограничено

чрезвычайно высокими затратами на их разработку и стоимостью обслуживания.

Исследованиями ГВГ продолжают активно заниматься благодаря доступности новых мощных компактных лазерных систем, позволяющих получать превосходные выходные характеристики излучения (большая энергия и интенсивность импульсов и высокая частота их повторения). До недавнего времени для реализации ГВГ использовались два метода: генерация гармоник в газах [6, 8–12] и от поверхности [7, 13, 14]. Успехи в данной области позволили расширить область генерации когерентного излучения до спектрального диапазона, в котором излучение может проходить через среды, содержащие воду (так называемое "окно прозрачности воды", 2,3–4,6 нм [11, 12]). Этот факт привлекателен с точки зрения практического использования когерентного коротковолнового излучения в исследованиях биологических объектов. Однако вплоть до настоящего времени данные по генерации подобного излучения с использованием вышеупомянутых методов свидетельствовали о низкой эффективности преобразования в ДУФ-диапазон (10^{-6} и ниже), которая значительно ограничивала практическое использование этих методов. Это является возможной причиной того, что за последние годы акцент в исследованиях был смещён в направлении оптимизации другого эффекта, обнаруженного в подобных исследованиях, — генерации аттосекундных импульсов [18].

Поиск путей увеличения эффективности ГВГ в ДУФ-спектральном диапазоне на протяжении длительного времени был (и остаётся) одной из актуальных проблем оптики. Однако в большинстве случаев эффективность преобразования в высшие гармоники оказывается недостаточной для их использования в качестве реальных источников когерентного коротковолнового излучения в биологии, диагностике плазмы, медицине, микроскопии, фотолитографии, дифракционном формировании изображений в когерентном ДУФ-излучении, измерениях с высоким временным разрешением и т.д. Реализация возможности повышения интенсивности высших гармоник, генерируемых в газоструйных источниках при использовании атомных и ионных резонансов, изначально исследовалась главным образом теоретически [19, 20]. Результаты множества вычислений свидетельствуют о том, что интенсивность гармоник может быть существенно повышена в том случае, если эта гармоника находится в резонансе со спектральными переходами атомов и ионов газов. Этот подход, который до сих пор не был реализован при ГВГ в газах, может являться альтернативным (или дополнительным) методом фазового согласования гармоник и лазерного излучения [11, 12].

В то же время выполненные в 1990-х годах первые эксперименты по ГВГ при распространении лазерного излучения в плазме, созданной на поверхности твердотельной мишени, оказались гораздо менее успешными. В обзоре по свойствам гармоник в плазме [21] отмечалось, что "эффект генерации гармоник (в плазме) требует более тщательного рассмотрения и всесторонних фундаментальных исследований". Результаты, полученные при использовании сильновозбуждённой плазмы, содержащей многократно заряженные ионы, продемонстрировали наличие ряда ограничивающих факторов, которые не позволяли генерировать интенсивные гармоники достаточно высокого порядка [22–26]. Кроме того, распределение интенсивности гармоник не соответствовало

предсказаниям так называемой трёхступенчатой модели [27], согласно которой должно наблюдаться платообразное распределение высших гармоник (т.е. распределение с примерно одинаковой интенсивностью высших гармоник). Выполненные в середине 1990-х годов, эти исследования закончились получением гармоник относительно низкого порядка (от 11-го до 25-го). Этот недостаток, а также низкая эффективность преобразования, привели к снижению интереса к подобной методике ГВГ, особенно по сравнению с достижениями ГВГ в газах.

Тем не менее можно было надеяться, что в случае использования лазерной плазмы интенсивность гармоник может быть повышена, и соответственно возможно создание эффективного источника когерентного коротковолнового излучения. В этом случае не существует никаких фундаментальных ограничений, и необходимо только найти оптимальные условия для создания плазменного образования, которое будет служить в качестве эффективной нелинейной среды для ГВГ. Лазерная плазма могла бы успешно использоваться для этого процесса, если минимизировать эффекты, обусловленные ограничивающими факторами (самодефокусировка, фазовая самомодуляция и фазовая расстройка волн гармоник и преобразуемого излучения) [22, 26]. Отметим, что изначально внимание на эту проблему было обращено при исследовании генерации низшей (третьей) гармоники в слабоионизированной плазме (см. обзор [28]).

К специфическим особенностям ГВГ в лазерной плазме прежде всего следует отнести широкий диапазон характеристик нелинейных сред при изменении условий генерации лазерной плазмы на поверхности твёрдого тела. Это касается таких параметров плазмы, как размеры плазменного факела, плотность ионов, электронов и нейтральных частиц, а также степень возбуждения атомов и ионов. Использование различных элементов периодической системы Д.И. Менделеева, которые существуют в твердотельном состоянии, в значительной степени расширяет диапазон используемых материалов наряду со многими тысячами твердотельных образцов со сложным составом (учитывая, что при ГВГ в газах обычно используется только несколько инертных газов). Таким образом, анализ фактически любого доступного твердотельного материала методом нелинейной спектроскопии, включающим лазерную абляцию и генерацию гармоник, может рассматриваться как новый инструмент материаловедения.

В отдельных случаях этот метод предоставляет возможность реализовать квазирезонансные условия для повышения эффективности генерации одиночной гармоники благодаря влиянию ионных переходов на нелинейный отклик в рассматриваемом спектральном диапазоне и, таким образом, позволяет проводить анализ ионных переходов, обладающих большими силами осцилляторов. Этот эффект вряд ли возможен при ГВГ в газах из-за низкой вероятности совпадения частоты атомных переходов немногих газов и частоты одиночной гармоники. Преимущества ГВГ в плазме могут быть в значительной степени реализованы при использовании низковозбуждённой и слабоионизированной плазмы, так как в этом случае ограничивающие процессы, определяющие динамику преобразования частоты лазерного излучения, будут играть незначительную роль. Ряд исследований, посвящённых ГВГ в плазменных средах, подтвердил данное предположение [29–33]. В указанных, а также других

работах [34–37] продемонстрированы преимущества использования специально подготовленной плазмы для ГВГ и выявлено существенное возрастание наивысших порядков генерируемых гармоник, обнаружено протяжённое плато и появление второго плато в спектральном распределении высших гармоник, измерены высокие эффективности, полученные в ряде плазменных образований, реализовано резонансное повышение одиночной гармоники, получено эффективное увеличение гармоник в плазме, содержащей кластеры различных материалов, а также обнаружены другие эффекты. К настоящему времени порядки высших гармоник в плазменных средах лежат в диапазоне 60–70 [29, 31, 38, 39]. Наиболее высокий порядок гармоники (101-й порядок, длина волны 7,9 нм) был получен в плазме марганца [40]. Эффективность преобразования в области плато составила $\sim 10^{-5}$ [41]. Кроме того, эффективность преобразования в одиночную резонансно усиленную высшую гармонику была близка к 10^{-4} [30, 31].

Поиск новых плазменных сред, которые благоприятствовали бы усилению одиночной гармоники, позволит в дальнейшем повысить эффективность преобразования в гармоники. Генерация высокоинтенсивной одиночной гармоники, в значительной степени превосходящей гармоники с примерно равной интенсивностью в области плато, открыла бы путь к практическому использованию этих источников коротковолнового когерентного излучения без применения дисперсионных элементов (дифракционных решёток) для выделения данного излучения. Реализация резонансного усиления одиночной гармоники, наблюдавшаяся в некоторых плазменных средах, позволяет надеяться на то, что подобные особенности будут обнаружены и в других плазменных образованиях. В этом случае длина волны генерируемой гармоники может быть подстроена к переходу с большой силой осциллятора путём изменения длины волны возбуждающего лазера [30, 36], а также изменения chirpa лазерного импульса [31, 33, 35]. Использование для ГВГ наночастиц и кластеров может также увеличивать интенсивность гармоник в ДУФ-диапазоне. Необходимость дальнейшего улучшения эффективности преобразования при ГВГ и увеличения количества генерируемых гармоник требуют систематического анализа влияния различных параметров плазмы и лазерного излучения на этот процесс. Выявленные за последние несколько лет новые особенности генерации гармоник в плазменных факелах [42–74] позволяют надеяться на дальнейшее углубление наших знаний в области анализа свойств материалов с использованием нового метода нелинейной спектроскопии.

В то время как первый этап успешных исследований был полностью сконцентрирован на увеличении эффективности преобразования гармоник в плазме, на последующей стадии исследований нелинейно-оптических процессов высших порядков в приповерхностной плазме этот метод может рассматриваться в качестве нового инструмента для материаловедения. Таким образом, выявление двойной роли ГВГ в плазме — как способа эффективной генерации когерентного ДУФ-излучения и метода исследования свойств материалов — является следующим ключевым этапом дальнейших исследований в этой области. Далее будет показано, что в течение последних лет проявились новые тенденции, которые демонстрируют привлекательность этого метода.

3. Современные тенденции, схемы и методы генерации высших гармоник в плазме

За последние несколько лет ГВГ в плазме получила значительное развитие и продолжает привлекать возрастающее внимание различных лабораторий во всём мире. В настоящее время исследованиями ГВГ в плазме занимаются в Японии, Канаде, Индии, Узбекистане, США, Ирландии, Германии, Корее, Испании и Великобритании. Ниже описываются самые современные результаты и некоторые новые подходы, экспериментальные схемы и идеи, которые смогли значительно продвинуть данную область по пути резкого улучшения выходных характеристик гармоник и лучше понять свойства ряда нелинейных сред с использованием метода ГВГ в плазме.

Недавно при использовании лазера с частотой повторения импульсов 10 Гц была продемонстрирована интенсивная ГВГ в плазме, генерируемой на поверхности различных углеродных мишеней [62]. Была получена энергия высшей гармоники в диапазоне нескольких микроджоулей для каждой гармоники от 11-го до 17-го порядка. На основе анализа морфологии мишени и плазменного состава был сделан вывод о том, что интенсивные гармоники генерируются благодаря наночастицам, созданным в процессе абляции углеродсодержащей мишени. В работе [37] было показано, что наночастицы и плёнки C_{60} могут генерировать гармоники, которые превосходят по интенсивности гармоники от твердотельных моноатомных мишеней. Недостатком применения мишеней из наночастиц и плёнок является нестабильность гармоник, интенсивность которых значительно уменьшается от импульса к импульсу и практически исчезает после нескольких десятков или сотен лазерных выстрелов, если мишень не смещается. Между тем, в [62] было показано, что моноатомные углеродные мишени могут генерировать гармоники, интенсивность которых сопоставима с гармониками, полученными в плазме наночастиц или C_{60} .

Полученное с помощью сканирующего электронного микроскопа (СЭМ) изображение элементов разлёта плазмы углеродной мишени выявило, что плазменные образования содержат наночастицы с размерами 100–300 нм. Поэтому было высказано предположение, что во время взаимодействия греющего импульса с углеродной мишенью в плазме формируются наночастицы, которые впоследствии возбуждаются преобразуемым излучением, генерирующим гармоники. При использовании объёмной углеродной мишени интенсивность гармоник остаётся стабильной в течение нескольких минут даже без смещения позиции мишени. При создании плазмы в течение 5 мин на том же месте твердотельной углеродной мишени интенсивность гармоник уменьшалась не более чем на 10 %, в то время как интенсивность гармоник, генерируемых в плазме, образованной в результате абляции наночастиц, помещённых в зону облучения, уменьшалась более чем на 90 % после нескольких секунд облучения. Также отмечалось, что, в отличие от большинства других твердотельных мишеней, самый высокий порядок гармоник, полученный при использовании углеродной мишени, не превосходит 21. Согласно закону обрыва плато гармоник, следующему из трёхступенчатой модели ГВГ, было предположено, что данные гармоники генерируют нейтральные атомы, а не ионы, как в случае других твердотельных мишеней.

В [63] также сообщалось о результатах как по повышению стабильности генерации гармоник в углеродсодержащей плазме, так и по увеличению их интенсивности. Важность этих параметров генерации определяется возможностью использования преобразованного излучения для различных приложений. За длительную историю генерации гармоник в газах улучшению этих характеристик было посвящено довольно большое количество работ. В результате тщательной оптимизации были получены гармоники с энергией в несколько микроджоулей [75, 76], которые практически позволили достигнуть значений аналогичных параметров ГВГ в газах. По этой причине появилась насущная необходимость поиска методов генерации гармоник с повышенной интенсивностью и методов генерации аттосекундных импульсов в средах, содержащих наночастицы. С этой точки зрения для увеличения интенсивности гармоник могут использоваться газовые кластеры [77] и плазма, созданная на мишени, содержащей наночастицы [37, 78]. К настоящему времени интенсивные гармоники на уровне микроджоулей были получены в диапазоне 50–90 нм.

Как было отмечено выше, при абляции мишеней, содержащих наночастицы, существует проблема, связанная с быстрым снижением интенсивности ГВГ при следующих друг за другом выстрелах, что препятствует их использованию в различных приложениях, особенно в случае лазеров с высокой частотой повторения импульсов. К тому же такие экзотические мишени не всегда доступны. В связи с этим отметим сообщение о новой методике, которая показала, что высокoeffективная и стабильная ГВГ может наблюдаться с использованием мишени, которую легко найти в повседневной жизни, а именно стержня карандаша [63]. Измерения энергии гармоник, генерируемых в плазме, созданной на стержне карандаша, и сравнение с гармониками, генерируемыми в частицах C_{60} , которые оказываются на практике одной из наиболее эффективных сред для ГВГ в плазме, показали преимущества генерации гармоник в первой среде. Важным преимуществом использования карандашного стержня в качестве мишени является стабильность интенсивности гармоник от выстрела к выстрелу при достаточно большом количестве выстрелов.

Чтобы понять особенности плазмы, созданной на стержне карандаша, исследователи с помощью СЭМ проанализировали материал абляции, осаждённый на кремниевую подложку, которая располагалась вблизи плазменного образования. Анализ этих микрофотографий выявил, что плазма, созданная на мишени из карандашного стержня, содержит наночастицы, средний размер которых был примерно 200 нм. Поэтому было высказано предположение, что во время абляции греющим импульсом карандашного стержня наночастицы формируются на поверхности мишени и остаются в плазме, что, в свою очередь, приводит к генерации интенсивных гармоник.

Исходя из экспериментальных наблюдений генерируемых гармоник, которые оказались интенсивнее гармоник, генерируемых в случае плазмы фуллеренов, и морфологии напылённых элементов разлетающейся плазмы авторы [62, 63] заключили, что появление чрезвычайно интенсивных гармоник в плазме карандашного стержня и углеродной плазме является сходным с появлением гармоник, характерным для мишеней, содержащих наночастицы. Присутствие наночастиц в плаз-

менных факелах и низкие значения максимальных порядков генерируемых гармоник свидетельствуют о том, что нейтральные атомы наночастиц являются основным источником интенсивных гармоник в этих плазменных образованиях. Более высокая концентрация нейтральных атомов наночастиц может служить объяснением генерации интенсивных гармоник в наночастицах. В отличие от изолированных атомов и ионов, концентрация которых быстро уменьшается при расширении плазмы, плотность наночастиц остаётся неизменной и близкой к плотности твёрдого тела. В наночастице нейтральные атомы, которые генерируют гармоники с более высокой эффективностью по сравнению с ионами этих атомов, могут эффективно генерировать высшие гармоники. Авторы [62, 63] оценили эффективность преобразования для гармоник в платообразном диапазоне распределения гармоник на уровне 10^{-4} .

При ГВГ в плазме большое внимание уделяется параметрам генерируемых гармоник. Несмотря на то что основное внимание обращалось на повышение эффективности преобразования, что привело к значительному повышению энергии импульсов гармоник, до сравнительно недавнего времени не проводилось никаких измерений временных параметров импульсов гармоник, генерируемых в плазме. Отметим, что эти параметры являются критическими для использования новых источников когерентного ДУФ-излучения. Нельзя гарантировать, что излучение этих гармоник характеризуется аттосекундными длительностями импульсов. Действительно, существует целый ряд факторов, препятствующих генерации подобных импульсов в плазме; в частности, более высокая концентрация электронов и её изменение в течение прохождения преобразуемого импульса через среду могут оказать большое влияние на параметры гармоник из-за фазового рассогласования, а также могут привести к искажению как пространственного фазового фронта, так и спектральной фазы различных гармоник. Кроме того, само измерение временных параметров может сталкиваться с такими проблемами, как искажение зондирующего пучка, ухудшение параметров мишени и нестабильность интенсивности гармоник.

Результаты первых измерений, подтвердивших длительность группы импульсов гармоник в аттосекундном диапазоне, были представлены в работе [62]. Авторами была исследована ГВГ фемтосекундного инфракрасного (ИК) излучения титан-сапфирового лазера, сфокусированного в слабоионизованную плазму хрома. Измерения временных параметров излучения, генерируемого в плазме, были выполнены на основе методики RABITT [79]. Измерение спектральной зависимости амплитуды и фазы гармоник позволяет анализировать аттосекундную структуру импульсов на основе фурье-преобразования. Амплитуда фотоэлектронов, скорректированная с учётом сечения ионизации, сравнительно легко определяет амплитуду каждой гармоники.

Относительную фазу между соседними порядками гармоник можно определить на основе двухфотонной ДУФ + ИК ионизации газа. Когда в газообразном аргоне происходит наложение импульсов ИК- и ДУФ-излучения, в спектре фотоэлектронов между основными линиями, характерными для ионизации ДУФ-фотонами, появляются промежуточные полосы. Они соответствуют двухфотонным переходам: поглощение фотона гармоники с частотой $q\omega_0$ (q — порядок гармоники)

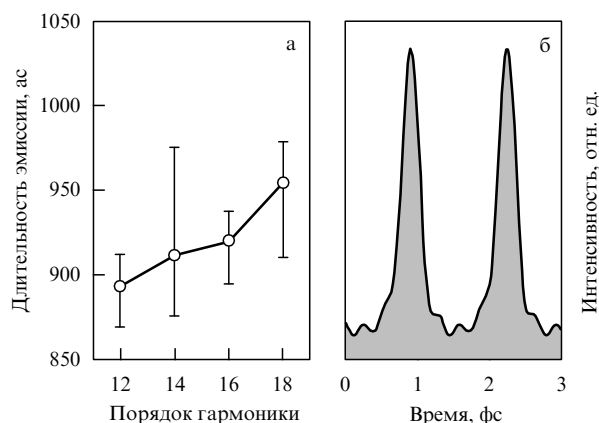


Рис. 1. Длительность эмиссии (а) и временной профиль импульсов гармоник (б) для гармоник от 11-го до 19-го порядков [62].

сопровождается как поглощением, так и вынужденным излучением фотона на частоте лазерного излучения ω_0 . Поскольку два когерентных квантовых канала приводят к появлению одной и той же боковой полосы, происходит интерференция, результатом которой являются вариации амплитуды боковой полосы, в то время как временная задержка τ между ИК-излучением и гармоникой сканируется с разрешением, равным периоду колебаний ИК-лазерного излучения. Фазой подобных вариаций амплитуды этой полосы является разность фаз между двумя интерферирующими каналами. На основе полученных данных по вариации амплитуды боковой полосы может быть определена разность фаз $\varphi_q - \varphi_{q+2}$ между двумя следующими друг за другом гармониками, что позволяет определять групповую задержку, называемую также временем излучения. Исходя из значений фаз φ_q , получаемых при интегрировании времени излучения, и амплитуд A_q различных порядков гармоник, можно восстановить временное распределение интенсивности этой группы гармоник.

На рисунке 1 представлен результат измерений для пяти гармоник с порядками от $q = 11$ до $q = 19$. Восстановленный временной профиль излучения гармоник имеет вид пуга аттосекундных импульсов с длительностью каждого импульса, равной 300 ас (полная ширина на полувысоте). Полагая, что все пять гармоник синфазны, можно получить вероятную длительность самого короткого, т.е. спектрально-ограниченного, импульса. Соответствующая длительность $\tau = 285$ ас. Таким образом, измеренная длительность была всего лишь в 1,05 раза больше длительности спектрально-ограниченного импульса.

При стандартной схеме ГВГ в газах пучок накачки ультракороткого лазерного излучения с интенсивностью выше 10^{14} Вт см $^{-2}$ фокусируется в газовую струю и генерирует высшие гармоники. Эффективность таких схем неизбежно ограничена дисперсией среды. Через расстояние, равное длине когерентности, происходит изменение разности фаз на π и проявляется деструктивная интерференция между пучками накачки и гармоник. Этот процесс является одним из главных факторов, ограничивающих эффективность преобразования при ГВГ. Известным методом, разрешающим проблему фазового рассогласования, является фазовый квазисинхронизм (ФКС) [80]. При ФКС среда модулируется с периодом, равным когерентной длине, таким образом,

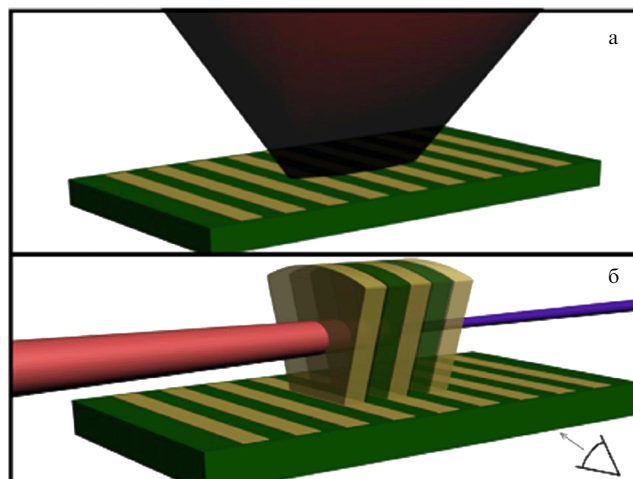


Рис. 2. (а) Схематическое изображение устройства литографического образца, облучённого пучком лазерного излучения с низкой интенсивностью. (б) Струи сформированной плазмы, в которой накачка интенсивным лазерным излучением способствует ГВГ [82].

чтобы фаза накачки или гармоники изменялась, препятствуя деструктивной интерференции, вызванной влиянием фазового рассогласования. Для ГВГ в диапазоне ДУФ дисперсия среды может в основном определяться влиянием свободных электронов, генерируемых в процессе лазерной ионизации среды. При этом допущении для длины волны лазерного излучения 0,8 мкм длина когерентности (в метрах) может быть вычислена из выражения $L_c \propto 10^{15}/qN_e$; здесь N_e — концентрация свободных электронов [см $^{-3}$] и q — порядок гармоники. Ранее ФКС реализовывался при использовании множества газовых струй, в которых должным образом контролировалось давление и интервал между ними [81]. Однако использование этого метода ограничено геометрией эксперимента, определяемой числом газовых струй и минимальным интервалом.

Было высказано предположение, что подобная процедура может быть реализована для ГВГ в плазме при использовании простого формирования множества плазменных струй, созданных для ГВГ, при выполнении технических ограничений на размеры струй и их периодичность [82]. В этой схеме плазменные струи формируются в процессе абляции полоскового периодического микролитографического образца (рис. 2). Цилиндрические плазменные струи создаются в пространстве над мишенью с различным по составу материалом. Ранее было показано [38], что эффективность ГВГ в плазме существенно зависит от атомного состава мишени. Периодическое изменение эффективности позволяет создавать условия для ГВГ в режиме ФКС.

В работе [82] продемонстрирована простая методика генерации периодических плазменных структур в процессе абляции литографического образца. Соответствующие условия для ФКС, требуемые для ГВГ, могут быть созданы при прохождении высокоинтенсивного лазерного импульса через плазменный образец. Проведённые измерения показали, что такие условия существуют после инициирования плазмы греющим лазерным импульсом в промежутке времени между 140 и 180 нс (рис. 3). В пределах этого временного промежутка плазменные струи приобретают ширину в несколько сотен микрон и имеют относительно однородную

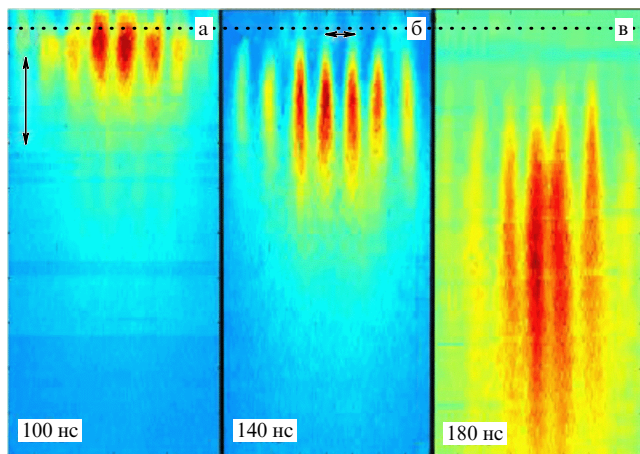


Рис. 3. Монохромное изображение плазменной струи на различных временных этапах: (а) 100, (б) 140 и (в) 180 нс с использованием времени сбора информации длительностью 30 нс. Пунктирными линиями отмечена поверхность мишени, двойные стрелки соответствуют размеру 200 мкм [82].

