

Аттосекундные электромагнитные импульсы: генерация, измерение и применение. Аттосекундная метрология и спектроскопия

М.Ю. Рябикин, М.Ю. Емелин, В.В. Стрелков

При взаимодействии интенсивного лазерного излучения с веществом происходит генерация гармоник высокого порядка; современные достижения в этой области рассмотрены авторами в обзоре [В.В. Стрелков и др. УФН 186 449 (2016)]. При определённых условиях фазы гармоник могут быть синхронизованы таким образом, что, складываясь, поля гармоник образуют аттосекундные ультрафиолетовые (или рентгеновские) импульсы. Обсуждается получение цуга аттосекундных импульсов и одиночного аттосекундного импульса из группы гармоник высокого порядка. Задача измерения длительности аттосекундных импульсов потребовала как серьёзной модернизации методов измерения, известных в фемтосекундной оптике, так и разработки принципиально новых подходов. Описаны основные успешно продемонстрированные к настоящему времени методы измерения аттосекундных импульсов. Обсуждаются применение таких импульсов для зондирования динамики электронных процессов в веществе и управление этими процессами на аттосекундных временах.

Ключевые слова: аттосекундные ультрафиолетовые и рентгеновские импульсы, генерация гармоник высокого порядка, взаимодействие интенсивного лазерного излучения с веществом, фазовый синхронизм, аттосекундная метрология, нелинейная спектроскопия с временным разрешением

PACS numbers: 42.65.Ky, 42.65.Re, 52.38.-r

DOI: <https://doi.org/10.3367/UFNr.2021.10.039078>

Содержание

1. Введение (382).
2. Методы получения аттосекундных импульсов (383).
 - 2.1. Генерация цуга аттосекундных импульсов. Селекция электронных траекторий.
 - 2.2. Генерация одиночного аттосекундного импульса.
3. Методы измерения аттосекундных импульсов (389).
 - 3.1. Метод RABBIT.
 - 3.2. Аттосекундная стрик-камера.
 - 3.3. Спектр фотоэлектронов при оптическом стробировании.
 - 3.4. Метод FROG-CRAB.
 - 3.5. Метод SPIDER.
 - 3.6. Измерения *in situ*.
 - 3.7. Автокорреляционные методы.

4. Применения аттосекундных импульсов (396).
 - 4.1. Аттосекундное зондирование электронных процессов.
 - 4.2. Аттосекундное инициирование внутриатомных и внутримолекулярных процессов.
 - 4.3. Аттосекундное управление электронными процессами.
 5. Заключение (402).
- Список литературы (403).

*Посвящается памяти нашего учителя и соавтора
Виктора Трифоновича Платоненко (1938 – 2017)*

М.Ю. Рябикин^(1,2,a), М.Ю. Емелин^(1,b), В.В. Стрелков^(3,4,c)

⁽¹⁾ Институт прикладной физики им. А.В. Гапонова-Грехова РАН, ул. Ульянова 46, 603950 Нижний Новгород, Российская Федерация

⁽²⁾ Нижегородский государственный университет им. Н.И. Лобачевского, просп. Гагарина 23, 603950 Нижний Новгород, Российская Федерация

⁽³⁾ Институт общей физики им. А.М. Прохорова РАН, ул. Вавилова 38, 119991 Москва, Российская Федерация

⁽⁴⁾ Московский физико-технический институт (национальный исследовательский университет), Институтский пер. 9, 141701 Долгопрудный, Московская обл., Российская Федерация

E-mail: ^(a) mikhail.ryabikin@ipfran.ru, ^(b) emelin@ipfran.ru, ^(c) strelkov.v@gmail.com

Статья поступила 30 июля 2021 г.