температуру и относительно низкую концентрацию электронов, $\sim 10^{17} \text{ см}^{-3}$, тогда как в дальнейшие моменты времени плазменное образование начинает постепенно расплываться. Анализ данных рис. 3 показывает, что модуляция концентрации плазмы является существенной для ГВГ в режиме ФКС, в то время как авторы полагают, что намного более высокая периодичность, необходимая для эффективной генерации гармоник более высокого порядка, могла бы быть получена при использовании в процессе подготовки мишени литографии с более высоким разрешением. Таким образом, была продемонстрирована реализуемость схемы создания плазменных многоструйных образований при контроле состава среды, температуры и концентрации (как свободных электронов, так и нейтральных частиц) при помощи абляции специально подготовленных литографических мишеней, которая может привести к ГВГ в режиме ФКС.

4. Теоретические исследования генерации высших гармоник в различных средах

4.1. Генерация гармоник в фуллеренах при использовании импульсов длительностью в несколько периодов

В качестве привлекательной нелинейной среды для ГВГ можно рассматривать фуллерены. Их относительно большие размеры и широкий поверхностный плазмонный резонанс (ППР) в ДУФ-диапазоне позволили впервые получить эффективную ГВГ в фуллеренах вблизи ППР ($\lambda_{\text{ППР}} \approx 60 \text{ нм}$ с полной шириной на полувысоте, равной 10 нм) [37]. Применение метода лазерной абляции приводит к созданию относительно плотной плазмы, состоящей из молекул C_{60} ($\sim 5 \times 10^{16} \text{ см}^{-3}$). Это значение сильно отличается от плотности $< 10^{14} \text{ см}^{-3}$, получаемой при использовании методов создания пучков фуллеренов, основанных на высокотемпературном нагревании в печи.

Теоретические исследования ГВГ импульсов излучения с длительностью в несколько периодов колебания в C_{60} были основаны на дальнейшем развитии трёхступен-

чатой модели [83] с учётом анализа движения электрона, ограниченного поверхностью твёрдой сферы с геометрическими параметрами, сходными с параметрами молекулы фуллерена C_{60} [84], а также на использовании динамического моделирования [85]. В работе [85] был предсказан более высокий порядок генерируемых высших гармоник, обусловленный влиянием многократного возбуждения, и возможность стабильной генерации даже в слабом лазерном поле. Эти исследования показали, что ГВГ может использоваться для анализа электронной и молекулярной структуры C_{60} . В то же время теоретическое исследование таких систем затрудняется тем обстоятельством, что система состоит из многих электронов и её гамильтониан зависит от времени. Исследование влияния фундаментальных свойств электронов при резонансной ГВГ может быть реализовано с помощью зависящего от времени мультikonфигурационного метода Хартри–Фока (ХФ), который обладает точностью непосредственного численного решения уравнения Шрёдингера и является практически таким же простым, как обыкновенный зависящий от времени метод ХФ. В частности, вычисления могут быть основаны на гейдельбергском пакете программ для зависящего от времени мультikonфигурационного метода Хартри [86]. В работе [49] моделирование резонансной ГВГ в трёхмерных фуллереноподобных системах было выполнено на основе зависящего от времени мультikonфигурационного метода ХФ. Было проанализировано влияние ППР C_{60} на эффективность генерации гармоник в области длины волны 60 нм ($E = 20 \text{ эВ}$) и показаны пути оптимизации резонансной ГВГ.

Интенсивность насыщения различных зарядовых состояний C_{60} выше по сравнению с изолированными атомами с подобным потенциалом ионизации [87]. В связи с этим было бы интересно проанализировать с точки зрения генерации гармоник поведение молекул фуллеренов в поле излучения с длительностью импульса в несколько периодов оптического поля и сравнить эти исследования с подобными измерениями при использовании импульсов с длительностью, равной многим периодам оптического поля.

Фуллерены, рассматриваемые ранее как экзотические среды, в настоящее время получают и используют в многочисленных исследованиях. Фуллерены обладают графеноподобной структурой, но вместо совершенной шестиугольной упаковки они содержат также пятиугольники (или даже семиугольники) атомов углерода, которые сгибают тонкую плёнку графена в сферы, эллипсоиды или цилиндры. Среди всех фуллеренов особенно примечателен фуллерен C_{60} , так как пяти- и шестиугольные кольца атомов углерода придают ему сферическую форму. Благодаря этой особенности молекулы C_{60} обладают привлекательной сферической симметрией, которая позволяет упрощать их анализ [88]. Ниже мы кратко остановимся на теории поведения молекулы C_{60} , находящейся в поле лазерного излучения $E(t) = E_0(t) \sin(\omega_L t)$, поляризованного в z -направлении. Здесь $E_0(t)$ описывает профиль импульса с частотой ω_L ; в настоящих вычислениях предполагается, что профиль импульса всегда является трапецевидным с длительностью переднего и заднего фронтов, равной двум оптическим периодам.

Взаимодействие лазерного излучения с молекулой C_{60} описано в рамках одноэлектронного приближения, в котором электрон ограничен бесструктурной сфериче-

ской поверхностью радиусом $R = 3,55 \times 10^{-8}$ см = $6,71a_0$ (a_0 — борковский радиус); в противном случае электрон абсолютно свободен.

В рамках данной модели гамильтониан имеет вид

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hbar\Omega_0(t) \cos \theta \sin(\omega_L t), \quad (1)$$

где

$$\hat{H}_0 = \frac{\hbar^2}{2I} \hat{L}^2 \quad (2)$$

является гамильтонианом C_{60} в отсутствие лазерного поля, $\hbar\Omega_0(t) = eRE_0(t)$, $I = m_e R$ — момент инерции электрона, $\hat{L}^2$ — оператор квадрата углового момента, собственные значения которого являются сферическими гармониками $Y_{\ell m}(\theta, \varphi) \rightarrow |\ell, m\rangle$: $\hat{L}^2|\ell, m\rangle = \ell(\ell+1)|\ell, m\rangle$, ℓ — орбитальное квантовое число, m — квантовое число проекции момента импульса (тот факт, что φ является циклической переменной, делает m постоянным квантовым числом) и θ — угол между направлением на положение электрона и осью z . Соответственно энергия состояния

$$\hbar\omega_\ell \equiv \frac{\hbar^2}{2I} \ell(\ell+1) \quad (3)$$

и, следовательно, щель между смежными энергетическими уровнями линейно увеличивается с возрастанием λ . Эта специфическая особенность может служить напоминанием о подавлении ионизации C_{60} , которое следует из экспериментального факта, что в лазерном поле молекула может поглощать энергию, гораздо большую, чем необходимо для ионизации.

Запишем нестационарное уравнение Шрёдингера (НУШ), решение которого будем искать, в виде

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\Psi(t)\rangle = \hat{H} |\Psi(t)\rangle, \quad (4)$$

где $|\Psi(t)\rangle$ — зависящая от времени полная волновая функция электрона в поле лазерного излучения.

В соответствии с предыдущими допущениями удобно записать вектор состояния $|\Psi(t)\rangle$ в момент времени t в качестве линейной комбинации собственных состояний невозмущённого гамильтониана $\hat{H}_0$:

$$|\Psi(t)\rangle = \sum_{\ell'=0}^{\infty} \sum_{m'=-\ell'}^{\ell'} a_{\ell',m'}(t) |\ell', m'\rangle, \quad (5)$$

где $a_{\ell',m'}(t)$ — коэффициенты разложения, которые находятся подстановкой при решении НУШ. Пусть $|\ell, m\rangle$ — начальное состояние наиболее высокой занятой молекулярной орбитали; в соответствии с предыдущими рассуждениями, лазерное излучение связывает только состояния с $m = m'$. Следовательно, нестационарное уравнение Шрёдингера приобретает вид

$$i\dot{a}_{\ell,m} = \omega_\ell a_{\ell,m} + \Omega_0 \sum_{\ell'=A}^{\infty} \sin(\omega_L t) \langle \ell, m | \cos \theta | \ell', m \rangle a_{\ell',m}. \quad (6)$$

При выполнении принципа Паули и в одноэлектронном приближении суммирование не распространяется на занятые состояния остова молекулы. Таким образом, вычисление матричного элемента сводится к интегриро-

ванию по трём сферическим гармоникам:

$$\begin{aligned} \langle \ell, m | \cos \theta | \ell', m \rangle &= \\ &= \sqrt{\frac{4\pi}{3}} \int Y_{\ell,m}^*(\theta, \varphi) Y_{1,0}(\theta, \varphi) Y_{\ell',m}(\theta, \varphi) d\Omega. \end{aligned} \quad (7)$$

Подстановкой

$$b_{\ell,m} \equiv \sqrt{\frac{(\ell+m+1)(\ell-m+1)}{(2\ell+1)(2\ell+3)}} \quad (8)$$

можно получить:

при $\ell \geq A$

$$\int Y_{\ell,0}^*(\theta, \varphi) Y_{1,0}(\theta, \varphi) Y_{\ell+1,m}(\theta, \varphi) d\Omega = \sqrt{\frac{3}{4\pi}} b_{\ell,m}, \quad (9)$$

при $\ell > A$

$$\int Y_{\ell,0}^*(\theta, \varphi) Y_{1,0}(\theta, \varphi) Y_{\ell-1,m}(\theta, \varphi) d\Omega = \sqrt{\frac{3}{4\pi}} b_{\ell-1,m}.$$

Следовательно,

$$i\dot{a}_{A,m} = \omega_A a_{A,m} + \Omega_0(t) b_{A,m} \sin(\omega_L t) a_{A+1,m}, \quad (10)$$

$$i\dot{a}_{\ell>A,m} = \omega_\ell a_{\ell,m} + \Omega_0(t) \sin(\omega_L t) (b_{\ell-1,m} a_{\ell-1,m} + b_{\ell,m} a_{\ell+1,m}).$$

Так как энергетическая щель увеличивается с возрастанием ℓ , то можно утверждать, что населённость верхних уровней становится незначительной и, таким образом, энергетические уровни с квантовым числом $\ell > A + N$ не участвуют в динамике всей системы. Система дифференциальных уравнений выявляет структуру, подобную лестнице: любой уровень энергий соединён с двумя самыми близкими уровнями. Эта система может быть численно решена в среде Matlab при помощи стандартной программы Odesolve45.

Если получены амплитуды вероятности $a_{k,m}$, то довольно просто получить матричный элемент электрического дипольного момента $er(t)$, индуцированный лазерным излучением в C_{60} , из формулы:

$$\begin{aligned} r(t) &= \langle \Psi(t) | R \cos \theta | \Psi(t) \rangle = \\ &= R \sum_{s=0}^{\infty} b_{A+s,m} [a_{A+s,m}^* a_{A+s+1,m} + a_{A+s,m} a_{A+s+1,m}^*]. \end{aligned} \quad (11)$$

Здесь R — радиус фуллерепа.

На рисунке 4 представлены расчётные спектры гармоник в случае лазерного излучения с длинами волн 780 нм (энергия фотона $E_{ph} = 1,6$ эВ) и 1300 нм ($E_{ph} = 0,96$ эВ), распространяющегося через фуллереновую среду [89]. Вычисления были выполнены для импульсов с длительностью, равной двум периодам ($t = 5,2$ фс) и двенадцати периодам ($t = 31$ фс) при длине волны излучения 780 нм и равной восьми периодам ($t = 34$ фс) при 1300 нм, для интенсивности излучения 6×10^{14} Вт см $^{-2}$, которая была близка к экспериментальным условиям ГВГ в фуллерепах [37, 89].

На спектрах рис. 4 хорошо разрешаются гармоники, но с уширенными линиями (в случае коротких импульсов) и с проявлением гиперрамановских линий (в случае

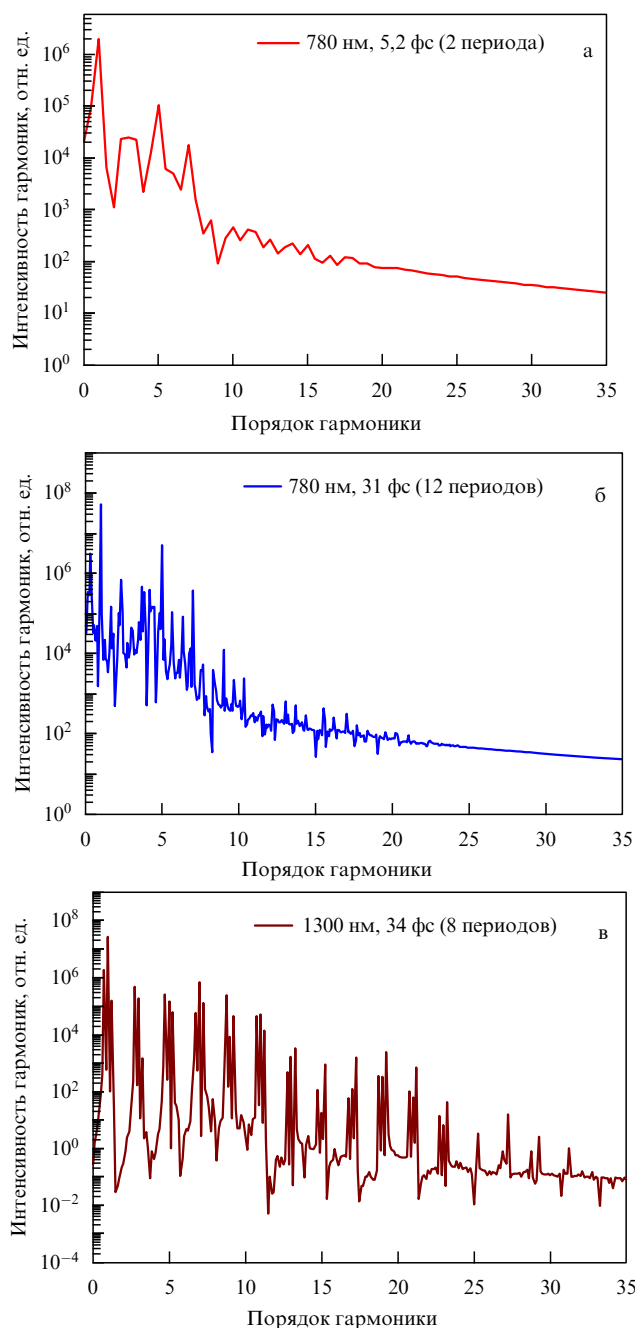


Рис. 4. Расчётные спектры гармоник, генерируемых в плазме фуллеренов в случае зондирующего излучения с длиной волны (а, б) 780 и (в) 1300 нм и интенсивностью 6×10^{14} Вт см $^{-2}$. Длительности импульсов равны двум оптическим периодам (5,2 фс, а), двенадцати оптическим периодам (31 фс, б) и восьми оптическим периодам (34 фс, в) [89].

длинных импульсов). Гиперрамановские линии с частотой, отличной от частот гармоник, проявляются благодаря переходам между состояниями молекулы в поле лазерного излучения [90, 91]. Присутствие этих линий было предсказано с самого начала теоретического рассмотрения ГВГ [92] и выявлено в различных теоретических расчётах, таких как двухуровневое приближение, вычисление в приближении квантовых точек, водородоподобное приближение и др. [93–96], но в то же время никогда не наблюдалось в экспериментах. Для объяснения их отсутствия был предложен ряд доводов. Напри-

мер, предполагалось, что линии уничтожаются при сложении в направлении распространения волны или имеют кратковременную природу и, таким образом, подавляются благодаря генерации нечётных гармоник [97, 98].

Расчёты показывают наличие гармоник (до предельного порядка генерируемых гармоник $H_c = 31$) в случае излучения с длиной волны 1300 нм и длительностью, равной большому числу периодов. Данная теоретическая модель основывалась на сферической симметрии молекулы C_{60} и на целом ряде приближений, наиболее важным из которых является то, что молекула не может быть ионизована. Это допущение заслуживает некоторого комментария. Несмотря на подавление ионизации молекулы C_{60} , реальная ионизация этой молекулы определяет границы применимости таким образом, что когда ионизация существенна, эта теория становится неприменимой. В случае излучения с $\lambda = 1300$ нм обрыв плато гармоник происходит в области более высоких гармоник по сравнению с излучением с $\lambda = 780$ нм ($H_c = 17$), что соответствует данным эксперимента [89].

4.2. Различные подходы

для описания наблюдаемых особенностей

резонансного усиления одиночной гармоники в плазме

Спектр ГВГ отражает зависимость вероятности рекомбинации от энергии возвращающегося после ускорения электрона и от структуры мишени, что в последние годы является предметом интенсивных исследований. Многообещающим представляется использование резонансных условий для повышения пресловуто низкой эффективности процесса ГВГ. Известно, что эти условия весьма важны при фотоионизации. Исследование резонансных пиков сечения фотоионизации имеет продолжительную историю, включая исследование автоионизационных [99, 100], конфигурационных [101] и гигантских [102] резонансов, но существует лишь незначительное число исследований по экспериментальному анализу роли резонансов при ГВГ.

На ранней стадии исследований генерации низших гармоник роль атомных резонансов для повышения эффективности преобразования лазерного излучения активно обсуждалась в рамках теории возмущений (см. монографию [103] и ссылки в ней). В случае ГВГ повышение эффективности генерируемых гармоник из-за резонансных процессов стало предметом обсуждений в течение последних десяти лет, и этот подход становится весьма обещающим при использовании ионных и, в некоторых случаях, атомных резонансов [19, 20, 104–108]. В данных работах содержится как теоретическое рассмотрение процессов, так и описание первых попыток формирования резонансных условий в экспериментах по ГВГ в газах. В частности, авторами [19] были проведены исследования резонансно-усиленной ГВГ с акцентом на физические механизмы усиления. Ограничивая роль дальнедействующего потенциала, исследователи изучили значимость остатка этого потенциала, ридберговских состояний и наличия высоковозбуждённых состояний для усиления гармоник.

Несмотря на то что теоретические оценки свидетельствовали о возможности эффективного повышения интенсивности отдельных гармоник и групп гармоник, в экспериментальных работах не удавалось наблюдать резонансно усиленную ГВГ в газах. Дальнейшие этапы развития этой тематики показали, что использование

плазменных сред могло бы в значительной степени облегчить разрешение проблемы резонансного усиления гармоник. Анализ большой группы возможных мишеней позволил идентифицировать некоторые из них как наиболее подходящие для наблюдения данного процесса [2, 33]. В этих исследованиях было продемонстрировано существенное преимущество "плазменной ГВГ" над "газовой ГВГ", так как в первом случае число возможных сред гораздо больше, чем в последнем, что существенно повышало вероятность наблюдения резонансного усиления гармоник.

Недавно были предприняты попытки объяснения экспериментальных наблюдений резонансного усиления гармоник в плазме [49, 55, 109–114]. В частности, в [110] было показано, что влияние автоионизационных атомных состояний на фазовое согласование ГВГ может приводить к эффективной селекции одиночной гармоники в плазме кальция. Это было первое сообщение об эффективной селекции высших гармоник при использовании автоионизационных состояний. Расчёты [110] продемонстрировали, что достижение фазового согласования процесса ГВГ излучения титан-сапфирового лазера в плазме Ca^+ приводит к селекции отдельной (21-й) гармоники с эффективностью преобразования $\sim 10^{-3}$. Изменения состава плазмы и длины волны основного излучения вызывают перестройку частоты выбранной гармоники в области плато. Влияние нестационарного штарковского сдвига и свободных электронов изменяет фазовую расстройку и оптимальную частоту лазерного излучения, при которой возможна эффективная селекция отдельной гармоники. Таким образом, увеличение интенсивности, обусловленное эффектами распространения, может даже превышать увеличение интенсивности с учётом рассмотрения резонансной ГВГ в одноатомном приближении.

В.В. Стрелковым [111] была предложена модель ГВГ, описывающая повышение эффективности генерации гармоник, резонансной переходу между основным и автоионизационным состоянием излучающего иона. В этой модели третья (рекомбинационная) ступень стандартной трёхступенчатой модели ГВГ [27] разделена на два этапа: захват электрона, ускоренного лазерным излучением, автоионизационным состоянием родительского иона и последующая излучательная релаксация этого состояния в основное состояние с излучением фотона гармоники. На рисунке 5 приведены результаты расчётов [111], которые свидетельствуют о том, что, хотя величины усиления "резонансных" гармоник для различных сред различаются почти на два порядка, теоретические результаты близки к экспериментальным. Различия между величинами усиления гармоник могут быть приписаны параметрам среды (поглощение гармоник и отстройка от фазового согласования для ГВГ), которые не учитывались в рамках этой теории.

Хотя данная четырёхступенчатая модель обеспечивает корректные оценки для отношения интенсивности усиленной гармоники к усреднённой интенсивности соседних гармоник, авторы [113] указывали, что в теоретической модели [111] остаётся неясным факт подавления гармоник, предшествующих резонансной гармонике. В своих исследованиях М.В. Фролов с соавторами [113] показали, что усиление одиночной гармоники с энергией, близкой к энергии автоионизационного состояния в атомах или атомных ионах, а также вышеупомянутое

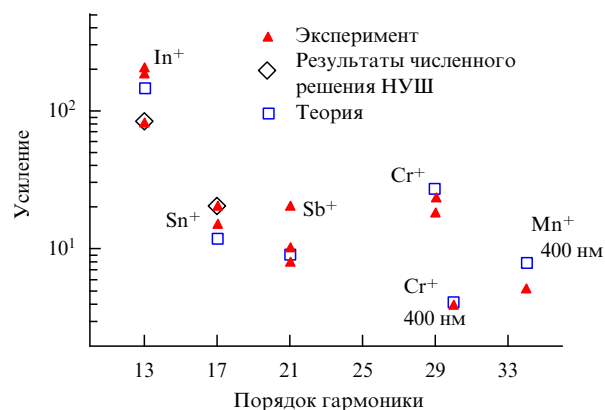


Рис. 5. Сравнение экспериментальных данных по резонансному усилению гармоник с аналитическими и численными результатами, полученными при решении нестационарного уравнения Шрёдингера [111].

подавление предшествующих гармоник могут быть объяснены в рамках обычной трёхступенчатой модели ГВГ [27] без всяких дополнительных предположений (по крайней мере, для гармоник в области обрыва классического плато для данной частоты и интенсивности лазерного излучения). В частности, они успешно объяснили основные особенности, наблюдавшиеся в экспериментах по ГВГ в плазме, сформированной в процессе лазерной абляции твердотельных мишеней Cr и Mn. Для излучения с длиной волны как 800 нм, так и 400 нм эти особенности были обусловлены влиянием ионной структуры на величину сечения излучательной рекомбинации ионов Cr^{2+} и Mn^{2+} (или, что равноценно, на сечение фотоионизации ионов Cr^+ и Mn^+). Эти эффекты были предсказаны на основе факторизации вероятности ГВГ [115].

Результаты измерения этих вероятностей дополняют данные измерений куперовского минимума при ГВГ в нейтральных атомах [116, 117]. Однако, в отличие от проявления куперовских минимумов в величинах вероятности ГВГ, которые имеют главным образом одноэлектронное происхождение, результаты ГВГ в плазме могут рассматриваться в качестве первого экспериментального доказательства истинной многоэлектронной динамики атомов. Эта динамика не может быть описана в рамках традиционно используемого одноэлектронного приближения для решения нестационарного уравнения Шрёдингера, описывающего ГВГ. Поэтому поиск мишеней, позволяющих генерировать усиленные гармоники в ДУФ-диапазоне, должен стимулировать точные многоэлектронные расчёты сечений фотоионизации внутренних и внешних оболочек сложных атомов и ионов для правильного описания существенно резонансных переходов, которые лежат в основе усиления отдельных высших гармоник.

Д.Б. Милошевич [112] установил, что зависимость интенсивности и фазы одиночной гармоники, генерируемой при резонансной ГВГ в плазме, от интенсивности лазерного излучения отличается от подобной зависимости для высших гармоник в области плато и вблизи обрыва плато. С увеличением интенсивности излучения интенсивность резонансной гармоники возрастает непрерывно (т.е. без быстрых осцилляций), в то время как фаза резонансной гармоники практически постоянна. Такое

необычное поведение фазы гармоники требует детального экспериментального исследования.

Субфемтосекундный световой импульс может быть получен при суперпозиции нескольких высших гармоник. В связи с этим данные работы [112] представляются особенно важными в свете недавних результатов первой реконструкции пуга аттосекундных импульсов с использованием излучения высших гармоник, генерируемых в лазерной плазме [62]. В [112] было установлено, что временной профиль группы нечётных гармоник, включающей резонансную гармонику, проявляется в виде широкого пика в каждом полупериоде лазерного поля. Такая ситуация обладает преимуществом по сравнению с обычным плато гармоник и его обрывом, где за половину периода генерируются два подобных пика, что вызывает необходимость использования соответствующей экспериментальной техники (т.е. такую фокусировку, при которой коллективные эффекты, обусловленные макроскопическими процессами при распространении, создавали бы только один пик). Учитывая гладкую зависимость интенсивности гармоники от интенсивности лазерного излучения и то, что при соответствующей фокусировке нет необходимости управлять длинными и короткими траекториями ускоренного электрона, можно надеяться, что резонансная ГВГ окажется весьма перспективной для генерации аттосекундного излучения для случая одиночной гармоники [118, 119].

В [114] была проанализирована ГВГ в присутствии сильного резонанса. Для выявления механизма ГВГ были исследованы зависимости интенсивности и фазы в спектрально-временном представлении. Обнаружено, что присутствие резонанса вызывает явную особенность в спектре ГВГ независимо от длительности импульса. Спектрально-временной анализ подтвердил четырёхступенчатую модель Стрелкова, согласно которой процесс рекомбинации содержит две ступени. Наряду с тем, что одномерный расчёт [114] подтвердил картину с захватом ускоренного электрона, движущегося по длинной траектории, можно ожидать, что полный трёхмерный расчёт также продемонстрирует наличие подобного механизма для случая движения электрона по короткой траектории. По характеру этого процесса излучаемая гармоника синхронизована по фазе с обычным излучением гармоник, происходящим от коротких и длинных траекторий. Для долгоживущих резонансов происходит интерференция между движением населённостей, обусловленным столкновениями в различных полупериодах. Это приводит к новым возможностям для формирования импульсов в ДУФ-диапазоне в субфемтосекундном временном масштабе.

В [49] проведено моделирование резонансной ГВГ путём многоконfigurационного подхода в зависящем от времени приближении Хартри–Фока для трёхмерных фуллереноподобных систем и проанализировано влияние поверхностного плазмонного резонанса S_{60} на эффективность ГВГ на длине волны 60 нм. Эти результаты продемонстрировали пути оптимизации резонансной ГВГ и, что наиболее существенно, генерации пуга аттосекундных импульсов. Результаты расчётов ГВГ на основе зависящего от времени мультikonfigurационного метода ХФ в кластерах S_{60} находились в хорошем качественном согласии с экспериментальными данными, полученными в предыдущих исследованиях генерации гармоник в фуллереносодержащей лазерной плазме.

Широкая полоса ППР в S_{60} позволяет реализовать прямой вынужденный переход из состояний непрерывного спектра в основное состояние без необходимости промежуточного безызлучательного перехода. Таким образом, имеется возможность осуществлять конкурирующее усиление соседних гармоник, которое полезно для генерации пуга аттосекундных импульсов.

В общем случае многоэлектронный ППР S_{60} является обобщением двухэлектронных автоионизационных состояний в атомах и простых молекулах. Однако чрезвычайно большая ширина плазмонного резонанса позволяет осуществлять прямую рекомбинацию, принимая во внимание, что для создания автоионизационных состояний должен сначала реализоваться безызлучательный переход в эти состояния. Использование для резонансной ГВГ в качестве мишени сильно ионизированной среды с отдельными делокализованными электронами может оказаться благоприятным для расширения спектрального диапазона генерации пуга аттосекундных импульсов в направлении к окну прозрачности воды.

Работа [53] посвящена объяснению наблюдаемого явления резонансного усиления одиночной гармоники в плазме индия без повышения соседних гармоник. Она также может быть использована для выявления наиболее многообещающих мишеней для резонансной ГВГ и увеличения её эффективности с помощью управления параметрами излучения накачки. Все расчёты, проведённые в [53], были выполнены при использовании нестационарной теории функционала плотности (НТФП) [120] с помощью программы OCTOPUS в реальном пространственном и временном масштабе [121, 122]. Эта программа является программным пакетом для реализации вычислений НТФП методом Кона–Шэма. Детальное описание формализма НТФП приведено в [123]. Результаты вычислений ГВГ на основе НТФП в плазме индия качественно соотносятся с экспериментальными данными [25]. Это может служить доказательством возможности прямой резонансной рекомбинации в процессе ГВГ на основе рассчитанных параметров искусственно созданных чирпированных импульсов. В работе также обсуждаются особенности данного подхода и проводится сравнение с существующими теориями резонансного усиления гармоник.

В качестве общего заключения можно отметить, что в любых расчётах нестационарной ГВГ, которые основаны на использовании сильно возбуждённых состояний, резонансная ГВГ должна наблюдаться в том случае, когда выполнены резонансные условия в момент рекомбинации. Эти состояния могут быть искусственно представлены на основе одноэлектронной модели [117] или могут естественным образом следовать из структуры потенциальной ямы при многоэлектронных расчётах. Примеры таких подходов представлены в следующих разделах.

4.3. Резонансное усиление чётных и нечётных гармоник в плазме олова в поле двухцветной накачки

Среди сравнительно небольшого количества плазменных сред, созданных с помощью лазерного излучения и демонстрирующих повышенную эффективность ГВГ, плазма олова является весьма привлекательной средой для генерации усиленной гармоники. В плазме олова в зависимости от условий эксперимента (длины волны возбуждающего излучения, чирпа лазерного импульса,

наличия одно- или двухцветной накачки, спектральной ширины возбуждающего излучения, длительности импульса и т.д.) на данный процесс могут оказывать значительное влияние сильные переходы однократно и двукратно заряженных ионов, что было подтверждено экспериментальными и теоретическими исследованиями ГВГ [36, 43, 111, 124]. Кроме того, наряду с анализом роли плазмы различного типа (нейтральные частицы, однократно- и двукратно заряженные ионы) при оптимизации эффективности генерации гармоник, дальнейший поиск отличительных свойств этой плазмы позволяет лучше понять роль различных ионных переходов, влияющих на эффективность данного нелинейно-оптического процесса. Использование лазеров с высокой частотой повторения импульсов, генерирующих ультракороткие импульсы, также может увеличивать среднюю выходную мощность генерируемой резонансной гармоники в плазме олова.

Ниже представлен теоретический анализ спектров фотопоглощения различных ионов в плазме олова [69] и эффективности генерации нечётных и чётных гармоник в различных экспериментальных условиях, основанный на подходе, развитом в [111].

Из опубликованных данных для переходов Sn II в исследуемом спектральном диапазоне [125] следует, что наблюдавшееся в эксперименте усиление 16-й ($E = 25,43$ эВ) и 17-й ($E = 27,02$ эВ) гармоник нечирпированного лазерного излучения с длиной волны 780 нм может быть обусловлено влиянием переходов $4d^{10}5s^25p^2P_{3/2} \rightarrow 4d^95s^25p^2$. Частоты этих переходов, некоторые из которых обладают довольно большими силами осциллятора, лежат в диапазоне энергий фотона 24,9–27,3 эВ. Наблюдавшееся усиление интенсивности 15-й гармоники (генерируемой импульсом с отрицательным чирпом) также можно соотнести с подстройкой частоты излучения в области переходов $4d^{10}5s^25p^2P_{3/2} \rightarrow 4d^95s^25p^2$ иона Sn II. Однако переходами Sn II нельзя адекватно объяснить усиление 17-й гармоники, когда изменение чирпа импульса сдвигает частоту излучения в коротковолновую область, и, соответственно, генерацию на длине волны 45,1 нм ($E = 27,49$ эВ). Поэтому в качестве потенциального источника усиления указанной гармоники необходимо рассматривать также и ионы Sn III.

Для моделирования резонансного усиления ГВГ в ионах Sn II и Sn III необходимо рассчитать характеристики автоионизационных (АИ) состояний в этих ионах. В [125] представлены спектры фотопоглощения для переходов $4d \rightarrow 5p$ ионов Sn II и Sn III в диапазоне 23–33 эВ. Были обнаружены и успешно идентифицированы (при помощи мультikonфигурационных расчётов по методу Хартри–Фока) переходы из основного состояния ($4d^{10}5s^25p$) иона Sn II и из основного ($4d^{10}5s^2$) и возбуждённого ($4d^{10}5s5p$) состояний иона Sn III. В обсуждаемых исследованиях [69] эти расчёты были проведены повторно для построения указанных спектров и обеспечения оценок ширины автоионизационных линий доминирующих переходов.

В структуре спектра иона Sn II ($I_p = 14,63$ эВ) для переходов $4d^{10}5s^25p \rightarrow 4d^95s^25p, np, mf$ ($5 \leq n \leq 13$, $4 \leq m \leq 13$) расчёты выполнялись с использованием самосогласованной схемы Рассела–Саундерса на основе метода Хартри, учитывающего обменное взаимодействие и релятивистскую поправку в пакете программ Кована [126]. Параметры Слэтера F^k , G^k и параметр

конфигурационного взаимодействия R^k были зафиксированы на уровне 85 % от начального значения, в то время как спин-орбитальный параметр полагался неизменным. Было получено согласие расчётных энергий переходов и значений сил осцилляторов с результатами предыдущей работы [125] с максимальным расхождением 0,12 эВ и 0,09 соответственно, которое в обсуждаемом исследовании могло быть связано с увеличенным базисным набором и масштабным множителем. Эти расчёты были выполнены для определения ширины распада автоионизационных возбуждённых состояний, которые могут распадаться по следующим схемам:

$$4d^95s^25p\ np, mf \rightarrow 4d^{10}5s^2 + \varepsilon l \quad (l = 0, 2, 4) \quad (12)$$

$$\rightarrow 4d^{10}5s5p + \varepsilon' l \quad (l = 1, 3) \quad (13)$$

$$\rightarrow 4d^{10}5p^2 + \varepsilon'' l \quad (l = 2). \quad (14)$$

Здесь l — азимутальное (орбитальное) квантовое число.

Значения ε , ε' и ε'' являются разницей усреднённых энергий между возбуждённой конфигурацией и каждой окончательной конфигурацией иона Sn III. Были построены синтетические спектры с учётом того, что профиль линии полагался лоренцевским,

$$\sigma(E) = \frac{109,7 f_k \Gamma_k}{2\pi[(E_k - E)^2 + \Gamma_k^2/4]}.$$

Здесь E_k и Γ_k — энергия и распадная ширина перехода в электронвольтах и f_k — сила осциллятора, k — номер состояния. Синтетический спектр затем свёртывался с использованием гауссовой аппаратной функции с шириной 0,030 эВ. Данный спектр представлен на рис. 6.

Расчёты спектров Sn III были выполнены в приближении jj -связи для переходов как с основной ($4d^{10}5s^2$), так и с возбуждённой ($4d^{10}5s5p$) конфигурацией, усреднённая энергия которой равна 6,87 эВ. В этих расчётах слэтеровский интеграл был зафиксирован на уровне 80 %, за исключением спин-орбитального интеграла, который оставался неизменным. Конфигурация $4d^95s^25p$ (средняя конфигурационная энергия 26,91 эВ) не является автоионизационной, так как расположена ниже ионизационного предела иона Sn IV (30,50 эВ [127]). Средняя энергия возбуждённой конфигурации $4d^95s5p^2$ равна 35,22 эВ, поэтому некогда населённое возбуждённое состояние $4d^{10}5s5p$ может становиться автоионизационным благодаря следующим процессам:

$$4d^95s5p^2 \rightarrow 4d^{10}5s + \varepsilon l \quad (l = 0, 2, 4). \quad (15)$$

Здесь значение ε является разностью средних энергий между возбуждённой конфигурацией и каждой конечной конфигурацией иона Sn IV. На рисунке 6 также показаны окончательные синтетические спектры, которые представляют свёртку с помощью гауссовой аппаратной функции с шириной 0,030 эВ. Характеристики переходов, необходимые для моделирования резонансной ГВГ, представлены в табл. 1. Экспериментально наблюдаемое усиление 17-й гармоники, смещённой в коротковолновую область ($\lambda = 45,1$ нм) [69], может быть объяснено влиянием перехода $4d^{10}5s^2 \rightarrow 4d^95s^25p$ Sn III ($E = 27,6$ эВ, $\lambda = 44,92$ нм). Обратим внимание на то, что автоионизационные состояния не участвуют в этом переходе. Таким образом, это усиление нельзя объяснять четырёхступенчатой моделью [111]. Усиление может быть лучше

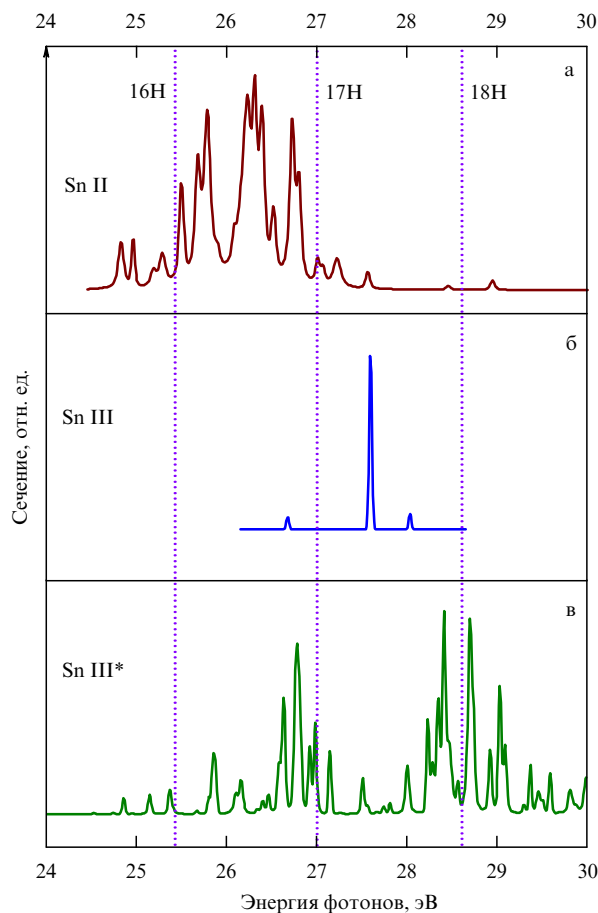


Рис. 6. Спектры сечения фотопоглощения для возбуждённых состояний Sn II $4d^{10}5s^25p \rightarrow 4d^95s^25p^2$ (а), Sn III $4d^{10}5s^2 \rightarrow 4d^95s^25p$ (б) и Sn III* $4d^{10}5s5p \rightarrow 4d^95s5p^2$ (в) при использовании гауссовой аппаратной функции с шириной 30 мэВ. Пунктирные линии соответствуют гармоникам излучения с длиной волны 780 нм [69].

объяснено соответствующим изменением условий фазового согласования вблизи резонанса [2] и/или механизмом повышения отклика одиночного атома. Анализ происхождения этого усиления требует дальнейшего изучения.

Моделирование резонансной ГВГ основано на численном решении трёхмерного нестационарного уравнения Шрёдингера для модельного иона во внешнем лазерном поле. Для решения можно использовать одноэлектронное приближение, учитывающее взаимодействие с другими электронами и ядром с помощью модельного потенциала, как это было сделано в [111, 114]. Этот метод применим, в частности, для описания резонансов в ионах Sn II и Sn III. Для модельного потенциала роди-

тельного иона использовалась следующая формула (здесь и везде используются атомные единицы):

$$V(r) = -\frac{Q+1}{\sqrt{a_0^2 + r^2}} + a_1 \exp\left[-\left(\frac{r-a_2}{a_3}\right)^2\right], \quad (16)$$

где Q — зарядовое состояние иона (1 для Sn II и 2 для Sn III) и a_0, a_1, a_2, a_3 — подстановочные параметры, r — полярная координата.

Указанные параметры выбираются таким образом, чтобы воспроизвести свойства определённых переходов ионов Sn II и Sn III*. А именно, ион Sn II обладает переходом $4d^{10}5s^25p^2P_{3/2} \rightarrow 4d^95s^25p^2(^1D)^2D_{5/2}$ с частотой ($E = 26,22$ эВ), близкой к частотам 16-й и 17-й гармоник возбуждающего излучения нечирпированного импульса с длиной волны 780 нм и с силой осциллятора, существенно превышающей силы осцилляторов других переходов в этой спектральной области. Таким образом, в ионе Sn II пренебрегают другими АИ-состояниями и выбирают потенциальные параметры для воспроизведения данной энергии АИ-состояния, энергии основного состояния, ширины линии АИ-состояния и силы осциллятора перехода. Для ионов Sn III* в рассматриваемой спектральной области переход с частотой 28,48 эВ имеет самую большую силу осциллятора. Таким образом, при моделировании ГВГ в ионах Sn III* можно выбрать параметры модельных потенциалов для воспроизведения характеристик этого перехода. В [128] описан метод решения НУШ. На рисунке 7а представлен спектр микроскопического отклика, рассчитанный для иона Sn II. Из рисунка видно явное усиление 17-й гармоники в соответствии с экспериментальными результатами, представленными в [69].

Для исследования частотного диапазона, в котором происходит усиление гармоники, была рассчитана ГВГ в Sn II при использовании немного различающихся частот основного излучения. На рисунке 7б представлена зависимость усиления гармоники от частоты. Видно, что максимальное усиление достигается при частоте, отличной от частоты перехода (в отсутствие лазерного излучения), что находится в согласии с экспериментом [43]. Такое различие может быть объяснено штарковским сдвигом автоионизационного и основного состояния в лазерном поле. Ширина спектрального диапазона, в котором происходит усиление гармоники, составляет приблизительно 0,7 эВ. Это больше ширины АИ-состояния, рассчитанной в отсутствие поля лазерного излучения (0,160 эВ, см. табл. 1) и используемой в данной модели. Отмеченную особенность можно объяснять уширением АИ-состояния во время его фотоионизации в лазерном поле.

Таблица 1. Автоионизационные свойства некоторых переходов ионов олова

Ион	Переход	$E_{\text{calc}}, \text{эВ}$	gf^{1*}	$\Gamma, \text{мэВ}$
Sn II	$4d^{10}5s^25p^2P_{3/2} \rightarrow 4d^95s^25p^2D_{5/2}$	26,22 ^{2*}	1,43	160,0
Sn III	$4d^{10}5s^2^1S_0 \rightarrow 4d^95s^25p^1P_1$	27,6 ^{3*}	0,87	—
Sn III*	$4d^{10}5s5p(1/2, 3/2)_2 \rightarrow 4d^95s5p^2(5/2, 1/2)_3^{4*}$	28,48 ^{5*}	0,84	47,20

^{1*} gf является произведением силы осциллятора перехода f и статистического веса нижнего уровня g .
^{2*}, ^{5*} Расчётные значения энергии сдвинуты на 0,46 и –0,65 эВ соответственно.
^{3*} Расчётные значения энергии сдвинуты на 0,16 эВ.
^{4*} Используется обозначение jj -связи (J_{core}, J_{nl}) _{J} , где нижний индекс J обозначает суммарный угловой момент уровня.

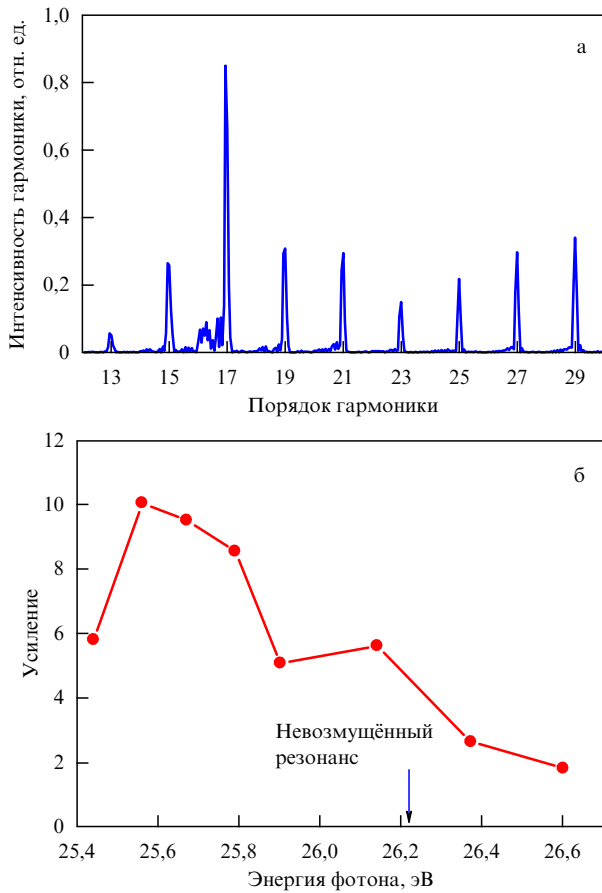


Рис. 7. (а) Спектр гармоник, рассчитанный для Sn II при интенсивности излучения 10^{15} Вт см $^{-2}$. (б) Расчётное значение резонансного усиления 17-й гармоники в зависимости от энергии фотона гармоники. Стрелкой отмечена частота перехода в отсутствие лазерного поля [69].

4.4. Расчёт генерации одиночной гармоники в плазме Mn

В данном разделе представлены результаты численного моделирования генерации гармоник в плазме марганца в рамках одномерной модели [129]. Полагалось, что

основной вклад в резонансный пик в спектре, наблюдаемом в эксперименте [129], обусловлен влиянием ионов Mn^{2+} . Отметим, что потенциал ионизации ионов Mn^{2+} (33,7 эВ) более чем в два раза выше потенциала ионизации ионов Mn^{+} (15,6 эВ). НУШ решалось методом разделения операторов [130]. Мишень Mn^{+} моделировалась при использовании потенциала, обеспечивающего присутствие метастабильного состояния [111, 114]. Форма потенциала имеет следующий вид (рис. 8а):

$$V(x) = -a + \frac{a}{1 + \exp[(x+b)/c]} + \frac{a}{1 + \exp[(-x+b)/c]} + \frac{d/(e+x^2)}{1 + \exp[(x+b)/c]} + \frac{d/(e+x^2)}{1 + \exp[(-x+b)/c]}, \quad (17)$$

где a, b, c, d и e — параметры. Эти параметры выбирались равными 1,672, 1,16, 0,216, 8,95 и 0,63 соответственно, так чтобы ширина резонанса и энергетической щели между основным и резонансным состояниями были близки к экспериментальным данным [131]. Метастабильное состояние для этого модельного потенциала располагалось выше основного состояния на 51,8 эВ. Поле лазерного излучения аппроксимировалось функцией $E(t) = E_0 f(t) \cos(\omega_0 t + \varphi)$, где $f(t)$ — огибающая импульса, φ — фаза несущей огибающей (ФНО) и ω_0 — частота лазерного излучения, соответствующая центральной длине волны $\lambda = 760$ нм. Интенсивность лазерного излучения принималась равной $I_0 = 4 \times 10^{14}$ Вт см $^{-2}$. Значение $\varphi = 0$ подразумевает, что максимум огибающей соответствует максимальному значению $\sin(\omega_0 t)$.

Спектры ГВГ рассчитывались для форм импульсов различной длительности и для различных значений φ (рис. 8б, в). Для моделирования импульса длительностью 3,5 фс использовалась огибающая $\sin^2$ с полной длительностью, равной четырём полным периодам, тогда как для моделирования импульса длительностью 40 фс использовалась огибающая с четырьмя периодами $\sin^2$ во время включения-выключения импульса и 13 периодами с постоянной интенсивностью, т.е. суммарная длительность составляла 21 период. Протяжённый импульс приводил к спектру ГВГ, который имел чёткие пики при нечётных порядках гармоник и слабо зависел

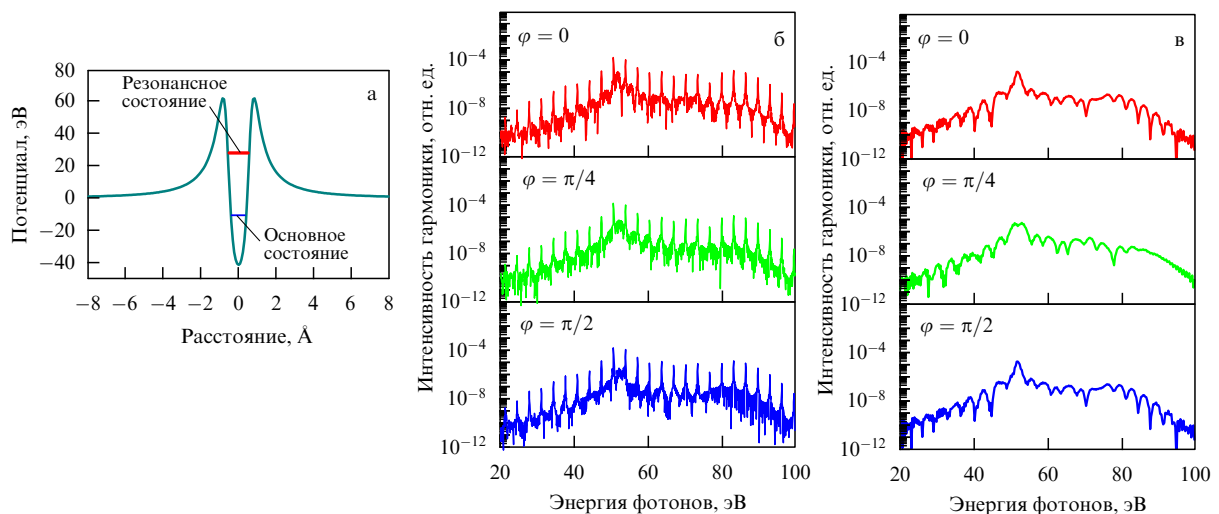


Рис. 8. Вид потенциала, используемого для численных расчётов (а). Расчётные спектры ГВГ при использовании протяжённых импульсов (б) и импульсов с длительностью в несколько периодов (в) при различных значениях ФНО ($\varphi = 0, \pi/4$ и $\pi/2$) [129].