1. Введение

В обзоре [1] нами было рассмотрено явление генерации гармоник высокого порядка (ГГВП) в интенсивном лазерном поле, лежащее в основе реализованных к настоящему времени методов получения аттосекундных ультрафиолетовых и рентгеновских импульсов с использованием компактных лазерных систем. Область применения таких импульсов может быть обозначена следующими соображениями. Характерные времена колебаний атомов в молекулах составляют от нескольких десятков пикосекунд (для тяжёлых молекул) до примерно 15 фс (для молекул, содержащих легчайшие ядра — протоны). Именно поэтому фемтосекундные лазеры стали инструментом, нашедшим широкое применение для исследований процессов в веществе, связанных с движением ядер. Поскольку электрон легче протона при-

мерно в 2000 раз, характерные временные масштабы процессов, обусловленных движением электронов, на несколько порядков величины меньше соответствующих времён для ядерной подсистемы. Напомним, что кеплеровский период для электрона в атоме водорода на первой боровской орбите составляет около 152 ас. Следовательно, для зондирования электронной динамики требуется использование электромагнитных импульсов аттосекундной длительности. Получение и использование таких импульсов и составляют основной предмет аттосекундной физики.

Настоящий обзор, по существу, является второй частью обзора [1]. Ниже обсуждаются современные достижения в области получения цугов и одиночных аттосекундных импульсов (АИ), методы измерения длительности АИ; особое внимание уделено результатам ключевых экспериментов по использованию АИ и обсуждению перспектив дальнейших исследований в этой области.

2. Методы получения аттосекундных импульсов

Как известно, ширина спектра и длительность спектрально ограниченного светового импульса связаны между собой соотношением неопределённости энергии и времени для фотонов: $\Delta E \Delta t \sim \hbar$, где $\hbar$ — постоянная Планка. Так, длительность на полувысоте интенсивности (full width at half maximum — FWHM) спектрально ограниченного гауссова импульса (τ_p) связана с его спектральной шириной ($\Delta\omega$) соотношением $\tau_p[\text{ас}] \approx 1825/(\hbar\Delta\omega[\text{эВ}])$ [2]. Отсюда очевидно, что ширина спектрального интервала, занимаемого видимым и инфракрасным светом, недостаточна для получения импульсов длительностью менее 0,6 фс, поэтому для получения аттосекундных импульсов необходимо когерентное излучение ультрафиолетового или рентгеновского диапазона. Надо также отметить, что для основных практических приложений аттосекундного излучения важны повторяемость его характеристик от импульса к импульсу и возможность высокоточной синхронизации с внешним сигналом (как правило, оптического диапазона). Единственным развитым к настоящему времени подходом, обеспечивающим уверенное выполнение всех указанных требований, является генерация гармоник высокого порядка оптического излучения. Как показано в [1], когерентность процесса ГГВП приводит к тому, что фазы гармоник высокого порядка связаны с фазой генерирующего излучения, а тем самым и между собой (заметим, что нередко такая связь может быть весьма сложной из-за квантовой интерференции различных вкладов в нелинейную поляризацию на частоте той или иной гармоники (см. рис. 4 в [1])). Эта фундаментальная особенность определяется микроскопическим механизмом генерации; она сохраняется и в макроскопическом отклике генерирующей среды. Сфазированность гармоник определяет возможность получения из них АИ, как отмечено в первых работах [3–5], предложивших такой способ получения коротких электромагнитных импульсов. Основные результаты по получению АИ достигнуты при генерации гармоник в газах, в связи с чем ниже мы рассмотрим именно этот случай (расчётные результаты по получению АИ при генерации в плазме представлены в [1, раздел 3] (см. также [6, 7])).