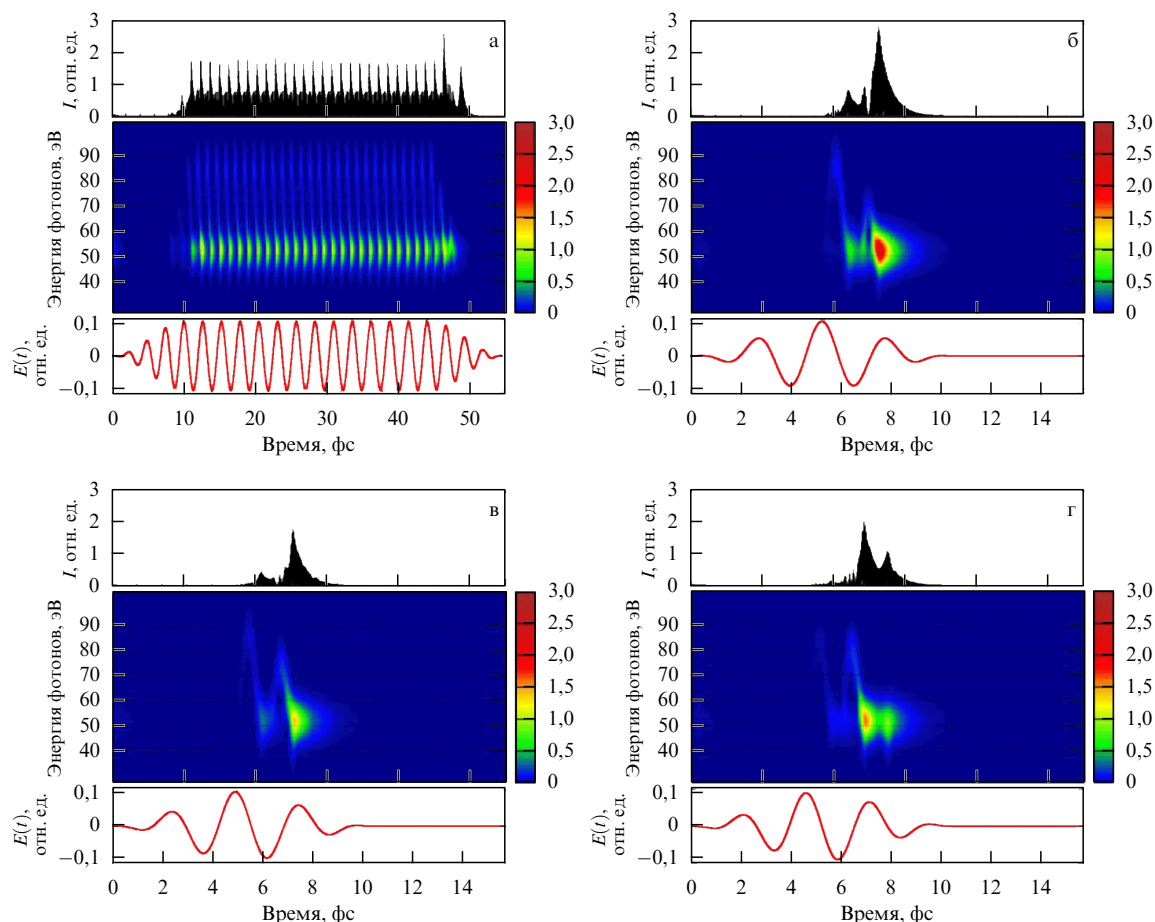


Рис. 9. (В цвете онлайн.) Результаты расчётов ГВГ, возбуждаемой протяжёнными (40 фс) импульсами при ФНО $\varphi = \pi/4$ (а) и импульсами с длительностью в несколько периодов при ФНО $\varphi = 0$ (б), $\varphi = \pi/4$ (в) и $\varphi = \pi/2$ (г). На верхнем изображении каждого рисунка приведён временной профиль интенсивности ГВГ, полученный как квадрат нестационарного дипольного ускорения после фильтрации составляющих свыше 32,7 эВ. На среднем изображении представлены частотно-временные диаграммы. Линии на нижних изображениях соответствуют временным зависимостям электрического поля импульса возбуждающего лазерного излучения [129].

от ФНО (рис. 8б). На рисунке 8в приведена зависимость спектра гармоник от ФНО в случае короткого импульса, содержащего малое количество периодов. Во всех случаях в спектре доминировала роль резонанса. Наиболее интенсивное излучение наблюдалось вблизи 51 эВ, где расположено метастабильное состояние. Отметим, что зависимость от ФНО наиболее сильна в нерезонансной области спектра, хотя имеется некоторое различие между спектрами резонансных гармоник при $\varphi = 0$, $\pi/4$ и $\pi/2$. Для случайной ФНО структура спектра будет усредняться, что подтверждается численным усреднением по 20 значениям ФНО в диапазоне от 0 до π . Пик самого резонанса слабее зависит от ФНО. Случай $\varphi = \pi/4$ представляется специфическим, поскольку наблюдаемый провал, обусловленный интерференцией траекторий, по-видимому, совпадает с пиком резонанса.

При численном моделировании для исследования временных характеристик излучения гармоник выполнялось преобразование Габора [132]:

$$G(\omega, t) = (2\pi\sigma^2)^{-1/2} \int d\tau a(\tau) \exp(i\omega\tau) \exp\left[-\frac{(t-\tau)^2}{2\sigma^2}\right], \quad (18)$$

где $a(\tau)$ — дипольное ускорение, полученное на основе численного расчёта, σ — параметр, равный $1/(3\omega_0)$.

Квадрат модуля $|G(\omega, t)|^2$ является спектрально-временным распределением. Временной профиль интенсивности ДУФ-излучения рассчитывался как квадрат зависящего от времени дипольного ускорения после фильтрации по энергии фотона ниже 1,2 атомных единиц (что соответствует 32,7 эВ). Фактически на профиль излучения эта фильтрация сильно не влияет, так как в спектре доминирует резонанс. Результаты расчёта представлены на рис. 9. Сравнивая режимы с короткой и протяжённой длительностью преобразуемого импульса, можно отметить, что, в то время как рис. 9б — г иллюстрируют резонансное излучение в конце импульса с длительностью в несколько периодов, рис. 9а свидетельствует о том, что резонансное состояние повторно заселяется и распадается каждую половину периода импульса с большим числом периодов.

Для большинства ФНО излучение может рассматриваться как отдельный субфемтосекундный импульс ДУФ-излучения, если длительность импульса определяется обычным способом (как полная ширина на полувысоте). Небольшой боковой пик предшествует или сопровождает этот основной всплеск излучения. Подобные профили излучения обнаружены для трёх значений ФНО (0, $\pi/4$ и $\pi/2$, рис. 9б–г). Момент времени максимального излучения с изменением ФНО изменяется в диапазоне, меньшем 1 фс. Вычисления показы-

вают, что, как правило, можно получить субфемтосекундный ДУФ-импульс или, по крайней мере, ДУФ-импульс с длительностью ~ 1 фс при различных значениях ФНО. Это существенно противоречит обычной сильной зависимости генерации отдельного аттосекундного импульса от ФНО [133–135]. Данное обстоятельство свидетельствует о том, что резонансно-индуцированная ГВГ, которую возбуждает импульс с длительностью в несколько периодов, открывает путь к генерации отдельного аттосекундного импульса ДУФ-излучения с пониженными требованиями для стабилизации ФНО.

5. Генерация гармоник пикосекундного излучения Nd:YAG-лазера в лазерной плазме

Как уже отмечалось, преимущества ГВГ в плазменном факеле в значительной степени могут быть реализованы при использовании слабоионизованной плазмы, так как в этом случае ограничивающие процессы, определяющие динамику преобразования частоты лазерного излучения, играют меньшую роль [4, 136, 137]. Поиск наилучших экспериментальных условий для эффективной ГВГ, таких как длительность возбуждающего лазерного поля, приведёт к дальнейшему увеличению интенсивности гармоник в различных спектральных диапазонах.

Практически все предыдущие исследования ГВГ в плазме были выполнены с использованием фемтосекундных импульсов. Спектральный диапазон этих экспериментов был ограничен с длинноволновой стороны значением ~ 80 нм, что определялось свойствами традиционно используемых регистраторов спектров гармоник (микроканальных пластин). В спектральной области с большей длиной волны было выполнено лишь ограниченное количество исследований ГВГ в плазме. В этих условиях поиск резонансного повышения интенсивности одиночной гармоники может быть оправданным вследствие наличия сильных переходов ионов и нейтральных частиц в области вакуумного ультрафиолета с большей длиной волны (80–200 нм). Далее, применение более протяжённых импульсов позволяет избежать влияния процессов, ограничивающих эффективность генерации гармоник в этой области. Существуют два основных ограничивающих процесса, которые могут уменьшать эффективность преобразования в ионной среде. Первым является избыток концентрации свободных электронов, обусловленный чрезмерным возбуждением поверхности мишени. Появление значительного числа свободных электронов является результатом ионизации как нейтральных атомов, так и однократно заряженных частиц. Это приводит к дефокусировке распространяющегося преобразуемого импульса. Второй процесс непосредственно связан с первым. Условия фазового согласования между возбуждающей волной и волной гармоники, которые выполняются при умеренном количестве свободных электронов, появляющихся во время ионизации нейтральных атомов в процессе абляции, нарушаются из-за увеличения концентрации свободных электронов. Как только плотность энергии греющего импульса достигает определённого порогового уровня, при котором чрезмерное возбуждение мишени приводит к появлению двукратно и многократно заряженных частиц, происходит резкое увеличение концентрации электронов в плазме. Отметим, что использование протяжённого им-

пульса может также увеличивать плотность энергии излучения гармоник при сопоставимой эффективности ГВГ источников пико- и фемтосекундного излучения из-за более высокой энергии импульса в первом случае.

Недавние исследования показали привлекательность использования протяжённых лазерных импульсов для генерации третьей гармоники в лазерной плазме [61, 68, 74]. Ниже представлен анализ генерации гармоник более высокого порядка в различных плазменных образованиях при использовании излучения с длиной волны 1064 нм и пикосекундной длительностью [138]. Целью этих исследований являлся поиск условий генерации высокоэнергичных когерентных пикосекундных импульсов в диапазоне 80–220 нм при использовании различных плазменных образований, созданных на поверхности металлов.

Nd:YAG-лазер с пассивной синхронизацией мод генерировал импульсы длительностью 38 пс ($\lambda = 1064$ нм, частота повторения импульсов 1,5 Гц). Излучение одиночного импульса, усиленного в двух каскадах, разделялось делительной пластинкой на две части. Одна часть (греющий импульс) с энергией 5 мДж использовалась для формирования плазмы на поверхности мишени, а другая часть (зондирующий импульс) с энергией до 28 мДж использовалась (после определённой задержки) для преобразования частоты в различных плазменных образованиях (рис. 10). Излучение греющего импульса фокусировалось с помощью линзы с фокусным расстоянием 300 мм внутрь вакуумной камеры, содержащей различные мишени. В качестве мишени для лазерно-индуцированного формирования плазмы использовались разнообразные металлы (медь, хром, цинк, ниобий, серебро, индий, молибден, титан, олово, свинец, тантал, марганец, вольфрам, золото, бор и алюминий). Размеры плазменного формирования были $\sim 0,5$ мм, интенсивность греющего импульса на поверхности мишени $\sim 10^{11}$ Вт см^{-2} . Диаметр зондирующего преобразуемого одномодового пучка составлял 4 мм. Этот пучок фокусировался внутрь плазменного образования с помощью линзы с фокусным расстоянием 150 мм. Зондирующий пучок распространялся на расстоянии 100–150 мкм от поверхности мишени. Интенсивность зондирующего импульса в центре факела составляла 4×10^{13} Вт см^{-2} . Фокальное пятно располагалось внутри плазменного образования. Задержка между греющим и зондирующим импульсами, равная 25 нс, была оптимальна для эффективной генера-

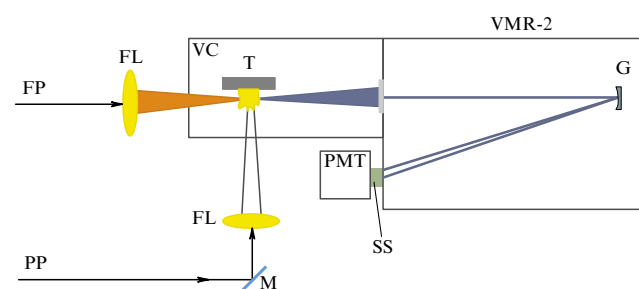


Рис. 10. Экспериментальная установка для ГВГ в лазерной плазме при использовании пикосекундных импульсов. FP — основной зондирующий пикосекундный импульс, PP — греющий пикосекундный импульс, M — зеркало, FL — фокусирующие линзы, VC — вакуумная камера, T — мишень, VMR-2 — вакуумный монохроматор, G — дифракционная решётка, SS — салицилат натрия, PMT — фотоэлектронный умножитель [138].

ции гармоник в большинстве металлосодержащих плазменных образований. Анализ излучения гармоник проводился с использованием вакуумного монохроматора.

Исследование эволюции спектров лазерной плазмы предоставляет важную информацию относительно параметров плазменного факела и может использоваться для различных приложений. В частности, во время исследований генерации гармоник в плазме золота, серебра, марганца и ванадия [42] лазерная спектроскопия с временным разрешением позволила идентифицировать излучение в различные моменты формирования плазменного факела и оптимизировать условия, при которых плазма состоит главным образом из возбуждённых нейтральных частиц и однократно заряженных ионов. Следует отметить, что большинство исследований ГВГ в плазме осуществлялось при использовании интегральных по времени методов анализа излучения плазмы и, таким образом, было невозможно точно определить состояние плазмы, существующее во время распространения в ней фемтосекундного импульса. Ниже рассмотрен интегральный по времени спектральный анализ излучения плазмы от различных металлических мишеней, используемых для генерации гармоник во время распространения пикосекундного излучения в плазме. Эти исследования были нацелены на выявление оптимальных условий создания плазмы для эффективной ГВГ. Было показано, что, в то время как для большинства плазменных образований чрезмерное возбуждение во время лазерной абляции приводит к радикальному уменьшению эффективности генерации гармоник, в отдельных случаях при использовании пикосекундного зондирующего импульса можно достигнуть условий, при которых происходит увеличение максимального порядка генерируемых гармоник.

Спектральные исследования излучения атомов и ионов в плазменных образованиях, созданных лазерным излучением, были выполнены в видимом и ближнем УФ-диапазонах (300–700 нм). Эта спектральная область была выбрана из-за наличия большого числа ионных и атомных переходов в исследуемых образцах плазмы. Для создания абляции излучение Nd:YAG-лазера с длиной волны 1064 нм и длительностью импульса 38 пс фокусировалось на металлическую мишень в вакуумной камере при различном уровне интенсивности. Спектральные характеристики лазерной плазмы в видимом и УФ-диапазонах анализировались с помощью волоконного спектрометра (HR4000).

На рисунке 11 представлены спектры излучения плазмы Mn и Pb. Спектральные линии главным образом соответствовали переходам из возбуждённых состояний нейтральных частиц и однократно заряженных ионов, когда ограничивающее влияние свободных электронов на нелинейно-оптические процессы высших порядков в лазерных плазменных образованиях было незначительным. Увеличение интенсивности греющего импульса на поверхности мишени выше 10^{11} Вт см⁻² приводило к росту интенсивности излучения нейтралей и однократно заряженных ионов и к появлению линий излучения многократно заряженных частиц. Появление двукратно и трёхкратно заряженных ионов и большое число свободных электронов сразу же приводило к значительному уменьшению эффективности ГВГ практически во всех образцах плазмы. Изменение спектров свечения плазмы иллюстрируется на рис. 11. Слабому и сильному возбуж-

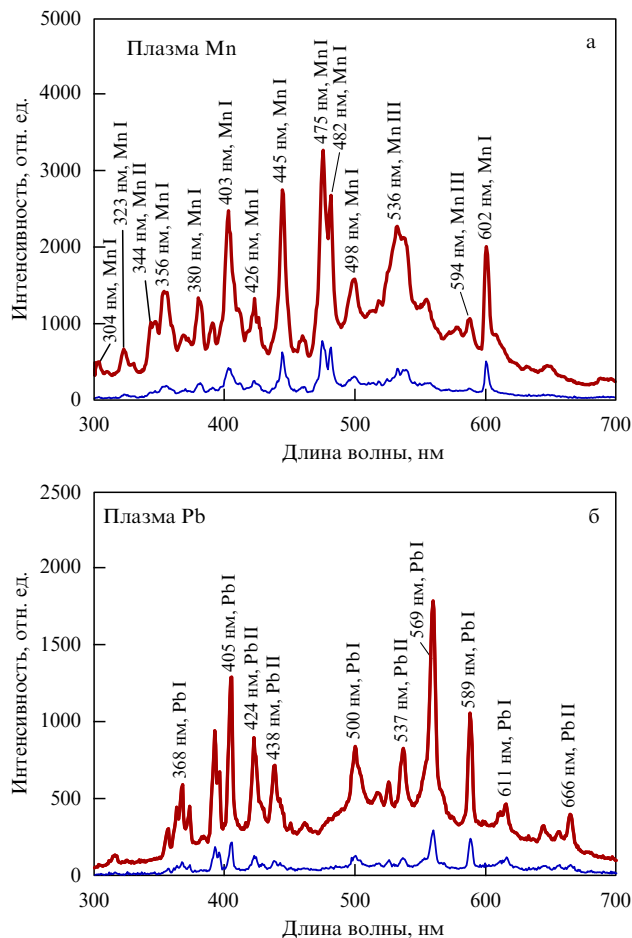


Рис. 11. Спектры излучения плазмы, созданной на мишени Mn (а) и Pb (б) при слабом (тонкие линии, $I = 8 \times 10^{10}$ Вт см⁻²) и сильном (жирные линии, $I = 2 \times 10^{11}$ Вт см⁻²) возбуждении поверхности мишени [138].

дению соответствуют тонкие и жирные кривые. Из рисунка явно видно увеличение интенсивности линий Mn III и Pb II, которое коррелирует с увеличением концентрации многократно заряженных ионов в плазменных образованиях и соответственно с ростом концентрации свободных электронов.

В [138] для большинства анализируемых плазменных образований наблюдались особенности, ограничивающие динамику генерации гармоник при чрезмерном возбуждении мишени. Во время экспериментов по ГВГ с этими мишенями увеличение интенсивности греющего импульса в диапазоне от 1×10^{11} до 3×10^{11} Вт см⁻² приводило к появлению сильного свечения плазмы. При этих условиях возбуждения излучение гармоник в различных плазменных образованиях перекрывалось с излучением плазмы. Интенсивность генерируемых гармоник становилась значительно меньшей, чем при интенсивности возбуждения 1×10^{11} Вт см⁻². В случае большинства плазменных образований это чрезмерное возбуждение приводило к полному исчезновению излучения гармоник. На рисунке 12 представлены изменения эффективности ГВГ с ростом интенсивности греющего импульса. В частности, 11-я гармоника, генерируемая в плазме Pb, начинает снижаться с ростом энергии греющего импульса, превышающей 3 мДж (рис. 12а), которая соответствует интенсивности 1×10^{11} Вт см⁻². В другом случае

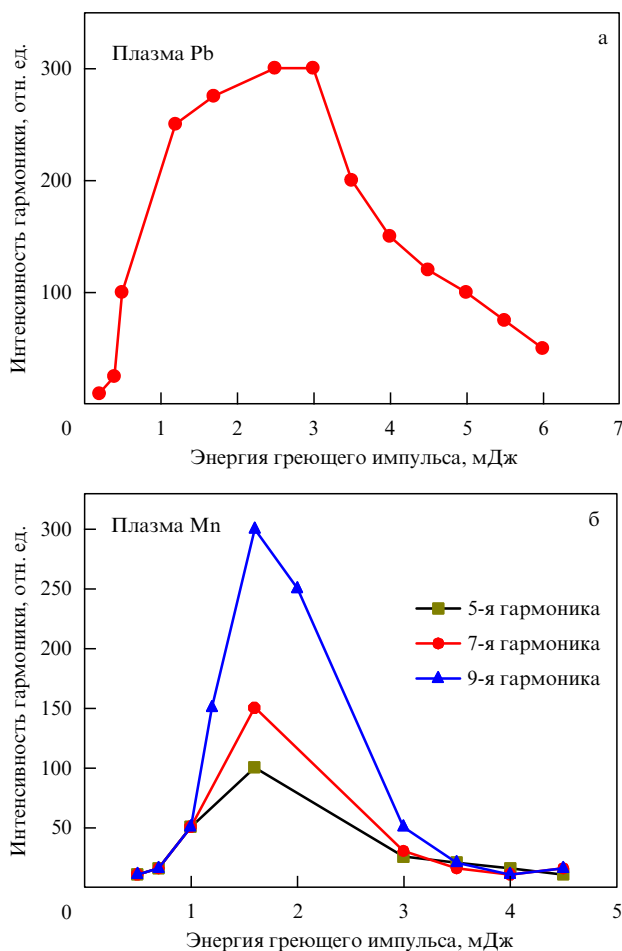


Рис. 12. Зависимости интенсивности гармоник от энергии греющего импульса для 11-й гармоники, генерируемой в плазме Pb (а), и 5-й, 7-й и 9-й гармоник, генерируемых в плазме Mn (б) [138].

снижение сигнала 5-й, 7-й и 9-й гармоник, генерируемых в плазме Mn, наблюдалось при энергиях импульса выше 1,5 мДж (рис. 12б).

Причина снижения эффективности преобразования в гармоники связана с чрезмерным возбуждением мишени, которое приводило к появлению избытка свободных электронов в плазменном образовании. Как отмечалось, последнее вызывает фазовое рассогласование между волной возбуждающего поля и гармониками. Этот эффект наиболее сильно проявляется для гармоник низшего порядка. Можно обратить внимание на то, что о снижении эффективности генерации гармоник в случае чрезмерно возбужденной плазмы также сообщалось для гармоник более высокого порядка [139], однако это снижение эффективности преобразованного ДУФ-излучения было менее резким, чем наблюдавшееся в обсуждаемых исследованиях.

Резкое снижение эффективности преобразования для гармоник низших порядков наблюдалось практически для всех типичных спектров гармоник, генерируемых в плазме металлов. За этим снижением следовало постепенное уменьшение интенсивности гармоник более высокого порядка (так называемый платообразный вид) до предельного диапазона регистрации монохроматора (50 нм, 21-я гармоника). На рисунке 13а показан типичный спектр ГВГ, полученный в плазменных образованиях Cr, Cu и Ti. В большинстве этих плазменных факелов выявлены близкие с точки зрения эффективности ГВГ нелинейно-оптические характеристики.

Измерения абсолютных значений эффективности преобразования в гармоники, генерируемые в плазме, были выполнены по следующей методике. На первом этапе 4-я гармоника излучения с длиной волны 1064 нм, генерируемая в нелинейных кристаллах, с известной энергией, измерялась по следующей схеме системы регистрации: "монохроматор + салицилат натрия + фотоэлектронный умножитель". Это позволило откалибровать монохроматор на длине волны 266 нм. Так как квантовая эффективность салицилата натрия одинакова в широком спектральном диапазоне между 40 и 350 нм, калибровка системы регистрации на 266 нм позволила вычислять эффективность преобразования более высоких гармоник. Монохроматор использовался для реги-

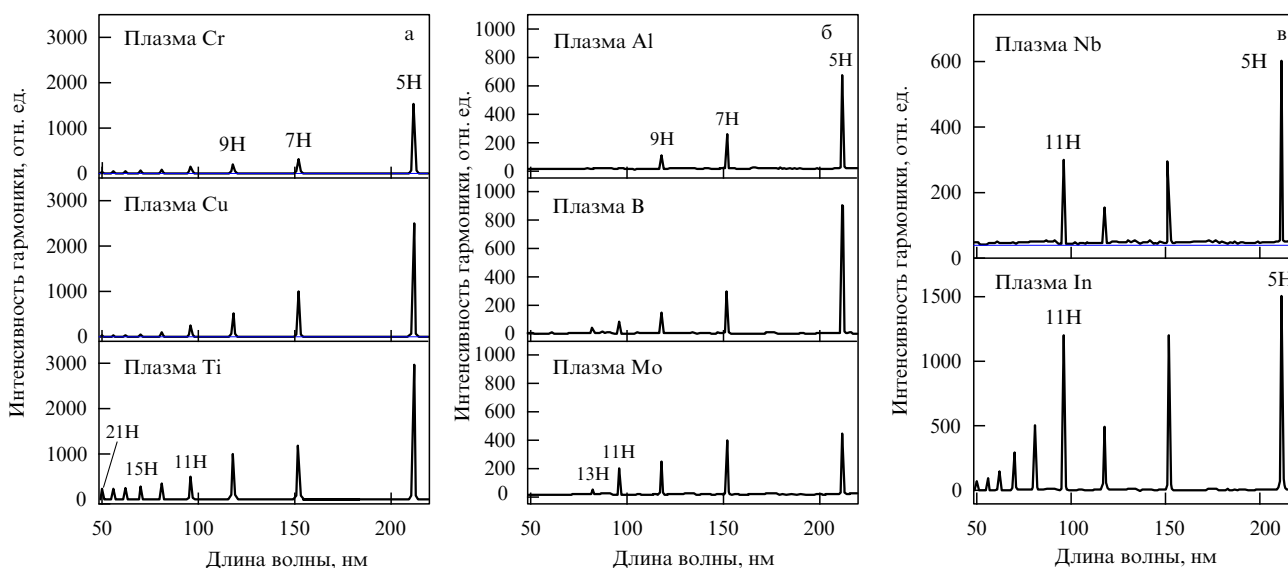


Рис. 13. (а) Спектры высших гармоник в плазменных образованиях Cr, Cu и Ti. (б) Спектры гармоник в плазме Al, V и Mo для гармоник низкого порядка. (в) Спектры гармоник в плазме Nb и In, показывающие усиление 11-й гармоники по сравнению с гармониками низкого порядка [138].