2.1. Генерация цуга аттосекундных импульсов. Селекция электронных траекторий

Анализ процесса ГГВП в рамках полуклассической трёхступенчатой модели [8] или её квантово-механического аналога [9] показывает, что ключевую роль в испускании высокочастотного излучения атомами, ионизуемыми интенсивным лазерным импульсом, играют два типа траекторий электронов, отрываемых от атома и через некоторое время τ возвращающихся к родительскому иону. Траектории, соответствующие отрыву электрона при фазах синусоидального поля $108^\circ < \phi < 180^\circ$ и соответственно времени его свободного движения $0 < \tau < 0,65T$ (T — период генерирующего поля), называются *короткими* траекториями, остальные — *длинными*. Отрыв электрона при фазе поля, равной 108° , приводит к максимальному набору им энергии к моменту возвращения к родительскому иону; именно этой энергией определяется номер гармоники, соответствующей высокочастотной отсечке в спектре ГГВП: $N_{\text{max}} \approx (I_p + 3,17U_p)/(\hbar\omega_0)$, где I_p — потенциал ионизации атома, $U_p = e^2 E_0^2 / (4m\omega_0^2)$ — осцилляторная ("пондеромоторная") энергия электрона, E_0 и ω_0 — амплитуда и частота лазерного излучения. Отметим, что квадратичная зависимость пондеромоторной энергии от длины волны лазерного излучения $\lambda_0 = 2\pi c/\omega_0$ определяет преимущества использования длинноволновых лазерных источников для получения широкополосного излучения гармоник (подробности см. в [1]).

Анализ показывает (см. приведённое в [1, раздел 2.2] рассмотрение и цитируемую там литературу), что для получения АИ из группы гармоник высокого порядка (ГВП) необходима селекция вклада электронных траекторий только одного типа. Импульс, генерируемый за счёт этого вклада, обладает определённым знаком чирпа (называемого *атточирпом*): для вклада короткой траектории частота излучения возрастает со временем, а для вклада длинной — убывает. Тогда спектрально-ограниченный импульс может быть получен за счёт компенсации атточирпа селективной компонентой излучения посредством пропускания её через диспергирующую среду с соответствующим знаком и величиной дисперсии в требуемом частотном диапазоне.

Один из способов селекции вкладов различных электронных траекторий в сигнал гармоник основан на специальном выборе геометрии эксперимента. Как отмечалось в [1], для различных вкладов зависимость фазы от интенсивности лазерного излучения различна (оба вклада возрастают примерно пропорционально интенсивности, но для длинных траекторий коэффициент пропорциональности, как правило, значительно выше, чем для коротких [10–12]). Это приводит к тому, что для разных вкладов условия фазового синхронизма оказываются выполненными при несколько различном положении генерирующей среды относительно фокуса лазерного пучка. В частности, при фокусировке лазерного пучка в некоторой точке перед струёй газа условия фазового синхронизма могут быть выполнены для короткой траектории и не выполнены для остальных, что приводит к селекции вклада этой траектории [4, 13, 14]. Такой метод использовался в первых экспериментах по получению цугов АИ [15], где осуществлялось суммирование излучения пяти соседних гармоник. Дальнейшие эксперименты показали возможность получения цугов АИ из более широкого спектрального диапазона [16, 17] (см. также обзоры [18, 19]).

Другой способ селекции вкладов разных электронных траекторий связан с различной расходимостью пучков гармоник, генерируемых за счёт различных вкладов. Волновой фронт излучения гармоник отличается от волнового фронта генерирующего излучения [20–22], что связано с зависимостью фазы гармоник от интенсивности генерирующего излучения, изменяющейся вдоль радиуса пучка. Различный характер зависимости для разных вкладов приводит к различной расходимости генерируемых за счёт этих вкладов пучков гармоник. Селекция вкладов определённой траектории может быть достигнута с помощью диафрагмирования пучка гармоник [5, 23–25]. Данный метод использовался для получения пуга аттосекундных импульсов в эксперименте [26].

Для компенсации положительного chirpa АИ [16, 26, 27] могут быть применены фильтры, обладающие соответствующей дисперсией групповой скорости. В экспериментах [26] спектральная фильтрация излучения десяти (с 17-й по 35-ю) соседних нечётных гармоник в частотном окне шириной около 30 эВ и их синхронизация осуществлялись с помощью тонких алюминиевых плёнок. В экспериментах [26] получена последовательность почти спектрально-ограниченных АИ длительностью 170 ас каждый (о методах измерения длительностей аттосекундных импульсов см. ниже), что составило близкое к предельному значение около 1,2 периода поля на центральной частоте селектированного излучения (энергия фотона около 30 эВ). В серии экспериментов [28] с применением других металлических, а также полупроводниковых фильтров получены импульсы со спектральной шириной до 45 эВ и с центральной частотой, зависящей от материала фильтра; использование циркониевых плёнок позволило получить импульсы длительностью 130 ас с центральной энергией фотона около 80 эВ.

Ввиду важности задачи компенсации аттоchirpa поиски путей её решения постоянно продолжаются. Так, продемонстрировано применение кроме тонких твердотельных фильтров и других дисперсионных элементов, таких как многослойные chirпированные рентгеновские зеркала [29–31] и газообразные среды [32, 33]. Однако, в целом, этому подходу присущи обусловленные свойствами материала ограничения, связанные, например, с потерями или конечной шириной спектрального диапазона, в котором дисперсия ведёт себя желаемым образом. Другие предлагаемые схемы основаны на использовании многоцветных и/или chirпированных лазерных импульсов для управления траекториями свободных электронов [34, 35]. Хотя подобные схемы могут обладать большой гибкостью, их реализация в макроскопических объёмах нелинейных сред затруднена такими нежелательными следствиями дисперсии, как фазовое рассогласование и отклонение волновых форм взаимодействующих полей от оптимальных в процессе распространения.

2.2. Генерация одиночного аттосекундного импульса

Если ультрафиолетовое или рентгеновское излучение генерируется в виде набора сфазированных дискретных нечётных гармоник, то его интенсивность во времени представляет собой пуг АИ, разделённых во времени интервалом, равным половине периода генерирующего излучения. Для получения *одиночного* импульса (требуемого для большинства приложений, например, в спектроскопии накачки–зондирования (pump–probe)) необходим некоторый "затвор", способный открыться (и за-

крыться) на таких временах. Создание столь быстродействующего оптического элемента представляет собой трудную задачу, поэтому осуществлённые к настоящему времени методы получения одиночного АИ реализуют затвор на стадии генерации ультрафиолетового (УФ) излучения, а не при распространении его через дополнительный оптический элемент. Одиночный АИ получается, если генерация происходит только на одном полупериоде. Причём генерируемый спектр представляет собой уже не набор гармоник, а континуум. Важно, однако, что сфазированность спектральных компонент, характерная для ГГВП, сохраняется и в этом случае.

Проблема селекции различных электронных траекторий при получении одиночного АИ аналогична случаю получения пуга АИ и решается сходными способами. Ограничение времени генерации для получения одиночного АИ реализовано с помощью различных подходов, излагаемых ниже.

2.2.1. Использование предельно коротких лазерных импульсов ("амплитудный затвор"). Рассмотрим ГГВП в случае лазерного импульса, содержащего лишь несколько полупериодов лазерного поля. Для целого ряда процессов в поле такого импульса, которое может быть записано как $E(t) = E_0(t) \cos(\omega_0 t + \varphi)$, существенную роль играет фаза поля φ относительно огибающей, или абсолютная фаза лазерного импульса (в англоязычной литературе обозначаемая также как CEP (Carrier-Envelope Phase) [36–46]. В процессе ГГВП максимальная частота УФ-излучения, генерируемого на каждом лазерном полупериоде, определяется главным образом мгновенной амплитудой поля на этом полупериоде. Излучение вблизи края плато генерируется только на одном полупериоде в максимуме лазерного импульса [47] (при определённой абсолютной фазе [48], см. ниже). Таким образом, селекция наиболее высокочастотной части генерируемого излучения позволяет получить одиночные аттосекундные импульсы, что впервые было экспериментально продемонстрировано [29] в 2001 г. Длительность полученных в работе [29] аттоимпульсов с энергией фотонов около 90 эВ составила 650 ас. Принципиальную роль в прогрессе данной методики [38] сыграла возможность стабилизации абсолютной фазы генерирующего импульса [49–52].