Таблица 2. Эффективность преобразования в гармоники ($\times 10^{-6}$), генерируемые в различных плазменных образованиях, созданных на поверхности металлов в случае зондирующего излучения длительностью 38 пс

Порядок гармоники	Длина волны, нм	Sn	Zn	Mn	Ti	Cu	W	Au	B	Ta	Ag	Cr	Mo	Al
5	213	100	80	80	70	46	46	40	40	26	20	20	4,2	6
7	152	66	66	20	20	33	40	33	13	10	16	7,1	3,8	2,59
9	118	66	53	10	12	15	38	26	3	3	10	3,8	2,5	1,33
11	97	53	40	6,6	6,6	13	33	20	1,3	1,8	6,6	3,8	2,1	
13	82	26	4	2,1	4,6	2,5	7	1,8	1	0,9	2,6	1,3	0,9	
15	71	16	4	1,75	3,3	0,9	5	1,3		0,9	1,3	0,9		
17	63	6	1,7	1,3	2,1	0,9		1,3		0,9	1	0,9		
19	56	6	1,7	1,3	2,1	0,83		0,9		0,75	1	0,9		
21	51	4	1	1,3	2,1	0,75		0,9		0,75	1	0,9		

страции гармоник в спектральном диапазоне от 300 до 50 нм. Была измерена эффективность генерации гармоник в области плато (15-й–21-й порядок), которая составила 10^{-6} – 10^{-5} . В таблице 2 представлены значения эффективности преобразования для различных гармоник в случае некоторых плазменных факелов.

В то время как большинство плазменных образований продемонстрировало схожие свойства, в некоторых из них наблюдалось необычное спектральное распределение гармоник. В частности, в ряде случаев генерация гармоник была ограничена 9-м–15-м порядками. Такой спектр гармоник получался в случае плазменных факелов, образованных на поверхности мишеней из Al, В и Мо (рис. 13б). В некоторых других плазменных образованиях также обнаружены интересные спектры, в которых можно было заметить увеличенное значение интенсивности некоторых гармоник по сравнению с более низкими порядками. Это были плазменные образования In и Nb, в которых имело место усиление 11-й гармоники по сравнению с некоторыми гармониками низких порядков (рис. 13в). Такие зависимости имели сходство с наблюдавшимися ранее зависимостями в экспериментах по ГВГ в плазме при использовании излучения с длиной волны 800 нм и длительностью импульса порядка нескольких десятков фемтосекунд в случае плазменных образований In, Mn, Cr, Sn и др. [2, 4]. Общепринятое объяснение этого усиления обычно связано с близостью длины волны определённых порядков гармоник к резонансным переходам ионов этих сред. Ниже представлено более детальное обсуждение этой особенности.

Наблюдение резонансного усиления в случае как фемтосекундных, так и пикосекундных зондирующих импульсов связано с совпадением длины волны гармоники и переходов ионов. В случае фемтосекундных импульсов данная особенность имеет большую вероятность из-за большей спектральной ширины излучения гармоники. Однако условия резонансного усиления могут быть реализованы и в случае пикосекундных импульсов, так как некоторые из резонансов ионов Nb и In совпадают с длиной волны 11-й гармоники. Эти измерения были повторены несколько раз и продемонстрировали хорошую воспроизводимость при аналогичных исследованиях одного и того же плазменного образования, в то время как ни в одном из других плазменных образований эти особенности не были обнаружены.

Отмеченные особенности не могут объясняться эффектами распространения, так как в этом случае должно происходить усиление нескольких соседних гармоник. Обратим внимание, что при использовании узкополосных зондирующих импульсов резонансное усиление гармоник в плазме является в действительности редко наблюдаемым процессом. Среди исследованных различных плазменных образований это усиление наблюдалось только в двух вышеупомянутых случаях плазмы Nb и In. В то же время известно, что при использовании фемтосекундного широкополосного излучения для резонансного усиления пригодно существенно большее число плазменных образований. Рисунок 13 подчёркивает особенности распределения гармоник в некоторых плазменных образованиях. Исследования показали, что атомный номер не играет существенной роли при классификации свойств гармоник, генерируемых в плазменных средах. Здесь важным параметром мог бы быть второй ионизационный потенциал используемой разновидности плазмы.

Некоторые свойства генерируемых гармоник в плазме, созданной на поверхности металлов, анализировались более полно. При оптимизации ГВГ задержка между греющим и зондирующим импульсами является критическим параметром. На начальном этапе формирования плазмы концентрация частиц (нейтралей и однократно заряженных ионов) недостаточно велика и при расширении плазмы, генерируемой на поверхности мишени, частицы со скоростями в диапазоне $(2-5) \times 10^5$ см s^{-1} не достигают оптической оси распространения зондирующего пучка (расположенной на 100–150 мкм выше поверхности мишени). Увеличение задержки до 5 нс позволяло частицам плазмы появляться на траектории распространения преобразуемого излучения, что способствовало значительному росту эффективности ГВГ. Дальнейшее увеличение задержки приводило к насыщению ГВГ, и при более длительных задержках эффективность преобразования постепенно снижалась. Обратим внимание на то, что при генерации гармоник в плазменных образованиях Mn и Pb оптимальные задержки различаются (20 и 90 нс соответственно). Эту особенность можно объяснить различными скоростями частиц, удаляемых с поверхности мишени, которые должны достигнуть зоны взаимодействия с зондирующим импульсом в разное время. В связи с этим применение мишени с большей атомной массой (Pb, $Z = 82$) должно приводить к большей задержке, прежде чем

основная масса удаляемого материала начнёт взаимодействовать с зондирующим пучком, по сравнению с мишенью с меньшей атомной массой (Mn , $Z = 25$). Для таких плазменных образцов отношение между оптимальными задержками приблизительно совпадает с отношением атомных масс частиц при равной кинетической энергии частиц.

Обычно время жизни плазменного образования составляет порядка нескольких наносекунд [140]. Однако здесь необходимо рассматривать другой временной параметр, когда максимальная концентрация частиц создаётся выше поверхности мишени в области распространения возбуждающего лазерного излучения. Так как расстояние от мишени до оси распространения возбуждающего излучения имеет порядок 100–150 мкм, время, за которое основное облако частиц достигает этой области, имеет порядок нескольких десятков наносекунд при определённой скорости частиц ($\sim 5 \times 10^3$ м с⁻¹ для мишени с низким Z и $\sim 2 \times 10^3$ м с⁻¹ для мишеней с высоким Z). Указанное время составляет примерно 20 или 50 нс. Таким образом, значение времени жизни плазменного образования не является корректным параметром, так как для случая ГВГ должен рассматриваться процесс, который зависит только от времени, требуемого для достижения плазменными частицами зоны распространения зондирующего излучения. В частности, в экспериментах по генерации гармоник в плазме при использовании наносекундных импульсов [68] оптимальная задержка составила 600 нс из-за большего расстояния между мишенью и зондирующим наносекундным излучением (~ 1 мм). Приведённые оценки позволили заключить, что время расширения плазмы, которое является более критическим по сравнению с временем жизни плазменного образования, является решающим параметром для создания эффективной ГВГ.

Важным параметром ГВГ в плазме является поляризация зондирующего излучения. Небольшое отклонение от линейной поляризации приводит к значительному уменьшению интенсивности гармоник, что характерно для высших гармоник. Применение лазерного излучения с круговой поляризацией приводит к полному исчезновению излучения гармоник, как это и должно произойти, с учётом механизма ГВГ.

Интенсивность гармоник также существенно зависит от расстояния между оптической осью возбуждающего пучка и поверхностью мишени. Эта зависимость обусловлена изменением концентрации плазмы над поверхностью мишени. Для генерации 7-й гармоники в плазме марганца зависимость интенсивности гармоник (I_h) от расстояния между оптической осью распространения пучка возбуждающего излучения и поверхностью мишени (x) соответствует соотношению $I_h \sim x^{-3,5}$.

Напомним, что в наиболее ранних исследованиях ГВГ в газах наблюдалась при использовании пикосекундного излучения Nd:YAG-лазера [141, 142] (а также излучения эксимерного лазера на длине волны 248 нм [143]). Были получены гармоники до 21-го и 33-го порядков при использовании излучения с длиной волны 1064 нм и интенсивностью 3×10^{13} Вт см⁻². Указанные исследования привели к существенному повышению интереса к этой области нелинейной оптики. В работе [138] продемонстрировано, что применение в качестве нелинейной среды плазмы, созданной на поверхности мишени, может в дальнейшем улучшить эту методику

ГВГ при использовании пикосекундного возбуждающего излучения, поскольку атомы, ионы и кластеры металлов могут изначально быть использованы в качестве эффективных источников излучения гармоник.

6. Стабильная генерация высших гармоник фемтосекундного лазерного излучения в плазменных образованиях, созданных лазерным излучением с частотой повторения импульсов 1 кГц

Почти все исследования ГВГ в слабоионизованных плазменных факелах, образованных в процессе лазерной абляции различных твердотельных мишеней, проводились с помощью лазеров с частотой повторения импульсов 10 Гц [4, 5]. До настоящего времени было выполнено только несколько исследований ГВГ в плазме на неподвижных мишенях при использовании лазеров с частотой повторения 1 кГц [57, 58, 66]. Процесс абляции при частоте повторения 1 кГц вызывает значительное изменение свойств поверхности мишени из-за плавления, которое ухудшает свойства плазменных образований во время лазерной абляции. Нагревание и плавление поверхности неподвижной мишени приводит к нестабильности в генерации гармоник. Таким образом, для сохранения приемлемой стабильности необходимо перемещать поверхность мишени. Выявление оптимального пути для улучшения стабильности генерации гармоник в плазме при частоте повторения импульсов 1 кГц представляется важным вследствие недавнего обнаружения улучшенных свойств гармоник, генерируемых в плазме, по сравнению с генерацией в газах [62, 63, 67]. В частности, в [62] была измерена эффективность ГВГ в плазме, которая была выше на один порядок величины по сравнению с эффективностью ГВГ в газах. В [67] сообщалось об аналогичных особенностях.

На ранних этапах препятствием для всех экспериментов по генерации гармоник в плазме являлась недостаточная стабильность параметров плазмы (плотность, концентрация ионов и свободных электронов, уровень возбуждения и т.д.), которая приводила к нестабильности гармоник и к быстрому ослаблению эффективности генерации гармоник при облучении одного и того же места мишени. Отмечалось, что большинство ранних исследований было выполнено при использовании лазеров с частотой повторения 10 Гц. Даже при такой относительно низкой частоте повторения импульсов стабильность генерации гармоник ухудшалась после нескольких сотен выстрелов на то же место поверхности и даже скорее для мишени, содержащей порошковые материалы (фуллерены, нанотрубки, металлические наночастицы, различные органические и неорганические порошки). Обратим внимание на то, что лазерная абляция последних образцов может рассматриваться как важный инструмент для исследования их структуры при использовании нелинейной спектроскопии в ДУФ-диапазоне. Применение режима мягкой абляции позволяет использовать одну и ту же мишень в течение намного большего промежутка времени, чем в случае чрезмерно возбуждённых мишеней, использовавшихся в ранних исследованиях. Таким образом, поиск надёжных методов, которые могут быть легко использованы для улучшения стабильности генерации гармоник в плазме, может в значительной степени способствовать изучению ряда

фундаментальных (в частности, структурных, ориентационных и т.д.) свойств органических и неорганических атомов и молекул.

Используемые ранее методы, основанные на геометрии вращающегося диска [25, 68, 74, 144] для смещения мишени в процессе абляции, неприменимы, так как расстояние между пучком возбуждающего фемтосекундного излучения и поверхностью мишени должно сохраняться минимальным (порядка 100 мкм), в то время как дифракционная длина возбуждающего пучка удерживается в диапазоне нескольких миллиметров. Ниже описан новый метод, основанный на применении вращающегося стержня, специально разработанный для ГВГ в плазменном факеле при использовании лазеров с высокой частотой повторения импульсов; продемонстрировано, что такая мишень значительно улучшает стабильность генерации высших гармоник [72].

Исследования были проведены при использовании двух лазерных импульсов: первый импульс создавал плазменное образование на вращающемся стержне, а второй возбуждал ГВГ во время воздействия этого импульса. Первый (греющий) импульс создавался частью ($E = 200$ мкДж) несжатого импульса длительностью 8 пс излучения титан-сапфирового лазера с усилением чирпированных импульсов и частотой повторения 1 кГц. Остальная часть импульса компрессировалась в призматическом компрессоре, а затем проводилась дополнительная компрессия при использовании полого волоконно-оптического световода и чирпированных зеркал. В результате двухкаскадной компрессии генерировался импульс с длительностью 3,5 фс и энергией 250 мкДж. Возбуждающий (зондирующий) импульс задерживался относительно греющего импульса на 40 нс для создания временного запаса, необходимого для расширения плазменного образования от поверхности мишени.

Механизм вращения мишени состоял из трёх линейных подвижек, управляемых по трём осям шаговыми двигателями. Мишень присоединялась к оси четвертого мотора, который обеспечивал вращение с переменной скоростью (от нескольких оборотов до 300 оборотов в минуту). Таких скоростей вращения мишени было достаточно для достижения стабильного излучения гармоники. Дополнительного движения по вертикали не требовалось, хотя эта возможность может быть полезной для будущих экспериментов по ГВГ в плазме. Поскольку в данном устройстве необходимо, чтобы мишень располагалась очень близко к возбуждающему пучку, первоочередную важность имело тщательное выравнивание мишени по оси вращения. Любое движение поверхности мишени из-за нецентрированности в радиальном направлении от оси возбуждающего пучка приводило бы к колебаниям сигнала гармоники вследствие изменения плотности плазмы в области распространения возбуждающего пучка или, в крайнем случае, к частичному перекрытию лазерного пучка.

Как показано на рис. 14, мишень (цилиндрический стержень диаметром 10 мм и длиной 30 мм) размещалась таким образом, чтобы ось распространения зондирующего пучка находилась на расстоянии 100–200 мкм от поверхности мишени. Пикосекундный греющий импульс фокусировался на поверхность вращающейся мишени. Для эффективной генерации высших гармоник плазма должна быть слабоионизованной [139]. С этой целью

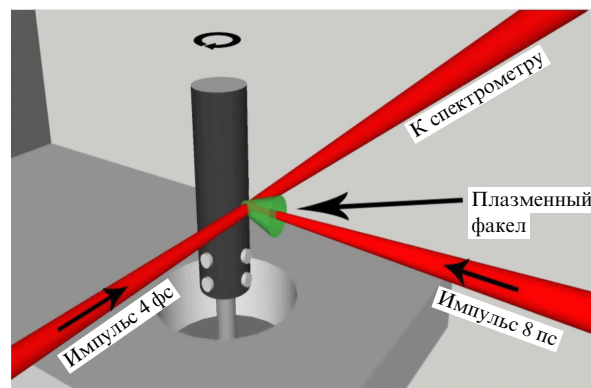


Рис. 14. Схематическое изображение вращающейся мишени и конфигурации ГВГ [72].

мишень располагалась на незначительном расстоянии перед фокусом греющего импульса при использовании линзы с фокусным расстоянием 50 см, что давало величину интенсивности излучения на поверхности мишени $\sim 1 \times 10^{10}$ Вт см $^{-2}$. Такое расположение позволяло увеличивать размеры плазмы, генерируемой при абляции большей области мишени. Измеренный размер фокуса на поверхности мишени составил ≈ 500 мкм. Задержанный зондирующий импульс фокусировался внутри плазмы при использовании сферического зеркала с фокусным расстоянием 40 см. Излучение высших гармоник анализировалось ДУФ-спектрометром, состоящим из плоско-вогнутой дифракционной решётки и датчика на основе микроканальной пластины с фосфорным экраном, изображение с которого регистрировалось прибором с зарядовой связью.

Из рисунка 15 следует, что, когда вращение алюминиевой мишени останавливается, наблюдается резкое изменение интенсивности гармоник (проинтегрированное по спектральному диапазону 40–80 нм). Значительное (более чем на порядок величины) снижение интенсивности преобразованного излучения наблюдается после 1000 выстрелов по неподвижной мишени (или через 1 с после остановки вращения при абляции с использованием 1 кГц-лазера). О явном преимуществе использования вращающегося стержня свидетельствует рис. 16, где

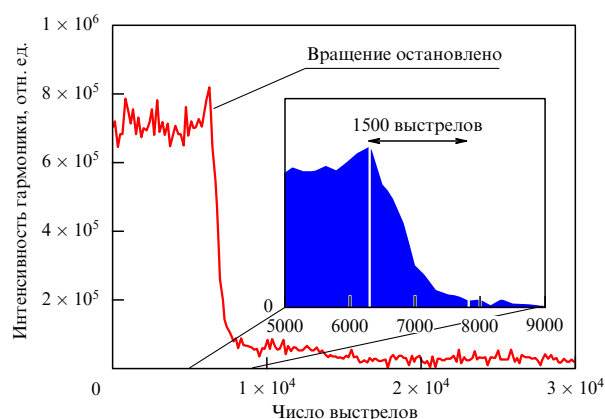


Рис. 15. Затухание гармоник в плазме алюминия после окончания вращения мотора. Используется интегральная величина генерируемого излучения в спектральном диапазоне 40–80 нм [72].

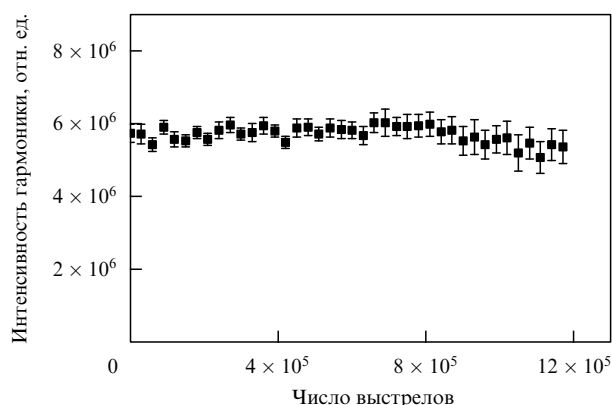


Рис. 16. Стабильность интегрального сигнала гармоник, генерируемых в плазме алюминия, в случае вращающейся мишени [72].

продемонстрировано достижение стабильной генерации гармоник в плазме, созданной на алюминиевой мишени, в течение более 1 млн лазерных выстрелов. Стабильная генерация гармоник была получена в широком диапазоне скоростей вращения (от 10 оборотов в минуту и выше). Скорость вращения мишени и размер пятна абляции, несомненно, говорят о том, что одна и та же область мишени неоднократно использовалась при последовательном вращении в течение 20 мин эксперимента. При такой высокой частоте повторения импульсов это могло привести к проблеме теплового перегрева.

По-видимому, как только неподвижная поверхность начинает плавиться, под действием следующего лазерного импульса и в результате генерации плазмы часть жидкой мишени может удаляться из области абляции, что должно ухудшить движение плазмы в направлении, нормальном к поверхности. Влияние этих эффектов значительно снижается, если мишень начинает вращаться. Во время вращения область предыдущей абляции остывает таким образом, что в течение следующей серии абляции на этом месте формирование плазмы происходит приблизительно при тех же начальных условиях. Чтобы доказать, что область абляции остывает при вращении, мишень вращалась с различной скоростью (от 10 до 300 оборотов в минуту), и никаких изменений стабильности генерации гармоник обнаружено не было. Эти наблюдения подчёркивают важность периодической замены зоны абляции, а также подтверждают предположение, что периодическое охлаждение области абляции приводит к стабильной динамике образования плазмы и генерации гармоник.

Наиболее важными параметрами для достижения и поддержания стабильной эффективности ГВГ во время облучения являются характеристики плазмы (плотность и степень ионизации). Вычисления [67] показали, что в случае углеродной плазмы при оптимальной задержке между греющим и зондирующим импульсами (~ 40 нс) концентрация частиц в области взаимодействия фемтосекундного лазерного излучения с плазмой составляет $\sim 2 \times 10^{18} \text{ см}^{-3}$. Перед лазерной абляцией поверхность твёрдого тела полагалась ненагретой. Действительно, после одного цикла вращения (например, после 0,2–2 с) плазма исчезает, место абляции остывает, и следующий выстрел лазера на том же месте может рассматриваться как выстрел по практически "свежей" поверхности. На-

против, в случае неподвижной мишени последующие выстрелы продолжают нагревать то же самое место.

Новизна данного подхода заключается также и в создании улучшенных свойств ГВГ в плазме даже при чрезвычайно малых энергиях греющего импульса. Эффективность ГВГ в плазме зависит от возможности создания "оптимальной" плазмы. Она может быть создана при использовании как импульсов с энергией, равной многим миллиджоулям, как показано в предыдущих исследованиях [4], так и импульсов с энергией, равной нескольким сотням микроджоулей, как это было продемонстрировано в [72] и в недавно опубликованных исследованиях [67]. Здесь важным моментом является интенсивность и плотность энергии греющего импульса на поверхности мишени. Применение более высокой энергии греющего импульса может привести к созданию условий оптимальной плазмы на большем расстоянии, которое позволяет (или не позволяет) повышать выход гармоник, в зависимости от фазовых соотношений между зондирующей волной и гармоникой. Кроме того, это также может привести к перегреву мишени при 1 кГц-абляции. Выше было отмечено, что при использовании греющего импульса с энергией 0,2 мДж скорость вращения не влияла на стабильность генерации гармоник. Использование импульсов с большей энергией (порядка нескольких миллиджоулей) при высокой частоте повторения может потребовать дополнительной оптимизации предложенного метода (например, путём периодического перемещения вращающейся мишени вверх и вниз).

7. Генерация высших гармоник в плазменном образовании графита при использовании ультракоротких лазерных импульсов: систематический анализ излучения гармоник и условий формирования плазмы

Как уже отмечалось, характеристики лазерной плазмы играют критическую роль при определении эффективности ГВГ в плазменных образованиях. В ранних экспериментах с лазерной плазмой [22, 24, 25] повышение плотности свободных электронов, вероятно, являлось фактором, ограничивающим максимальный порядок генерируемых гармоник и их интенсивность. Поиск соответствующих материалов мишени, при использовании которых в процессе абляции возможно создание плазмы, подходящей для эффективной ГВГ, стимулировал анализ характеристик плазмы в условиях высоких интенсивностей гармоник. Недавние исследования [63, 67] продемонстрировали, что плазменные образования углерода, созданные в процессе лазерной абляции, являются перспективными средами для удовлетворения указанных требований.

Стабильность гармоники от импульса к импульсу является критическим параметром для любого применения генерируемого излучения, и особенно для измерения длительности импульса преобразованного ДУФ-излучения. О таких временных измерениях сообщалось в случае ГВГ в плазме хрома [62]. Используя метод "реконструкции аттосекундных биений на основе интерференции двухфотонных переходов", авторы показали, что набор гармоник от 11-й до 19-й излучения титан-сапфирового лазера формирует во временном представлении пуг аттосекундных импульсов (см. также раздел 3). При этом подчёркивалось, что нестабильность сигнала гар-

моник в этих экспериментах, использующих лазер с частотой повторения импульсов 10 Гц, являлась основным препятствием для точного измерения временной структуры гармоник, генерируемых в плазме. Кроме фундаментального интереса, генерация стабильных высших гармоник в плазменных образованиях могла бы привести к созданию интенсивного коротковолнового источника фемто- и аттосекундных импульсов для различных приложений.