Рисунок 1 иллюстрирует ожидаемую из теории и подтверждённую спектральными измерениями в эксперименте [53] зависимость временного профиля вакуумного ультрафиолетового (ВУФ) излучения от абсолютной фазы лазерного импульса длительностью в несколько периодов поля. Из рисунка видно, что в случае синусоподобного импульса ($\varphi = -\pi/2$) генерируемое излучение в области края плато представляет собой пару аттосекундных импульсов, а для косинусоподобного импульса ($\varphi = 0$) — одиночный импульс. Это объясняется тем, что в первом случае ($\varphi = -\pi/2$) возврат электронов с максимальной кинетической энергией происходит на двух полупериодах поля, на которых амплитуда поля максимальна; во втором случае ($\varphi = 0$) такой полупериод всего один — электроны, возвращающиеся на предыдущем и последующем полупериодах, обладают существенно меньшей кинетической энергией. В эксперименте [53] атомы неона подвергались воздействию 5-фемтосекундных импульсов излучения с центральной длиной волны $\lambda = 750$ нм и контролируемой абсолютной фазой; в ка-

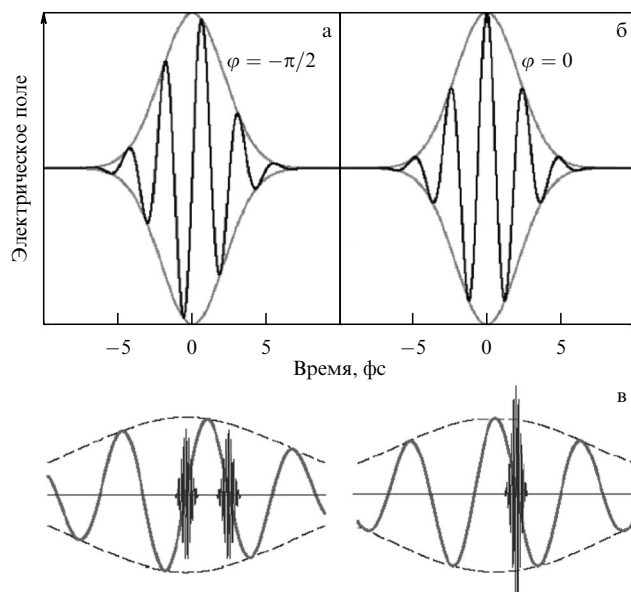


Рис. 1. Временной профиль электрического поля ультракороткого лазерного импульса с абсолютной фазой (а) $\varphi = -\pi/2$ и (б) $\varphi = 0$. (в) Временные профили всплесков ВУФ-излучения, получаемые после селекции высокочастотной части спектра генерируемых гармоник, для тех же значений абсолютной фазы.

честве высокочастотного фильтра использовалось двухкомпонентное многослойное Mo/Si-зеркало с максимумом отражательной способности в области энергии 93 эВ. Результаты измерений аттосекундных импульсов подтвердили вышеизложенную картину, при этом длительность одиночного импульса ВУФ-излучения в области отражения Mo/Si-зеркала составила рекордно малую для того времени величину 250 ас.