Параметрические усилители света (ПУС), работающие в ближнем ИК-диапазоне, являются многообещающим инструментом для увеличения максимального порядка генерируемых гармоник и экспериментов в области аттонауки. Энергия обрыва спектра ГВГ подчиняется закону $E_c \sim I\lambda^2$ [28], где I — максимальная интенсивность зондирующего поля и λ — его центральная длина волны. В соответствии с этим законом, при использовании длинноволновых источников лазерного излучения возможно увеличение предельной энергии гармоник выше 100 эВ. Другим преимуществом параметрических усилителей света в ближнем ИК-диапазоне является перестройка их длины волны, которая позволяет подстраивать спектр гармоники к ионным переходам с большими значениями сил осциллятора. Эта особенность позволяет наблюдать резонансно усиленные гармоники и расширяет круг плазменных формирований, где это явление могло бы быть реализовано по сравнению со случаем лазеров с практически фиксированной длиной волны в области ~ 800 нм [136]. Кроме того, при использовании двухцветного метода ГВГ применение ПУС ближнего ИК-диапазона позволяет исследовать сложные молекулы в процессе их абляции и ГВГ при использовании перестраиваемого длинноволнового излучения. Эти особенности интересны для спектроскопических приложений ГВГ в ближнем ИК-диапазоне [145, 146].

Между тем использование ПУС ближнего ИК-диапазона для ГВГ должно привести к заметному понижению эффективности генерации гармоник с масштабным коэффициентом λ^{-5} [147, 148]. В связи с этим представляет значительный интерес анализ относительного поведения гармоник, генерируемых в плазме, в случае использования лазерных источников 800 нм и ближнего ИК-диапазона, а также выявление условий, когда снижение эффективности генерации гармоник становится не таким резким благодаря, например, наличию *in situ* генерируемых наночастиц, что повышает эффективность ГВГ. Необходимо отметить, что в предыдущих исследованиях ГВГ в плазме углерода [63] при анализе морфологии напыления от плазменных источников был сделан вывод о формировании наночастиц в процессе лазерной абляции углеродсодержащих мишеней.

Атомарный углерод является химически активным элементом, что обеспечивает устойчивость углеродных многоатомных структур с различными молекулярными конфигурациями. При нормальных условиях все аллотропные формы углерода (графит, алмаз и аморфный углерод) являются твёрдыми телами, однако графит имеет самую высокую термодинамическую стабильность. За последние десять лет лазерная абляция графита интенсивно исследовалась с целью выявления условий для синтеза различных структур с уникальными свойствами. Физические характеристики плазменного образования, такие как концентрация атомов и класте-

ров, непосредственно влияют на свойства материала, сформированного в процессе абляции. Успешный синтез кластеров сильно зависит от формирования атомных и молекулярных компонентов с необходимыми химическими свойствами и способностью к агрегации. Таким образом, чтобы выявить оптимальные условия формирования плазмы для ГВГ, необходимо детальное понимание основных физических процессов, определяющих состав плазмы, созданной в процессе абляции, и надёжных методов контроля структуры плазмы. Упомянутые выше причины и анализ недавних исследований ГВГ в плазме углерода [63], так же как недавно проведённое сравнение ГВГ в плазме, созданной при абляции графита, и в газообразном аргоне [64, 67], были побудительными причинами систематического анализа условий генерации плазмы для реализации оптимальной эффективности ГВГ при абляции графита [73].

7.1. Генерация высших гармоник

в плазме углерода при различных условиях

Высокоинтенсивный импульс титан-сапфирового лазера с длительностью в несколько периодов (центральная длина волны 760 нм, энергия 0,2 мДж, длительность 3,5 фс, частота повторения импульсов 1 кГц) генерировался после второго каскада компрессии, состоящего из полого волоконно-оптического световода, заполненного неоном, и системы chirпированных зеркал [149]. Это излучение использовалось для преобразования в специально подготовленной плазме углерода. Часть некомпрессированного лазерного излучения (центральная длина волны 780 нм, энергия импульса 120 мкДж, длительность импульса 8 пс, частота повторения 1 кГц) выделялась из пучка до каскада предварительной компрессии и фокусировалась в вакуумную камеру для нагрева графитовой мишени и создания плазмы на её поверхности (рис. 17). Этот пикосекундный греющий импульс фокусировался линзой с фокусным расстоянием 400 мм и создавал плазменное образование диаметром 0,5 мм при интенсивности на поверхности мишени $I = 2 \times 10^{10}$ Вт см⁻². Задержка между инициирующим плазму импульсом и началом распространения фемтосекундного импульса была зафиксирована на уровне 33 нс. Для альтернативной абляции использова-

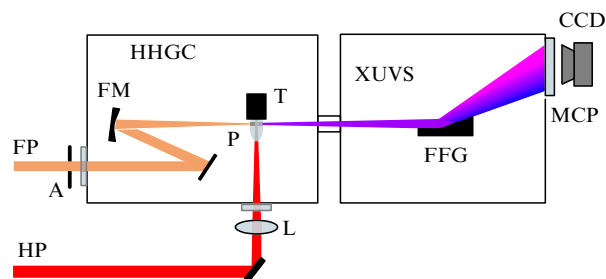


Рис. 17. Экспериментальная установка для исследования генерации гармоник в плазменном образовании. FP — фемтосекундный зондирующий импульс, HP — пикосекундный греющий импульс, А — диафрагма, HHGC — камера для генерации высших гармоник, FM — фокусирующее зеркало, L — фокусирующая линза, Т — мишень, Р — плазма, XUVS — ДУФ-спектрометр, FFG — плосковогнутая дифракционная решётка, MCP — микроканальная пластинка и детектор с фосфорным экраном, CCD — прибор с зарядовой связью [73].

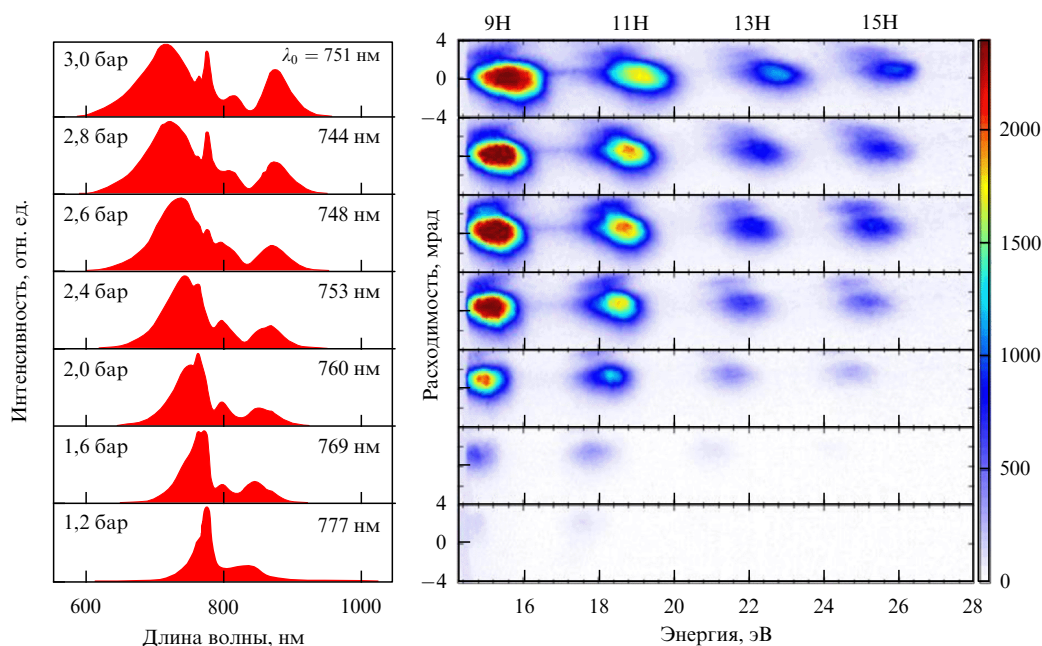


Рис. 18. (В цвете онлайн.) Зависимость спектрального распределения гармоник от давления неона в полном волоконно-оптическом световоде. Слева представлен соответствующий спектр лазера, измеренный перед вакуумной камерой. Плазма создавалась при использовании 10 нс-импульса. λ_0 — средневзвешенная длина волны спектрального распределения. Интенсивность гармоник отмечена цветовой шкалой [73].

лось излучение Nd:YAG-лазера с модуляцией добротности с длительностью импульса 10 нс, длиной волны 1064 нм, частотой повторения импульсов 10 Гц и интенсивностью на поверхности мишени 1×10^9 Вт см $^{-2}$. В этом случае задержка между греющим импульсом длительностью 10 нс и зондирующим 3,5 фс-импульсом изменялась в пределах 10–60 нс для достижения максимума излучения гармоник.

Зондирующее излучение длительностью 3,5 фс, распространяющееся в направлении, перпендикулярном направлению греющего излучения, фокусировалось в лазерную плазму при использовании отражающего зеркала с фокусным расстоянием 400 мм. Положение фокуса относительно области плазмы выбиралось таким образом, чтобы получить максимальный сигнал гармоник, и в этих условиях интенсивность импульса фемтосекундного излучения, согласно оценке, составила $I = 6 \times 10^{14}$ Вт см $^{-2}$. Для ГВГ также использовался зондирующий импульс с длительностью 30 фс, длиной волны 780 нм и энергией 2 мДж от другого титан-сапфирового лазера, работающего с частотой повторения импульсов 1 кГц и создающего приблизительно такую же интенсивность светового поля внутри лазерной плазмы. Детальное описание этой установки и системы регистрации представлено в [67, 69].

Для анализа гармоник излучения ближнего ИК-диапазона в плазме графита использовался ПУС, накачиваемый излучением титан-сапфирового лазера с длительностью импульса 30 фс. Делитель пучка, расположенный перед компрессором лазера, позволял отделять 10 % излучения (длина волны 780 нм, энергия 1 мДж, длительность импульса 160 пс, частота повторения 1 кГц). Это излучение генерировало плазменное образование на мишени графита. Оставшаяся (90 %) часть излучения сжималась в компрессоре до 30 фс для накачки коммерческого ПУС, дающего высокую эффективность преобразования, высокое качество пучка и оптимальную

длительность преобразованных импульсов. Для достижения хорошей воспроизводимости генерируемого импульса все этапы усиления в ПУС проводились в условиях насыщения. Описанная система генерировала излучение с длительностью сигнальных импульсов 35 фс, перестраиваемых в диапазоне 1200–1600 нм. Холостой импульс перекрывал диапазон 1600–2200 нм. Задержка между греющим импульсом, используемым для абляции, и ИК-импульсом, генерируемым ПУС, устанавливалась равной 35 нс, поскольку было определено, что эта задержка является оптимальной для эффективной генерации высших гармоник.

Так как цель исследований состояла в анализе характеристик плазмы, созданной при абляции графита, в условиях эффективной ГВГ ультракоротких лазерных импульсов, этот процесс был, во-первых, оптимизирован для достижения максимальной эффективности преобразования и генерации гармоник максимально возможного порядка с использованием зондирующего излучения как титан-сапфирового лазера с фиксированной длиной волны, так и перестраиваемого ПУС. Далее усилия были сконцентрированы на анализе "оптимального" плазменного образования с использованием трёх методов: оптической эмиссионной спектроскопии излучающих компонентов плазмы в видимом, УФ- и ДУФ-спектральных диапазонах; сканирующей электронной микроскопии для морфологического анализа осаждённых компонентов плазмы и времяпролётной масс-спектрометрии для анализа ионных компонентов плазмы.

Для анализа влияния спектрально-временных характеристик зондирующего излучения на интенсивность генерируемых гармоник изменялось давление неона в полном волоконном световоде второго компрессора, что позволяло варьировать длительность импульса от 25 до 3,5 фс [150]. На рисунке 18 показаны спектры гармоник, изображение которых регистрировалось прибором с зарядовой связью, в диапазоне 15–25 эВ, полученные при

различных начальных спектральных распределений импульсов и давлений неона. Можно легко увидеть, что с увеличением давления (от 1,2 до 3 бар) интенсивность гармоник повышается, в то время как длина волны гармоники испытывает спектральный сдвиг в коротковолновую область. Во время этих экспериментов энергия возбуждающего импульса поддерживалась постоянной.

Интересной особенностью спектров гармоник, генерируемых в плазме углерода, созданной 10 нс-импульсами, является то, что их спектральная ширина была приблизительно в 2–3 раза больше спектральной ширины гармоник, генерируемых в плазме, создаваемой на различных металлических мишенях, при использовании импульсов с длительностью в несколько периодов и при одной и той же плотности энергии и интенсивности греющего импульса. Например, в случае плазмы графита ширина спектра гармоник средних порядков составила 1,5 нм, тогда как для плазменных образований различных металлов (Ag, Al и Cu) эта величина была равна 0,4 нм. Уширение линий гармоник может быть объяснено фазовой самомодуляцией и чирпом основного излучения, распространяющегося в плазме углерода. Присутствие наночастиц в плазменном образовании может также вносить вклад в уширение спектральной линии гармоник.

Для практических применений коротковолнового когерентного излучения, генерируемого в плазме графита при возбуждении лазерным излучением с частотой повторения 1 кГц, необходимо провести анализ стабильности характеристик плазмы и генерируемых гармоник. Предложенная недавно новая методика поддержания устойчивой плазмы, созданной при абляции, для генерации гармоник с помощью лазеров с высокой частотой повторения импульсов, основанная на использовании цилиндрической вращающейся металлической мишени [72], была описана в разделе 6. Исследования [73] показали, что, несмотря на различные свойства металлов и графита, вращающаяся мишень позволяет достигать устойчивой ГВГ в плазме как металлов, так и графита. Вращающийся стержень графита позволяет поддерживать относительно устойчивую генерацию гармоник при количестве лазерных выстрелов более 1×10^6 . В этих исследованиях при использовании 3,5 фс-импульсов регулярно наблюдались гармоники выше 29-го порядка.

На рисунке 19а показан спектр гармоник, генерируемых в случае зондирующего излучения с длиной волны 1300 нм. В условиях формирования плазмы углерода греющими некомпрессированными импульсами данного лазера длительностью 160 пс наблюдались гармоники вплоть до 59-го порядка. Необходимо отметить, что применение излучения с длиной волны 1400 нм, получаемого при перестройке ПУС, не приводило к увеличению максимального порядка генерируемых гармоник по сравнению со случаем излучения 1300 нм. Это наблюдение свидетельствует о том, что генерация гармоник происходит в условиях насыщения.

На рисунке 19б представлен спектр гармоник вплоть до 29-го порядка в случае зондирующего излучения с длиной волны 780 нм и длительностью 30 фс. Из сравнения со спектрами, полученными при возбуждающем источнике с длиной волны 1300 нм (рис. 19а), можно чётко видеть удлинение плато гармоник, ожидаемое в случае длинноволнового преобразуемого излучения. Важными особенностями этих сравнительных исследований явля-

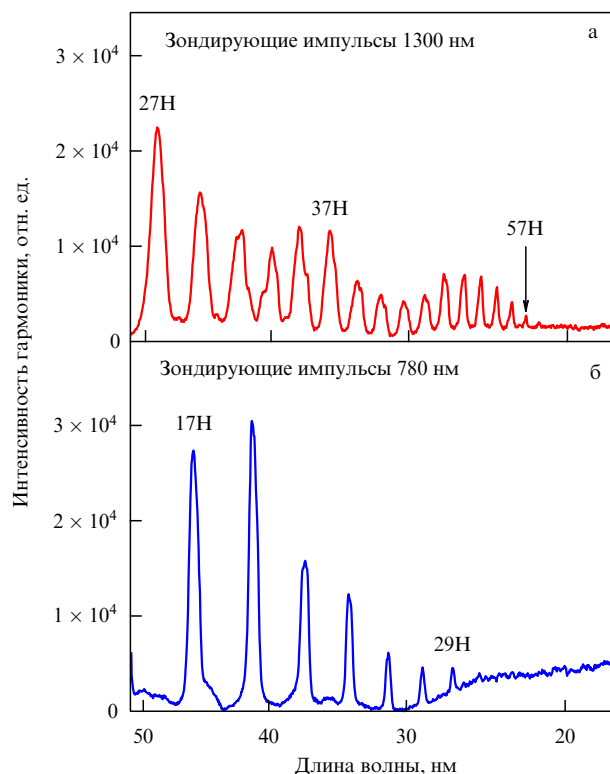


Рис. 19. Спектр гармоник, генерируемых в плазме, при использовании зондирующего излучения с длиной волны 1300 нм (а) и 780 нм (б). Энергия зондирующего импульса составляла 0,2 мДж (а) и 0,54 мДж (б). Абляция создавалась при использовании лазерного излучения длительностью 160 пс с длиной волны 780 нм и частотой повторения импульсов 1 кГц [73].

ются спектры широкополосных гармоник в случае лазерного излучения с длиной волны 1300 нм и примерно одинаковые эффективности генерации гармоник при возбуждающем излучении с двумя разными длинами волн. В то время как первая особенность определяется шириной полосы выходного излучения ПУС, последнее наблюдение требует дополнительного рассмотрения. Интенсивность гармоник, генерируемых в плазме с использованием излучения ближнего ИК-диапазона, не соответствовала ожидаемому правилу $I \propto \lambda^{-5}$. Фактически для значений используемой интенсивности излучений 780 нм и ближнего ИК ($\sim (2-4) \times 10^{14}$ Вт см $^{-2}$) эффективность генерации гармоник в ДУФ-диапазоне, возбуждаемых ближним ИК-излучением, была выше по сравнению со случаем излучения с длиной волны 780 нм, хотя в первом случае использовалась меньшая энергия импульса (0,2 и 0,54 мДж соответственно). Отметим, что соотношение $I \propto \lambda^{-5}$ предсказывает 13-кратное уменьшение эффективности преобразования для ближнего ИК-излучения (1300 нм) по сравнению с излучением 780 нм при равных интенсивностях зондирующего импульса.

7.2. Определение оптимальных условий формирования плазмы

В данном разделе представлены характеристики плазменных образований графита, созданных в процессе абляции, в условиях максимальной эффективности ГВГ. При абляции графита плазменное образование может содержать различные компоненты (нейтральные атомы, ионы, небольшие молекулы, кластеры, агрегаты и т.д.),

которые могут вносить различный вклад в процесс генерации гармоник. Важно выявить их наличие в области, в которой возбуждающий импульс лазерного излучения взаимодействует с расширяющейся плазмой. В частности, в процессе лазерной абляции различных мишеней интенсивным излучением образование и присутствие кластеров в лазерной плазме имеют высокую вероятность, в то время как их наличие и концентрация в области плазмы, образованной излучением умеренной интенсивности, должны быть подтверждены непосредственно. Другая проблема связана с трудностями определения плотности мономеров, димеров и кластеров и степени их влияния на ГВГ. Анализ морфологии осаждённых остатков после абляции может дать информацию о природе этих разновидностей, несмотря на различие между составом плазмы на ранних этапах её создания и осаждённым материалом из-за влияния агрегации на подложке [151]. Ещё один вопрос, представляющий интерес: может ли анализ спектральных характеристик излучения плазмы в видимом и УФ-диапазонах предоставить определённую информацию относительно состояния плазмы без одновременного анализа ДУФ-излучения?

Определение параметров плазмы на основе оптических спектроскопических измерений в видимом, УФ- и ДУФ-диапазонах при различных значениях эффективности ГВГ проводилось с использованием описанного ДУФ-спектрометра (см. рис. 17) и волоконного спектрометра. Плотности энергии греющих импульсов, при которых регистрировались спектры, соответствовали как оптимальным, так и неоптимальным условиям ГВГ. Для измерений ДУФ-спектра время измерений устанавливалось равным 1 с, а для спектров в видимом и УФ-диапазонах — 0,5 с. С помощью сканирующей электронной микроскопии проводилось определение характеристик напылённого материала плазмы, осаждённого на кремниевые подложки, расположенные на расстоянии 4 см от поверхности мишени.

Состав кластеров абляционного факела, созданного наносекундными лазерными импульсами, исследовался методом времяпролётной масс-спектрометрии (ВПМС). Ниже приводится краткое описание экспериментальной установки (детальное описание ВПМС может быть найдено в [152]). Пучок лазерного излучения с длиной волны 1064 нм, энергией импульса 5 мДж и длительностью импульса 10 нс фокусировался в пятно размером 2 мм на поверхность мишени графита при нормальном падении. Интенсивность лазерного излучения на поверхности мишени была равна $1,5 \times 10^9$ Вт см⁻², что соответствовало созданию оптимальной плазмы для эффективной ГВГ при использовании наносекундного греющего импульса. Мишень располагалась в вакуумной камере (остаточное давление $\sim 2 \times 10^{-6}$ бар) между вытягивающим и ускоряющим электродами линейного ВПМС. Поверхность мишени была параллельна пролётной оси спектрометра. Мишень могла вращаться и перемещаться на различные расстояния от оси. Положительные ионы, созданные в процессе абляции, отклонялись по оси ВПМС электрическим полем с типичным значением 300–400 В см⁻¹ и ускорялись при суммарном ускоряющем напряжении 2500 В. При управляемой задержке относительно греющего лазерного импульса для приложения напряжения смещения использовался высоковольтный ключ. Ионы попадали в область дрейфа (длина

пролётной области ~ 1 м) и регистрировались микроканальной пластинкой. Анализ нейтральных компонентов, созданных в процессе абляции, мог быть проведён при помощи второго постионизационного источника лазерного излучения (экимерный F₂-лазер, излучающий на длине волны 157 нм). Постионизационное излучение взаимодействовало с плазменным факелом перпендикулярно оси распространения факела на различных расстояниях от поверхности мишени и при различных задержках относительно греющего лазерного излучения.

Ранее было показано, что эффективное излучение гармоник наблюдается только в случае, когда в излучении плазмы в видимом и УФ-диапазонах доминируют линии нейтральных атомов и однократно заряженных ионов углерода [139]. Исследования [73] также подтвердили эту особенность для оптимальной плотности энергии лазерного излучения, используемой для нагрева поверхности мишени с целью генерации гармоник. Особенности уширения спектров излучения вблизи 470, 515 и 555 нм могут быть связаны с полосами возбуждённых молекул C₂. Эти полосы также наблюдались в ранних исследованиях абляции графита (см., например, [153–155]). Другие линии в спектрах были приписаны нейтральным частицам и однократно заряженным ионам углерода.

Анализ оптических спектров в видимом и УФ-диапазонах не предоставляет информации относительно наличия высокоионизованных компонентов, которые могут быть выявлены при анализе излучения плазмы в ДУФ-диапазоне. ДУФ-спектр плазменных образований углерода, полученный после возбуждения высокоинтенсивным греющим 8 пс-импульсом и без дальнейшего возбуждения зондирующим импульсом, даёт определённую информацию о компонентах плазмы до взаимодействия с возбуждающим излучением. Этот спектр был получен в условиях значительного снижения нелинейно-оптического отклика среды (т.е. при слабой ГВГ) и выявил появление многих излучательных линий ионов C II и C III. Чрезмерное возбуждение мишени 10 нс-импульсами также приводило к появлению излучения многозарядных ионов (C III, C IV).

Можно отметить, что эти измерения были интегральными по времени, так что нельзя было точно говорить о наличии некоторых компонентов плазмы в момент распространения фемтосекундного пучка в плазме. Однако присутствие линий многозарядных ионов достаточно уверенно свидетельствует о чрезмерном возбуждении мишени и его отрицательном влиянии на эффективность ГВГ. Следует обратить внимание на то, что при этом уровне возбуждения плазмы графита генерация гармоник была частично или полностью подавлена. В частности, двукратное увеличение интенсивности 8 пс-импульса (с 2×10^{10} до 4×10^{10} Вт см⁻²) приводило к уменьшению интенсивности гармоник в 2,5 раза. То же можно сказать относительно возбуждения при использовании более протяжённого (10 нс) импульса, хотя порог, при котором гармоники начинали затухать, был значительно ниже (2×10^9 Вт см⁻²). Применение 10 нс-импульса с интенсивностью 3×10^9 Вт см⁻² приводило к существенному снижению эффективности гармоник и к появлению линий излучения многозарядных ионов. Отметим, что в условиях эффективной ГВГ никакие линии ионов не появляются рядом со спектрами гармоник.

Для доказательства наличия кластеров в плазме углерода при оптимальных условиях генерации гармоник была проанализирована морфология осаждённых остатков плазмы, созданной в процессе абляции графита нано- и пикосекундными импульсами. Уже было упомянуто, что лазерная абляция твердотельных материалов является методом, широко используемым для создания наночастиц. Однако этот процесс ранее исследовался без учёта роли свободных электронов и высоко-возбуждённых ионов, которые нарушают оптимальные условия фазового согласования для ГВГ. Измерения с помощью СЭМ осаждённых компонентов плазмы были выполнены в условиях лазерной абляции, соответствующих формированию оптимальной плазмы для эффективной ГВГ. Подложки (стеклянные и кремниевые пластины), используемые для сбора осаждённого материала, размещались на расстоянии 40 мм перед областью абляции, и затем осаждённый материал анализировался с использованием СЭМ.

При оптимальных условиях создания углеродной плазмы, при которых реализовывалась высокая эффективность преобразования в высшие гармоники при абляции 8 пс-импульсами, СЭМ-изображения не указывали на наличие в осаждённых остатках наночастиц с размерами, большими предела обнаружения микроскопа (5 нм). Вероятно, это было обусловлено невысокой плотностью энергии греющего излучения ($0,2 \text{ Дж см}^{-2}$) на поверхности мишени при интенсивности $I = 2,5 \times 10^{10} \text{ Вт см}^{-2}$. Возможно, что в случае плазмы углерода, созданной в этих условиях, гармоники могли также генерироваться в наночастицах с размерами, меньшими предела обнаружения. Другая картина наблюдалась при абляции мишени импульсами длительностью 10 нс, когда значительно более высокая плотность энергии греющего импульса (10 Дж см^{-2}) вызывала появление наночастиц на подложках с осаждёнными элементами плазмы. При относительно умеренных условиях абляции с использованием 10 нс-импульсов ($I \approx (1-2) \times 10^9 \text{ Вт см}^{-2}$) на микрофотографиях плазменных осадений проявлялась высокая плотность наночастиц с размерами, распределёнными в основном в диапазоне между 10 и 200 нм, и со средним размером 50 нм (рис. 20а). Необходимо повторить, что эти характеристики напылённых компонентов плазмы были измерены при максимальной эффективности преобразования в 15-ю–23-ю гармоники. Описанные морфологические исследования подтвердили наличие относительно крупных наночастиц, осаждённых на подложке в условиях "оптимальной" абляции при использовании 10 нс-импульсов. Однако всё ещё остаётся некоторая неопределённость относительно связи полученных результатов с наличием тех же наночастиц в плазме углерода в процессе генерации гармоник из-за возможности агрегации этих наночастиц в кластеры после осаждения. Для прояснения данной проблемы была использована ВПМС графита, генерируемого при абляции наносекундными импульсами.

На рисунке 20б показан масс-спектр плазмы углерода после 60 выстрелов 10 нс-импульсами. Исследования показали, что в условиях состояния плазмы, близкого к оптимальному для ГВГ, лазерный факел содержит группу небольших однократно ионизованных кластеров углерода ($C_{10}-C_{30}$). Попытки найти кластеры с большей массой потерпели неудачу, хотя их поиск был выполнен

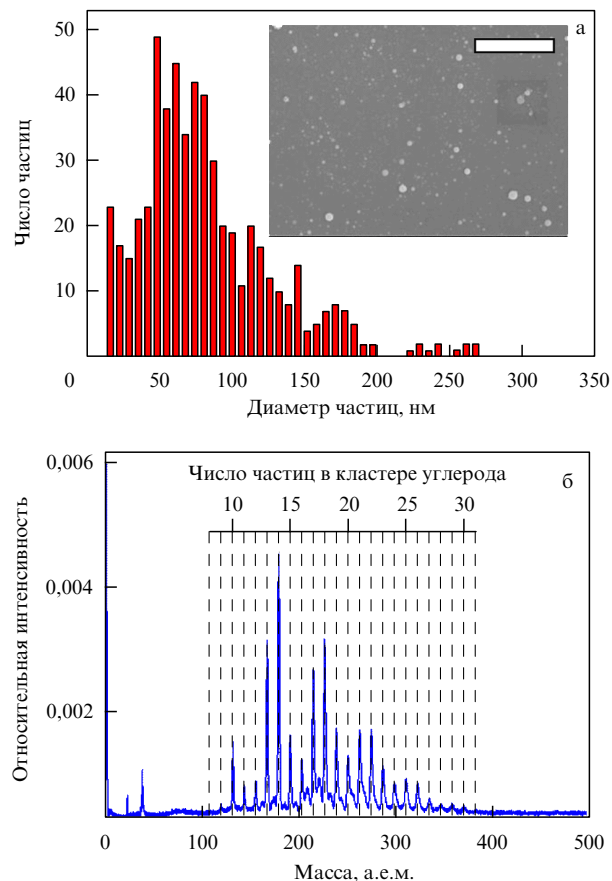


Рис. 20. (а) Гистограмма распределения по размерам осаждённых наночастиц и соответствующее СЭМ-изображение осаждённых остатков в случае абляции графита лазерными импульсами длительностью 10 нс. Размер полосы на СЭМ-изображении равен 2 мкм. (б) Масс-спектр (в атомных единицах массы) плазмы углерода, полученный во время возбуждения мишени графита при использовании импульсов длительностью 10 нс в условиях, близких к условиям формирования оптимальной плазмы для ГВГ [73].

по более протяжённому диапазону задержек между началом лазерной абляции и включением запускающего импульса ВПМС.

Для установления с помощью ВПМС наличия нейтральной составляющей в плазме, созданной при абляции, необходимо использовать дополнительный источник ионизации. В данном случае для этих целей служил постиионизационный эксимерный F_2 -лазер ($\lambda = 157 \text{ нм}$). Фотоны на этой длине волны могут стимулировать ионизацию нейтральных кластеров при однофотонном поглощении. Однако при фокусировке излучения с $\lambda = 157 \text{ нм}$ в область плазмы в масс-спектрах не было найдено никаких свидетельств присутствия нейтральных кластеров. Это можно объяснить тем фактом, что потенциал ионизации углерода ($I_i = 11,2 \text{ эВ}$) выше энергии фотона ионизирующего лазерного излучения ($E = 7,9 \text{ эВ}$), а ионизация кластеров углерода при двухфотонном поглощении излучения с $\lambda = 157 \text{ нм}$ затруднена из-за низкой интенсивности этого излучения в плазме.

Для условий абляции мишени, близких к экспериментальным (т.е. при интенсивности $2 \times 10^{10} \text{ Вт см}^{-2}$ в случае 8 пс-импульсов и $1 \times 10^9 \text{ Вт см}^{-2}$ в случае 10 нс-импульсов), концентрация плазмы углерода, при которой возможна эффективная генерация гармоник, была рассчитана с использованием трёхмерной молекулярно-

Таблица 3. Вычисления концентрации плазмы при различных интенсивностях импульсов длительностью 8 пс и 10 нс, нагревающих графитовую мишень

Интенсивность, 10^9 Вт см^{-2}	Концентрация плазмы, 10^{17} см^{-3}	
	8 пс	10 нс
6,6	1,1	
20	2,6	
60	4,0	
0,33		10
1		25
3		37

динамической модели для анализа лазерной абляции графита на основе программы молекулярной динамики ИТАР IMD [156]. Для этих условий были определены концентрации, равные $2,6 \times 10^{17} \text{ см}^{-3}$ и $2,5 \times 10^{18} \text{ см}^{-3}$ соответственно. Результаты вычислений концентрации плазмы углерода для различных интенсивностей греющих 8 пс- и 10 нс-импульсов представлены в табл. 3.

7.3. Анализ генерации высших гармоник и характеристик плазмы

В недавних исследованиях полагалось, что присутствие наночастиц в плазме углерода, созданной при лазерной абляции, может объяснить причину наблюдения интенсивных гармоник в этой среде [63]. Сообщалось, что продукты абляции графита и углерода содержали наночастицы с размерами в диапазоне 100–300 нм. В связи с этим авторы [63] полагали, что наночастицы, сформированные в плазме при абляции, являлись источниками интенсивных гармоник. Среди процессов, которые могут привести к формированию и распаду наночастиц, можно выделить неоднородную дезинтеграцию, выброс и фрагментацию жидкой фазы, однородное зародышеобразование и разложение [157–159]. В этих исследованиях для определения агрегационных состояний испарённого материала использовалось множество различных методов, включая эмиссионную спектроскопию с временным разрешением, формирование изображений плазменных факелов с использованием прибора с зарядовой связью, рэлеевское рассеяние и лазерно-индуцированную флуоресценцию.

В работе [73] для определения характеристик плазмы применялись СЭМ для анализа напылённых элементов плазмы и ВПМС. Эти два метода предоставили полезную информацию относительно условий и динамики плазменного образования, сформированного выше поверхности мишени. Несмотря на то что первый метод дал определённую информацию относительно наличия наночастиц в плазме, необходимо проведение более тщательного рассмотрения. Это обусловлено тем, что процесс осаждения на подложку происходит намного позже, чем ГВГ, и физическое осаждение может привести к дальнейшей агрегации. Так как СЭМ является методом *ex situ*, то нельзя исключить различия между реальным составом кластеров в плазме и результатами СЭМ-измерений, хотя этот метод ясно доказывает наличие кластеров в плазме. ВПМС предоставляет более полную информацию относительно наличия ионизованных кластеров *in situ*, хотя этот метод требует проведения абляции мишени при тех же условиях, как и в случае экспериментов по ГВГ, и не совсем удобен для обнару-

жения нейтральных наночастиц в плазме, созданной в процессе абляции.

ВПМС-измерения не выявили наличия нейтральных кластеров в плазме, созданной 10 нс-импульсами, по причинам, описанным в разделе 7.2. Однако другие исследования (см., например, [154]) при использовании двухфотонной ионизации излучением AgF-лазера (энергия фотона 6,4 эВ) указывали на наличие нейтральных кластеров углерода. Ранее при абляции излучением с $\lambda = 532 \text{ нм}$, длительностью импульса 10 нс и плотностью энергии 3 Дж см^{-2} ВПМС-исследования лазерной абляции графита выявили типичные характеристики расширяющихся составляющих плазмы (средняя скорость $1,5 \times 10^5 \text{ см с}^{-1}$) и их концентрацию ($4 \times 10^{18} - 6 \times 10^{19} \text{ см}^{-3}$ [160]). Представленное на рис. 20б измеренное распределение по массам, показывающее наличие компонентов от C_{10} до C_{30} , находится в хорошем согласии с распределениями, наблюдавшимися в более ранних исследованиях плазмы, созданной при абляции графита в подобных условиях возбуждения [160]. Об ограничении размеров кластеров до небольших по размерам наночастиц углерода также сообщалось в [161], где было показано, что для наблюдения кластеров крупнее C_{32} необходимо создать условия более сильного возбуждения. В этом случае следует ожидать появления замкнутых структур, объединённых кольцами с пятью и шестью атомами. Было подтверждено, что фуллерены C_{60} и C_{70} вносят основной вклад в спектр тяжёлых ионов плазменных образований углерода при высокой плотности энергии абляции. Также предполагалось [160], что плазма является достаточно плотной для роста кластеров в результате ион-молекулярных реакций. За формирование кластерных ионов углерода может быть ответствен кинетический механизм, согласно которому, в соответствии с моделью сверхзвукового захвата, происходит значительное охлаждение кластеров. Рост кластеров основан на поэтапном присоединении к ним малых нейтральных компонентов углерода.

Усиленная генерация гармоник в наночастицах по сравнению с одиночными атомами или ионами может быть связана с более высокой концентрацией нейтральных атомов, неизбежно сопровождающей появление наночастиц. Увеличение сечения рекомбинации электронов в кластерах по сравнению с атомами может также потенциально повысить эффективность ГВГ в плазме, содержащей наночастицы. Ранее исследования ГВГ на газовых кластерах [146, 162, 163], так же как в плазменных образованиях, содержащих различные наночастицы (Ag, Au, BaTiO_3 и т.д.) [136, 139], подтвердили эти предположения, демонстрируя усиленную ГВГ в кластерах по сравнению с одиночными атомами и ионами. Дальнейшее свидетельство вклада кластеров в повышение генерации гармоник получено в результате исследования высокоинтенсивной лазерной абляции мишени серебра [51], что подтвердило предположения относительно участия генерируемых *in situ* наночастиц в процессе ГВГ.

Наблюдение более протяжённого плато гармоник в случае зондирующего излучения 1300 нм также объясняется причастностью кластеров к процессу ГВГ импульсов в ближнем ИК-диапазоне. Допуская снижение интенсивности гармоник с ростом длины волны возбуждающего излучения в средах, содержащих моночастицы ($I \propto \lambda^{-5}$, [147, 148, 164, 165]), мы можем ожидать снижения интенсивности гармоник ближнего ИК-излучения,

по крайней мере, на один порядок по сравнению с сигналом, генерируемым излучением с длиной волны 780 нм при прочих равных условиях, в частности, энергии и длительности импульса. Однако в эксперименте не было обнаружено значительного различия между интенсивностями гармоник, генерируемых этими двумя возбуждающими источниками (см. рис. 19). Энергия импульса излучения с $\lambda = 1300$ нм в области плазмы (0,2 мДж) была при этом даже ниже энергии импульса излучения титан-сапфирового лазера (0,54 мДж). Это наблюдение предполагает вовлечение в рассмотрение определённого механизма, который компенсирует ожидаемое значительное снижение эффективности генерации гармоник длинноволнового лазерного излучения. Причастность кластеризованной компоненты лазерной плазмы к процессу преобразования частоты может, по-видимому, объяснить наблюдаемое несоответствие с теоретическими предсказаниями по закону $I \propto \lambda^{-5}$, выведенному для случая атомных составляющих [166, 167].

В принципе повышение интенсивности гармоник, генерируемых в плазме углерода в диапазоне 15–26 эВ, может объясняться влиянием поверхностных плазменных резонансов наночастиц, аналогично случаю фуллеренов [3] в области их гигантского резонанса вблизи 20 эВ. Для доказательства этого в случае плазмы углерода необходимо найти свидетельство гигантского поглощения в вышеупомянутом диапазоне, но в литературе пока таких сообщений не было. Плазменные свойства наночастиц углерода могут быть ответственны за наблюдаемое повышение гармоник в углероде, однако определение их роли требует дополнительного изучения. Другим вариантом объяснения высокого выхода гармоник, генерируемых в плазменном факеле углерода, является косвенная причастность кластеров к процессу ГВГ. Эти кластеры, даже не будучи непосредственными эмиттерами гармоник, могут в значительной степени увеличивать локальное поле, аналогично недавно сообщённым результатам исследований, в которых для повышения эффективности ГВГ в газах были использованы наночастицы золота [166, 167].

Ранее отмечалось, что недавние сравнительные исследования эффективности генерации гармоник низкого порядка в газе (аргон) и плазме (углерод) продемонстрировали более высокую эффективность преобразования в плазме углерода [64, 67]. В настоящем разделе мы обсудили улучшенные свойства плазмы графита, созданной при абляции, для ГВГ. К некоторым аргументам, которые могли бы объяснить возрастание интенсивности высших гармоник в этой среде, можно отнести следующие: 1) мишень графита позволяет легче генерировать относительно плотную плазму углерода и создавать адекватные условия фазового согласования для генерации гармоник низкого порядка, 2) первый потенциал ионизации углерода достаточно высок для предотвращения появления высокой концентрации свободных электронов (условие, которое не обязательно выполняется в плазменных образованиях металлов), 3) при оптимальных условиях ГВГ перед взаимодействием с фемтосекундным лазерным импульсом нейтральные атомы углерода доминируют в плазменном образовании углерода, 4) во время лазерной абляции углерода происходит формирование многочастичных кластеров, которые могут повышать эффективность ГВГ.

8. Генерация одиночных фемтосекундных импульсов дальнего УФ-излучения в плазме Mn, созданной в процессе абляции

В настоящем разделе обсуждается ГВГ в плазме одного из переходных металлов — марганца. Эти металлы являются весьма многообещающими материалами мишеней благодаря наличию гигантских резонансов. Сечение фотоионизации Mn^+ равно ~ 40 Мб при энергии фотона 50 эВ [168], тогда как при той же энергии фотона атомы инертных газов имеют сечение в диапазоне 1–8 Мб [169]. Фоторекомбинация — третья ступень столкновительной модели — является процессом, обратным фотоионизации [170], поэтому одни и те же резонансы должны проявляться в процессах ГВГ и фотоионизации. Это подтверждается не только предыдущими экспериментами по резонансному возбуждению лазерной плазмы переходных металлов, но и недавними исследованиями ГВГ в ксеноне [171].

Резонансно-индуцированное усиление одиночной гармоники лазерного излучения позволило значительно улучшить эффективность генерации гармоник в некоторых спектральных областях ДУФ, что было связано с высокими значениями сил осцилляторов некоторых переходов ионов металлов. Это подтверждалось результатами многих исследований, которые последовали после первого наблюдения такого явления в плазме индия [30]. В частности, сообщалось об усилении гармоник в плазме Cr [33] и Mn [40]. Плазма Mn представляет особый интерес, поскольку в ней генерировалась самая высокая гармоника среди всех плазменных образований (101-я гармоника излучения титан-сапфирового лазера [40]). В предыдущих исследованиях плазмы Mn использовались сравнительно протяжённые лазерные импульсы (30 фс [40] и 140 фс [172]) и наблюдалась генерация всех гармоник в области плато наряду со значительно усиленными гармониками вблизи 50 эВ.

Недавний прогресс в области генерации импульсов с длительностью в несколько периодов световой волны позволил исследовать разнообразные новые эффекты, включая генерацию отдельного аттосекундного импульса в газовых средах [173–175]. В связи с этим представляется интересным провести анализ резонансно-индуцированных процессов, наблюдаемых в абляционном факеле при использовании самых коротких зондирующих лазерных импульсов. Ниже представлен анализ экспериментов по резонансному усилению в плазме марганца при использовании импульсов длительностью 3,5 фс [129]. Наиболее интересной особенностью, наблюдаемой в этих экспериментах, являлось подавление почти всех соседних гармоник вблизи резонансно-усиленной одиночной гармоники при энергии фотона ~ 50 эВ (см. также раздел 4).

Экспериментальная схема была аналогична схеме, представленной в разделе 7 этого обзора (см. рис. 17). В случае распространения 3,5 фс-импульса в плазме марганца спектр гармоник существенно отличался от спектров, полученных в других образцах плазмы, проанализированных в отдельных экспериментах (например, в плазме Ag). В то время как во всех других исследуемых плазменных образцах наблюдались относительно однообразные спектры гармоник с увеличенной областью обрыва плато (рис. 21а), плазма Mn позволяла генерировать одиночную гармонику, существенно

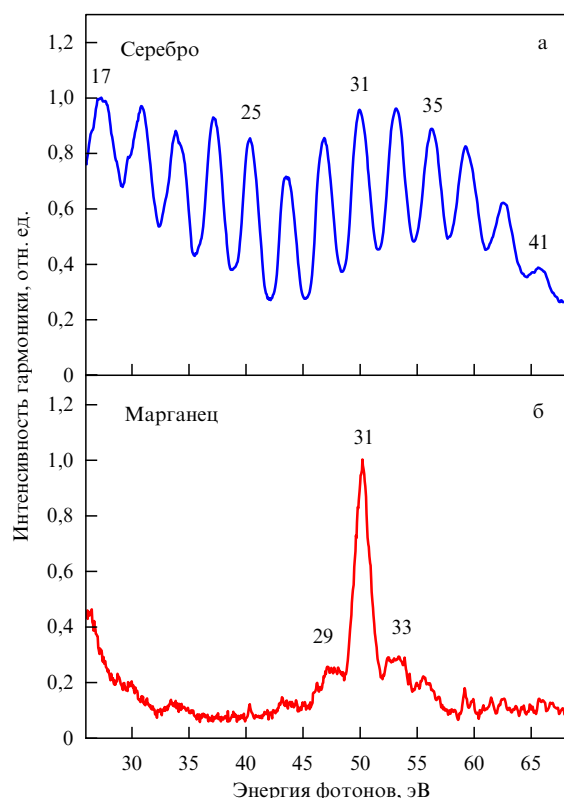


Рис. 21. Спектр гармоник, генерируемых в плазме серебра (а) и марганца (б) [129].

усиленную по сравнению с соседними гармониками (рис. 21б).

Выше уже отмечалось, что в плазме марганца для импульсов с длительностью 30 и 140 фс спектры гармоник также усиливались вблизи 50 эВ. Предположение о резонансной природе усиления в этой спектральной области гармоник излучения титан-сапфирового лазера с длиной волны ~ 800 нм подтверждается наличием "гигантского" резонанса вблизи 50 эВ, выявленного в экспериментальных [168, 176] и теоретических [177] исследованиях. Усиление одиночной гармоники может быть обусловлено влиянием широкополосных резонансов ионов некоторых металлов, таких как V, In, Cd, Cr и Mn. Эти гигантские резонансы экспериментально наблюдались в работах [168, 176, 178] и недавно обсуждались теоретически [49, 111, 113, 114] (см. также раздел 4).

Однако в предыдущих исследованиях [40, 172] при использовании зондирующих импульсов с большим числом периодов интенсивность усиленных гармоник была только в несколько раз выше интенсивности соседних гармоник. Такие же особенности повторялись в исследованиях [129] при использовании 40 фс-импульса другого титан-сапфирового лазера при сравнимой величине интенсивности излучения внутри лазерной плазмы (4×10^{14} Вт см $^{-2}$). Спектр, представленный на рис. 22а, демонстрирует несколько усиленных гармоник начиная с 31-го порядка до протяжённого второго плато. Увеличение максимального порядка генерируемых гармоник, превышающего 71-й порядок, обуславливается тем, что в качестве источника ГВГ выступают двукратно заряженные ионы Mn. Ранее сообщалось об этой особенности генерации гармоник в плазме Mn [40]. Здесь также представлен характерный спектр гармоник, генерируе-

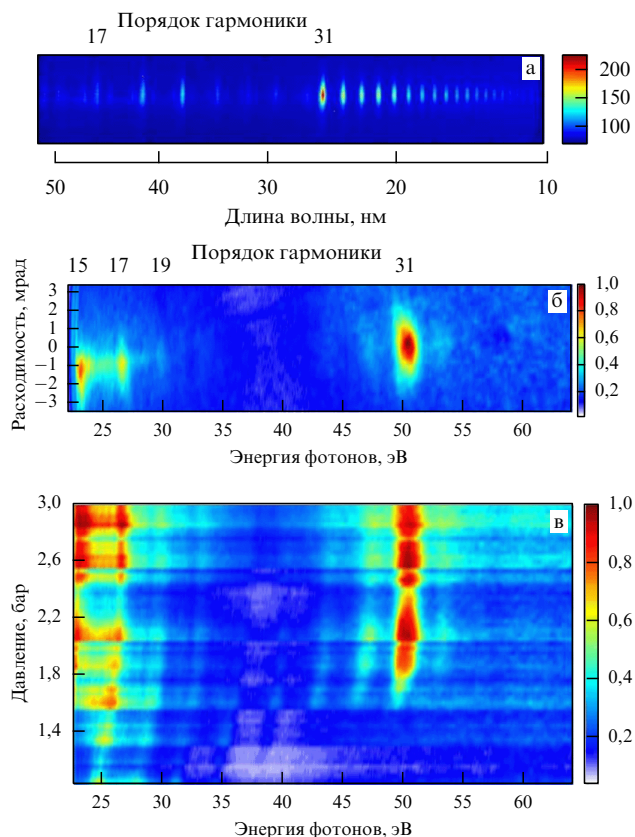


Рис. 22. (В цвете онлайн.) Спектральные распределения гармоник, генерируемых в плазме марганца в случае зондирующих импульсов длительностью 40 фс (а) и 3,5 фс (б) при одной и той же интенсивности. (в) Спектральные распределения гармоник, генерируемых в плазме Mn при различных давлениях неона в полном волоконно-оптическом световоде при одинаковой энергии импульса зондирующего лазерного излучения [129].

мых в Mn в случае 3,5 фс-импульсов (рис. 22б). Для импульсов с длительностью в несколько периодов не наблюдается никакого второго плато, которое было получено в случае импульсов с большим количеством периодов световой волны (40 фс). Наиболее интересным являлось наблюдение уширенной (2,5 эВ) одиночной 31-й гармоники. В спектральном диапазоне 30–65 эВ наблюдаются только две слабые соседние гармоники (вблизи сильного излучения). Отношение между значениями интенсивности усиленной гармоники и слабой соседней гармоники превысило один порядок. Обратим внимание на то, что при низкой интенсивности фемтосекундного импульса ($< 2 \times 10^{14}$ Вт см $^{-2}$) эта сильная гармоника исчезала при использовании импульсов с длительностью, равной как многим, так и нескольким периодам.