Как продемонстрировано в экспериментах, применение данного метода в случае использования фазостабилизированных предельно коротких лазерных импульсов и компенсации аттотчирпа генерируемого излучения позволяет получать одиночные импульсы ВУФ-излучения и мягкого рентгеновского излучения длительностью менее 100 ас. Так, благодаря применению источника излучения длительностью менее 1,5 периода лазерного излучения ближнего ИК-диапазона с контролируемой волновой формой [54] и chirпированных многослойных зеркал ВУФ-диапазона [55] в эксперименте с атомами неона [30] получены изолированные импульсы длительностью около 80 ас со средней энергией фотонов около 80 эВ и высокой яркостью — на уровне 10^{11} фотонов в секунду. В эксперименте [56] при воздействии на атомы аргона импульсами излучения параметрического источника с длительностью около двух периодов поля на центральной длине волны 1,8 мкм и использовании циркониевой фольги для компенсации аттотчирпа получены импульсы длительностью 43 ас со средней энергией фотонов около 110 эВ. В отсутствие диспергирующих элементов, как показывают расчёты [12], минимальная длительность АИ, который может быть получен при генерации в аргоне этим методом, составляет 0,08–0,10 периода генерирующего излучения с различными интенсивностями и частотами.

2.2.2. Использование лазерных импульсов переменной эллиптичности ("поляризационный затвор"). Как упоминалось в [1], эффективность ГГВП быстро убывает с увеличением эллиптичности лазерного излучения, поскольку в

поле эллиптически поляризованного излучения электрон при возврате к родительскому иону "промахивается", пролетая мимо него; простые выражения для пороговой эллиптичности (эллиптичности лазерного излучения, при которой эффективность ГГВП снижается вдвое), полученные в [57], находятся в хорошем согласии с результатами эксперимента (см., например, [58]). Для дальнейшего важно, что уже эллиптичность 10–15 % приводит к существенному уменьшению эффективности генерации. Поэтому при ГГВП лазерным импульсом с переменной во времени эллиптичностью эффективность генерации будет максимальна на временном интервале, когда поляризация близка к линейной. Если эллиптичность изменяется достаточно быстро (а именно, если длительность этого временного интервала составляет около половины оптического периода), то следует ожидать генерации одиночного аттосекундного импульса [59]. Разумеется, при столь быстром изменении поляризации лазерного излучения само понятие мгновенной эллиптичности теряет смысл, поэтому строгое исследование ГГВП в данном случае предполагает полный квантово-механический расчёт [60, 61].

Получение поля с быстро изменяющейся эллиптичностью представляет собой специальную задачу. В работе [59] предлагалось получать такое поле из двух коротких импульсов с различными частотами. Существенно более простой способ был предложен в работе [62]. Исходный лазерный пучок расщепляется на два, которые преобразуются в пучки циркулярно поляризованного излучения со взаимно противоположными направлениями вращения и затем сводятся в один с внесением задержки δ между импульсами порядка длительности τ исходного импульса. Поляризация результирующего поля близка к циркулярной на "хвостах" импульса и к линейной в его центральной части. Предполагая, что ГГВП происходит, пока эллиптичность меньше определённого порогового значения ε_{th} , можно получить [63] следующее выражение для промежутка времени, в течение которого генерируются гармоники:

$$\Delta = \frac{\varepsilon_{th} \tau^2}{\delta \ln 2}. \quad (1)$$

Видно, что укорачивать "временное окно" Δ можно, увеличивая задержку δ или уменьшая длительность импульса τ . Однако при $\delta > \tau$ интенсивность получаемого импульса накачки имеет провал в области, где поляризация близка к линейной, т.е. происходит потеря лазерной мощности. Поэтому практически используются задержки, удовлетворяющие условию $\delta \approx \tau$.

В экспериментах [64] указанная методика получения импульса переменной эллиптичности была модифицирована. Модуляция эллиптичности излучения накачки достигалась пропусканием исходного пучка через две четвертьволновые кварцевые пластины (нулевого порядка и высокого порядка), оси которых определённым образом ориентированы относительно направления поляризации исходного лазерного импульса (рис. 2). Задержка δ при этом определяется толщиной четвертьволновой пластины высокого порядка. Угол поворота оси четвертьволновой пластины нулевого порядка позволяет без изменения профиля интенсивности непрерывно менять профиль эллиптичности, т.е. изменять длительность временного окна от минимальной (задаваемой по-прежнему вы-