Отличительная структура спектров гармоник, полученных в случае как 40 фс-, так и 3,5 фс-импульсов, ясно указывает на влияние резонансов Mn, расположенных вблизи 50–51 эВ. То же можно сказать относительно параметров фотоионизации или фотопоглощения плазмы Mn^+ , которые наблюдаются благодаря гигантскому резонансу $3p \rightarrow 3d$ [168]. Была проанализирована зависимость излучения в области 50 эВ от поляризации лазерного импульса и найдено, что интенсивность этого излучения резко уменьшается с изменением поляризации зондирующего фемтосекундного импульса от линейной

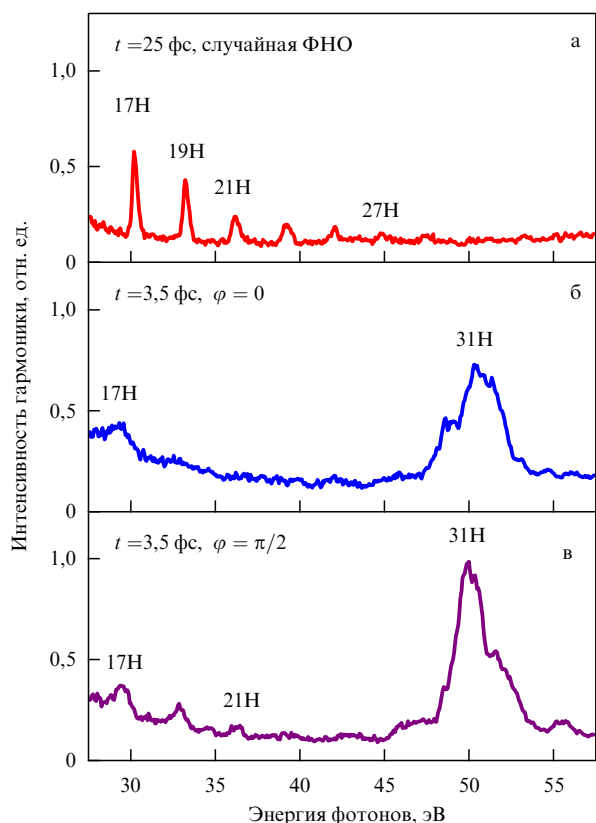


Рис. 23. Экспериментальный спектр гармоник, генерируемых в плазме марганца в случае отсутствия газа в полном волоконно-оптическом световоде компрессора ($t = 25$ фс) и случайной ФНО (а) и при давлении неона 3 бар ($t = 3,5$ фс) и фиксированной ФНО ($\varphi = 0$ (б); $\varphi = \pi/2$ (в)). φ — значение фазы несущей огибающей волны [129].

до эллиптической. Это является отличительной чертой излучения, генерируемого в процессе ГВГ.

Для анализа влияния спектрально-временных характеристик фемтосекундного излучения на интенсивность гармоник изменялось давление неона в полном волоконно-оптическом световоде второго каскада компрессора, что приводило к изменению длительности импульса, возбуждающего гармоники [140]. На рисунке 22в представлен спектральный состав и интенсивность спектров гармоник в марганце в диапазоне 22–62 эВ в зависимости от давления неона в полном волоконно-оптическом световоде. Можно видеть, что с ростом давления (от 1 до 2,3 бар) интенсивность одиночной 31-й гармоники меняется от почти нулевого уровня до её максимально высокого значения. Также виден сдвиг гармоник в коротковолновую область. На распределение гармоник не влияло дальнейшее повышение давления неона до 3 бар, при котором были выполнены эксперименты с 3,5 фс-импульсом.

Описанные эксперименты были проведены без стабилизации фазы несущей огибающей (т.е. для случайного значения ФНО). Эксперименты по ГВГ в плазме Mn при использовании 3,5 фс-импульсов также были выполнены со стабилизированной ФНО (в частности, при значениях фаз $\varphi = 0$ и $\pi/2$), и в этом случае никаких существенных отличий обнаружено не было (рис. 23), хотя небольшое изменение распределения гармоник наблюдалось для гармоник низших порядков (ср. кривые на рис. 23б,в). При указанных двух фиксированных значениях ФНО спектральный вид излучения 31-й гармоники был вполне

сопоставим, в то время как сохранялось значительное отличие спектров гармоник по сравнению с большей продолжительностью импульса и низкой интенсивностью возбуждающего импульса. На рисунке 23 представлены результаты измерения ГВГ для 25 фс-импульса (а) и 3,5 фс-импульса (б, в) при одинаковой энергии импульсов (0,2 мДж). Из рисунка хорошо видно отсутствие расширения области плато гармоник и резонансно-индуцированной ГВГ в случае низкой интенсивности 25 фс-импульсов.

В случае 3,5 фс-импульсов отсутствие сильной зависимости спектров гармоник в плазме от ФНО могло быть также следствием наличия существенного количества свободных электронов в плазме марганца, которое могло бы уменьшать различие между спектрами ГВГ, зарегистрированными при различных значениях ФНО. То же можно сказать относительно других экспериментов по ГВГ при использовании плазмы серебра и латуни, которые не продемонстрировали существенных отличий в спектрах гармоник при сравнении импульсов длительностью в несколько периодов с фиксированной и случайной ФНО. Между тем при подобных экспериментальных условиях были выполнены сравнительные исследования в газовых средах, и были выявлены характерные зависимости спектров ГВГ от ФНО, обычно наблюдаемые при этих условиях. Таким образом, отсутствие влияния ФНО на структуру гармоник, генерируемых в плазменном факеле излучением длительностью в несколько периодов, по-видимому, является общей особенностью ГВГ в плазме.

9. Заключение

ГВГ в плазме открывает новые перспективы во многих, порой неожиданных, областях взаимодействия света с веществом. Помимо рассмотрения в качестве альтернативного метода генерации когерентного ДУФ-излучения, она может использоваться в качестве мощного инструмента для различных спектроскопических и аналитических приложений. Некоторые из этих приложений уже реализовались во время недавних исследований ГВГ в плазме. Применение двукратно заряженных ионов для генерации высших гармоник продемонстрировало многообещающее увеличение порядков генерируемых гармоник без необходимости использования возбуждающего излучения с длительностью в несколько периодов. Эффективность преобразования может быть существенно повышена при использовании резонансов в атомных или ионных системах, как это было показано в случае гармоник низшего порядка. Этот эффект уже был продемонстрирован в экспериментах по генерации гармоник в плазме индия и других металлов. Огромное разнообразие материалов может быть использовано для создания плазмы с помощью лазерного излучения, увеличивая, таким образом, шансы для отбора подобных резонансов с излучением титан-сапфировых лазеров. Кроме того, было показано, что двухцветная накачка увеличивает интенсивность высших гармоник и оказывает существенное влияние на спектр гармоник в инертных газах. Для генерации гармоник в плазме, где недавно была опробована данная методика, это будет служить новым методом для нелинейной спектроскопии переходов ионов, обладающих высокими значениями сил осцилляторов.

Дальнейшее применение описанной методики может быть связано с такими областями, как использование резонансных гармоник, генерируемых в плазме в ДУФ-диапазоне, в качестве затравки излучения лазеров на свободных электронах; генерация гармоник в плазме при использовании импульсов с длительностью в несколько периодов для соответствующей генерации пуга аттосекундных импульсов; применение эндоэдральных фуллеренов для ГВГ в плазме; совместная генерация гармоник в газе и плазме; анализ молекулярных структур посредством анализа спектров гармоник, генерируемых в плазме ориентированных молекул; поиск методов квазисинхронного взаимодействия в плазменных образованиях; использование одиночной гармоники для изучения поверхности; структурный анализ многомерных формирований в лазерной плазме; генерация усиленных пугов и отдельных аттосекундных импульсов; ГВГ в квазитвёрдом теле; применение схем с двойными мишенями для формирования плазмы; применение лазерных источников ИК-диапазона (2–5 мкм) для расширения плато гармоник; анализ компонентов плазмы посредством ГВГ и т.д.

В заключение хотелось бы повторить, что ГВГ в плазме может быть весьма привлекательна во многих, порой неожиданных, областях взаимодействия света с веществом. Помимо рассмотрения в качестве альтернативного метода для генерации когерентного ДУФ-излучения, ГВГ в плазме может использоваться в качестве мощного инструмента для различных спектроскопических и аналитических приложений.

Автор выражает глубокую признательность своим многочисленным коллегам, с которыми было выполнено большинство исследований, представленных в настоящем обзоре. Автор отдельно благодарит Х. Куроду, Дж.П. Марангоса, Дж.В.Г. Тиша, П.Д. Гупту, П.А. Наика, М. Лейна, В.В. Стрелкова, Э. Фиордилино, К. Хатчисона, Х. Сингхала, П.В. Редькина, Т. Усманова, И.А. Кулагина, М. Тудоровскую, М. Хохлову, Г.С. Болтаева и Н.Х. Сатликова за сотрудничество и плодотворное обсуждение различных аспектов генерации гармоник в лазерной плазме, проанализированных в данном обзоре. Автор благодарен поддержке Международного Фонда Марии Кюри в рамках 7-й рамочной программы ЕЭС (грант № PIF-GA-2009-253104) и Фонда Фольксваген (грант № 85 124).

Список литературы

- Ganeev R A *Laser Phys.* **18** 1009 (2008)
- Ganeev R A *Open Spectrosc. J.* **3** 1 (2009)
- Ganeev R A *Laser Phys.* **21** 25 (2011)
- Ganeev R A *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **40** R213 (2007)
- Ганеев Р А *УФН* **179** 65 (2009) [Ganeev R A *Phys. Usp.* **52** 55 (2009)]
- Tsakiris G D et al. *New J. Phys.* **8** 19 (2006)
- Dromey B et al. *Nature Phys.* **2** 456 (2006)
- Reitze D H et al. *Opt. Lett.* **29** 86 (2004)
- Pfeifer T et al. *Appl. Phys. B* **80** 277 (2005)
- Froud C A et al. *Opt. Lett.* **31** 374 (2006)
- Gibson E A et al. *Science* **302** 95 (2003)
- Kazamias S et al. *Phys. Rev. Lett.* **90** 193901 (2003)
- Teubner U et al. *Phys. Rev. A* **67** 013816 (2003)
- Norreys P A et al. *Phys. Rev. Lett.* **76** 1832 (1996)
- Pert G J *Phys. Rev. A* **75** 023808 (2007)
- Ozaki T et al. *Phys. Rev. Lett.* **89** 253902 (2002)
- Grüner F et al. *Appl. Phys. B* **86** 431 (2007)
- Corkum P B, Krausz F *Nature Phys.* **3** 381 (2007)
- Figueira de Morisson Faria C et al. *Phys. Rev. A* **65** 023404 (2002)
- Taïeb R et al. *Phys. Rev. A* **68** 033403 (2003)
- Силин В П, Силин П В *УФН* **177** 763 (2007) [Silin V P, Silin P V *Phys. Usp.* **50** 729 (2007)]
- Akiyama Y et al. *Phys. Rev. Lett.* **69** 2176 (1992)
- Kubodera S et al. *Phys. Rev. A* **48** 4576 (1993)
- Wahlström C-G et al. *Phys. Rev. A* **51** 585 (1995)
- Theobald W et al. *Opt. Commun.* **120** 177 (1995)
- Ganeev R A, Redkorechev V I, Usmanov T *Opt. Commun.* **135** 251 (1997)
- Corkum P B *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994 (1993)
- Гладков С М, Коротеев Н И *УФН* **160** (7) 105 (1990) [Gladkov S M, Koroteev N I *Sov. Phys. Usp.* **33** 554 (1990)]
- Ganeev R et al. *Opt. Lett.* **30** 768 (2005)
- Ganeev R A et al. *Opt. Lett.* **31** 1699 (2006)
- Ganeev R A et al. *Phys. Rev. A* **74** 063824 (2006)
- Ganeev R A et al. *J. Appl. Phys.* **99** 103303 (2006)
- Ganeev R A et al. *Opt. Lett.* **32** 65 (2007)
- Ganeev R A et al. *Appl. Phys. B* **81** 1081 (2005)
- Ganeev R A et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **23** 2535 (2006)
- Suzuki M et al. *Opt. Lett.* **31** 3306 (2006)
- Ganeev R A et al. *Phys. Rev. Lett.* **102** 013903 (2009)
- Ganeev R A et al. *Appl. Phys. B* **87** 243 (2007)
- Suzuki M et al. *Opt. Express* **15** 4112 (2007)
- Ganeev R A et al. *Phys. Rev. A* **76** 023831 (2007)
- Ganeev R A et al. *Phys. Lett. A* **339** 103 (2005)
- Elouga Bom L B et al. *Phys. Rev. A* **75** 033804 (2007)
- Ganeev R A et al. *Phys. Rev. A* **75** 063806 (2007)
- Ganeev R A et al. *Phys. Rev. A* **76** 023805 (2007)
- Ganeev R A et al. *Phys. Rev. A* **76** 023832 (2007)
- Ganeev R A et al. *Phys. Rev. A* **80** 033845 (2009)
- Ganeev R A et al. *Phys. Rev. A* **80** 043808 (2009)
- Ganeev R A et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **27** 1077 (2010)
- Redkin P V, Ganeev R A *Phys. Rev. A* **81** 063825 (2010)
- Ganeev R A et al. *Appl. Phys. B* **100** 581 (2010)
- Singhal H et al. *Phys. Rev. A* **82** 043821 (2010)
- Ganeev R A et al. *Phys. Rev. A* **82** 053831 (2010)
- Redkin P V, Kodirov M K, Ganeev R A *J. Opt. Soc. Am. B* **28** 165 (2011)
- Ganeev R A et al. *Phys. Rev. A* **83** 013820 (2011)
- Ganeev R A et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **28** 360 (2011)
- Ganeev R A, Kuroda H *Appl. Phys. B* **103** 151 (2011)
- Ganeev R A et al. *J. Mod. Opt.* **58** 819 (2011)
- Ganeev R A et al. *Phys. Rev. A* **83** 063837 (2011)
- Redkin P V, Danailov M B, Ganeev R A *Phys. Rev. A* **84** 013407 (2011)
- Ganeev R A, Elouga Bom L B, Ozaki T *Phys. Plasmas* **18** 083101 (2011)
- Ganeev R A et al. *Eur. Phys. J. D* **64** 109 (2011)
- Elouga Bom L B et al. *Opt. Express* **19** 3677 (2011)
- Pertot Y et al. *Appl. Phys. Lett.* **98** 101104 (2011)
- Pertot Y et al. *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **45** 074017 (2012)
- Haessler S et al. *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **45** 074012 (2012)
- Ganeev R A et al. *Opt. Express* **20** 90 (2012)
- Ganeev R A et al. *Phys. Rev. A* **85** 015807 (2012)
- López-Arias M et al. *J. Appl. Phys.* **111** 043111 (2012)
- Ganeev R A et al. *Phys. Rev. A* **85** 023832 (2012)
- Suzuki M et al. *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **45** 065601 (2012)
- Ganeev R A et al. *Opt. Commun.* **285** 2934 (2012)
- Hutchison C et al. *Opt. Lett.* **37** 2064 (2012)
- Ganeev R A et al. *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **45** 165402 (2012)
- López-Arias M et al. *Mol. Phys.* **110** 1651 (2012)
- Hergott J-F et al. *Phys. Rev. A* **66** 021801(R) (2002)
- Takahashi E, Nabekawa Y, Midorikawa K *Opt. Lett.* **27** 1920 (2002)
- Donnelly T D et al. *Phys. Rev. Lett.* **76** 2472 (1996)
- Elouga Bom L B et al. *Appl. Phys. Lett.* **94** 111108 (2009)
- Paul P M et al. *Science* **292** 1689 (2001)
- Bahabad A, Murnane M M, Kapteyn H C *Nature Photon.* **4** 570 (2010)
- Seres J et al. *Nature Phys.* **3** 878 (2007)
- Sheinfux A H et al. *Appl. Phys. Lett.* **98** 141110 (2011)
- Ciappina M F, Becker A, Jaroń-Becker A *Phys. Rev. A* **76** 063406 (2007)
- Ruggenthaler M, Popruzhenko S V, Bauer D *Phys. Rev. A* **78** 033413 (2008)

85. Zhang G P *Phys. Rev. Lett.* **95** 047401 (2005)
86. Meyer H-D, Manthe U, Cederbaum L S *Chem. Phys. Lett.* **165** 73 (1990)
87. Bhardwaj V R, Corkum P B, Rayner D M *Phys. Rev. Lett.* **93** 043001 (2004)
88. Cricchio D et al. *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **42** 085404 (2009)
89. Ganeev R A et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **30** 7 (2013)
90. Moiseyev N, Lein M J. *Phys. Chem. A* **107** 7181 (2003)
91. Zhou Z-Y, Yuan J-M *Chinese Phys. Lett.* **24** 683 (2007)
92. Millack T, Maquet A J. *Mod. Opt.* **40** 2161 (1993)
93. Gauthey F I et al. *Phys. Rev. A* **52** 525 (1995)
94. Chu W et al. *Phys. Rev. B* **82** 125301 (2010)
95. Zhou Z, Yuan J *Phys. Rev. A* **77** 063411 (2008)
96. Kapoor V, Bauer D *Phys. Rev. A* **85** 023407 (2012)
97. Di Piazza A, Fiordilino E *Phys. Rev. A* **64** 013802 (2001)
98. Bandrauk A D, Chelkowski S, Nguyen H S *J. Mol. Struct.* **735–736** 203 (2005)
99. Fano U *Phys. Rev.* **124** 1866 (1961)
100. Raseev G, Leyh B, Lefebvre-Brion H Z. *Phys. D* **2** 319 (1986)
101. Keller F, Lefebvre-Brion H Z. *Phys. D* **4** 15 (1986)
102. Amusia M Ya, Connerade J-P *Rep. Prog. Phys.* **63** 41 (2000)
103. Reintjes J F *Nonlinear Optical Parametric Processes in Liquids and Gases* (New York: Academic Press, 1984) [Райнтжес Дж. *Нелинейные оптические параметрические процессы в жидкостях и газах* (М.: Мир, 1987)]
104. Gaarde M B, Schafer K J *Phys. Rev. A* **64** 013820 (2001)
105. Toma E S et al. *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **32** 5843 (1999)
106. Zeng Z et al. *Phys. Scripta* **66** 321 (2002)
107. Bartels R et al. *Nature* **406** 164 (2000)
108. Plaja L, Roso L J. *Mod. Opt.* **40** 793 (1993)
109. Milošević D B *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **40** 3367 (2007)
110. Kulagin I A, Usmanov T *Opt. Lett.* **34** 2616 (2009)
111. Strelkov V *Phys. Rev. Lett.* **104** 123901 (2010)
112. Milošević D B *Phys. Rev. A* **81** 023802 (2010)
113. Frolov M V, Manakov N L, Starace A F *Phys. Rev. A* **82** 023424 (2010)
114. Tudorovskaya M, Lein M *Phys. Rev. A* **84** 013430 (2011)
115. Frolov M V et al. *Phys. Rev. Lett.* **102** 243901 (2009)
116. Minemoto S et al. *Phys. Rev. A* **78** 061402(R) (2008)
117. Wörner H J et al. *Phys. Rev. Lett.* **102** 103901 (2009)
118. Agostini P, DiMauro L F *Rep. Prog. Phys.* **67** 813 (2004)
119. Krausz F, Ivanov M *Rev. Mod. Phys.* **81** 163 (2009)
120. Runge E, Gross E K U *Phys. Rev. Lett.* **52** 997 (1984)
121. Marques M A L et al. *Comput. Phys. Commun.* **151** 60 (2003)
122. Castro A et al. *Phys. Status Solidi B* **243** 2465 (2006)
123. Marques M A L, Gross E K U *Lecture Notes Phys.* **620** 144 (2003)
124. Ganeev R A et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **28** 1055 (2011)
125. Duffly G, van Kampen P, Dunne P J. *Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **34** 3171 (2001)
126. Cowan R D *The Theory of Atomic Structure and Spectra* (Berkeley: Univ. of California Press, 1981)
127. Lide D R (Ed.) *CRC Handbook of Chemistry and Physics* 73rd ed. (Boca Raton: CRC Press, 1992)
128. Strelkov V V et al. *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **39** 577 (2006)
129. Ganeev R A et al. *Opt. Express* **20** 25239 (2012)
130. Feit M D, Fleck J A (Jr.), Steiger A J. *Comput. Phys.* **47** 412 (1982)
131. Kjeldsen H et al. *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **37** 1321 (2004)
132. Gabor D J. *IEE Radio Commun. Eng.* **93** 429 (1946)
133. Altucci C, Tisch J W G, Velotta R J. *Mod. Opt.* **58** 1585 (2011)
134. Chipperfield L E et al. *J. Mod. Opt.* **52** 243 (2005)
135. Goulielmakis E et al. *Science* **320** 1614 (2008)
136. Ganeev R A *Laser Phys. Lett.* **9** 175 (2012)
137. Ganeev R A *Laser Phys.* **22** 1177 (2012)
138. Ganeev R A et al. *J. Opt.* **14** 095202 (2012)
139. Ganeev R A *J. Mod. Opt.* **59** 409 (2012)
140. Yao J et al. *J. Mod. Opt.* **59** 245 (2012)
141. Ferray M et al. *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **21** L31 (1988)
142. Lompré L A et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **7** 754 (1999)
143. McPherson A et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **4** 595 (1987)
144. Borot A et al. *Opt. Lett.* **36** 1461 (2011)
145. Torres R et al. *Opt. Express* **18** 3174 (2010)
146. Vozzi C et al. *Appl. Phys. Lett.* **86** 111121 (2005)
147. Tate J et al. *Phys. Rev. Lett.* **98** 013901 (2007)
148. Schiessl K et al. *Phys. Rev. Lett.* **99** 253903 (2007)
149. Witting T et al. *Opt. Lett.* **36** 1680 (2011)
150. Robinson J S et al. *Appl. Phys. B* **85** 525 (2006)
151. Sanz M et al. *J. Nanopart. Res.* **13** 6621 (2011)
152. Torres R, Jadraque M, Martin M *Appl. Phys. A* **80** 1671 (2005)
153. Anselment M et al. *Chem. Phys. Lett.* **134** 444 (1987)
154. Rohlfing E A J. *Chem. Phys.* **89** 6103 (1988)
155. Acquaviva S, De Giorgi M L *Appl. Surf. Sci.* **197–198** 21 (2002)
156. Roth J, Gähler F, Trebin H-R *Int. J. Mod. Phys. C* **11** 317 (2000)
157. Glover T E *J. Opt. Soc. Am. B* **20** 125 (2003)
158. Jeschke H O, Garcia M E, Bennemann K H *Phys. Rev. Lett.* **87** 015003 (2001)
159. Kabashin A V, Meunier M J. *Appl. Phys.* **94** 7941 (2003)
160. Creasy W R, Brenna J T *Chem. Phys.* **126** 453 (1988)
161. O'Brien S C et al. *J. Chem. Phys.* **88** 220 (1988)
162. Donnelly T D et al. *Phys. Rev. Lett.* **76** 2472 (1996)
163. Tisch J W G et al. *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **30** L709 (1997)
164. Altucci C et al. *Phys. Rev. A* **61** 021801(R) (2000)
165. Froud C A et al. *Opt. Lett.* **31** 374 (2006)
166. Kim S et al. *Nature* **453** 757 (2008)
167. Husakou A, Im S-J, Herrmann J *Phys. Rev. A* **83** 043839 (2011)
168. Kjeldsen H et al. *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **37** 1321 (2004)
169. Marr G V, West J B *Atom. Data Nucl. Data Tabl.* **18** 497 (1976)
170. Levesque J et al. *Phys. Rev. Lett.* **98** 183903 (2007)
171. Shiner A D et al. *Nature Phys.* **7** 464 (2011)
172. Ganeev R A et al. *Appl. Phys. Lett.* **94** 051101 (2009)
173. Hentschel M et al. *Nature* **414** 509 (2001)
174. Witting T et al. *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **45** 074014 (2012)
175. Altucci C, Tisch J W G, Velotta R J. *Mod. Opt.* **58** 1585 (2011)
176. Kilbane D et al. *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **38** L1 (2005)
177. Dolmatov V K J. *Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **29** L687 (1996)
178. West J B et al. *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **36** L327 (2003)

High order harmonics generation in laser surface ablation: current trends

R.A. Ganeev

Imperial College London, Prince Consort Road, SW7 2AZ London, United Kingdom
Tel. +44 (0) 20 75 94 76 41. E-mail: r.ganeev@imperial.ac.uk

We review emerging concepts that have increased the efficiency of coherent XUV (extreme ultraviolet) generation through the use of laser frequency conversion in specially prepared plasmas and which have enabled higher-order harmonic generation (HHG) spectroscopy to be used in spectral and structural analysis. We present the current status of plasma HHG and examine what new trends have evolved in the field since it was reviewed last [*Phys. Usp.* **52** 55 (2009)]. In particular, we consider new techniques for generating higher harmonics from various plasmas for the purpose of studying the physical properties of materials. It has been shown recently that HHG has application potential for many, sometimes unexpected, areas of laser radiation-matter interaction. It is argued that plasma HHG is — along with coherent XUV generation — a powerful tool for a variety of spectroscopic and analytical applications.

PACS numbers: 42.65.Ky, 42.79.Nv, 52.50.Jm

DOI: 10.3367/UFNr.0183.201308b.0815

Bibliography — 178 references

Received 25 September 2012, revised 28 November 2012

Uspekhi Fizicheskikh Nauk **183** (8) 815–847 (2013)

Physics–Uspekhi **56** (8) (2013)