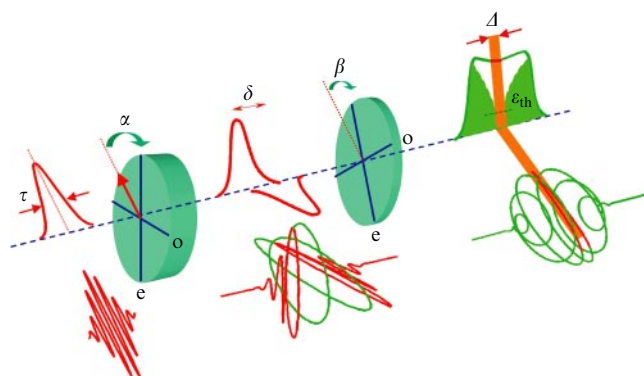


Рис. 2. Схема установки для получения генерирующего поля с переменной во времени эллиптичностью. Показаны ориентация четвертьволновых пластинок относительно поляризации входящего лазерного импульса, а также поле после прохождения каждой пластинки. После второй пластинки эллиптичность поля меньше пороговой эллиптичности ε_{th} только в центре импульса внутри временного окна длительностью Δ , показанного на рисунке.

ражением (1)) до максимальной, приблизительно определяемой длительностью генерирующего импульса $(\delta^2 + \tau^2)^{1/2}$. Управление длительностью импульса гармоник с помощью описанной методики продемонстрировано в работе [65] при использовании лазерных импульсов длительностью 40 фс.

Для получения одиночного аттосекундного импульса по данной методике необходимо, чтобы "поляризационный затвор" оставался открытым только в течение времени не более полупериода лазерного поля. Как показано в [66] из сравнения с численными расчётами, формула (1), дающая высокую точность для случаев временного окна длительностью в несколько периодов, удовлетворительно работает и в этом случае. Полагая $\varepsilon_{th} \approx 0,15$, находим из (1), что для получения одиночного аттоимпульса методом поляризационного затвора необходим лазерный импульс длительностью в несколько периодов поля (хотя и более длинный, чем в методе "амплитудного затвора"); для длины волны титан-сапфирового лазера длительность такого импульса составляет около 6 фс. Важнейшим преимуществом метода поляризационного затвора является то, что он работает для всех ГВП, а не только для края плато. Как и в случае амплитудного затвора, в этом методе важную роль играет абсолютная фаза лазерного импульса, определяющая особенности динамики электронного волнового пакета при его движении в континууме и тем самым характеристики генерируемого аттосекундного импульса [61, 63]. Поэтому для получения аттосекундных импульсов со стабильными (т.е. не меняющимися от одного лазерного импульса к другому) характеристиками необходим лазерный импульс со стабилизированной абсолютной фазой. Такой лазерный импульс длительностью 5 фс использовался для получения одиночного аттосекундного импульса в эксперименте [58] (рис. 3, 4).

Применение данного подхода в комбинации с аккуратным подбором условий для компенсации chirpa аттосекундного излучения позволило получить одиночные импульсы длительностью 130 ас [67] с энергиями фотонов до 36 эВ при воздействии на атомы аргона импульсами излучения титан-сапфирового лазера с длиной волны около 750 нм. Более того, как сообщается в [67], абсолютная фаза аттосекундных импульсов при этом ока-

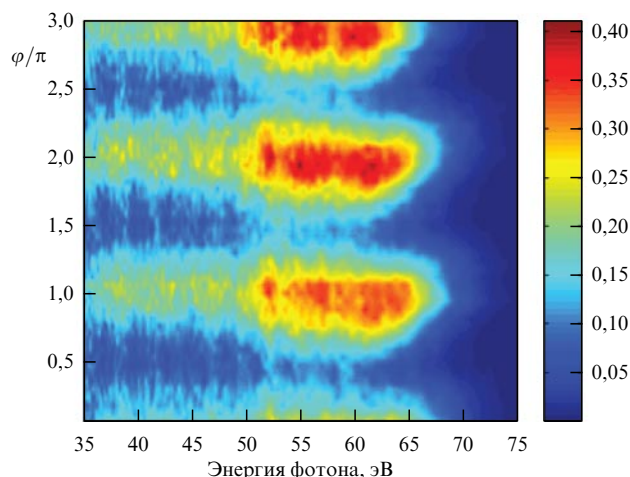


Рис. 3. Спектр УФ-излучения, измеренный при различных абсолютных фазах генерирующего излучения. (Данные работы [58].)

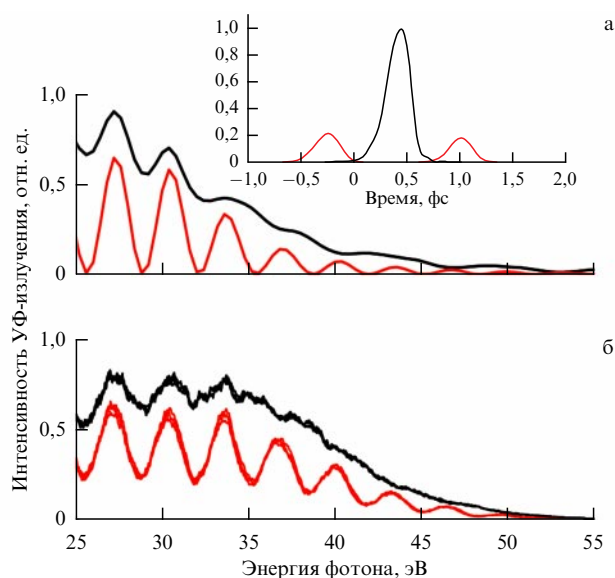


Рис. 4. Спектр УФ-излучения при двух значениях абсолютной фазы, различающихся на $\pi/2$, рассчитанный теоретически (а) и измеренный экспериментально (б). На вставке рис. а показана рассчитанная для двух значений абсолютной фазы интенсивность УФ-излучения в зависимости от времени. (Данные работы [58].)

зывается стабильной. Использование более длинноволнового лазерного источника (с центральной длиной волны около 1,8 мкм) позволило при воздействии на атомы неона осуществить генерацию высоких гармоник с энергиями фотонов, достигающими края К-полосы поглощения углерода (284 эВ); измеренная длительность полученного одиночного импульса гармоник при этом составила 53 ас [68].

Дальнейшее развитие рассматриваемая методика получила в работах [69–71], где было предложено использовать для получения быстро меняющейся эллиптичности два эллиптически (а не циркулярно) поляризованных импульса. При определённой ориентации эллипсов поляризации выражение (1) переходит [71] в

$$\Delta = \xi \frac{\varepsilon_{th} \tau^2}{\delta \ln 2}, \quad (2)$$

где ξ — эллиптичность исходных импульсов. Причём должно быть $\xi > \varepsilon_{th}$, для того чтобы подавить ГГВП на "хвостах" получающегося импульса [70] (где эллиптичность близка к ξ). Как видно из сравнения выражений (1) и (2), данная методика позволяет использовать примерно в $1/\xi$ раз более длинные лазерные импульсы для получения той же длительности окна Δ . Отметим также, что в работах [69, 70] использовалась модифицированная схема ("интерференционный поляризационный затвор"), основанная на использовании устройств типа интерферометров Майкельсона [69] или Маха–Цендера [70] вместо двулучепреломляющих элементов; такие устройства перспективны для работы с высокоинтенсивными лазерными импульсами. В работе [69] с использованием лазерных импульсов длительностью 50 фс этим методом получен близкий к непрерывному спектр, соответствующий аттосекундному импульсу длительностью 340 ас.

2.2.3. Использование быстрой ионизации среды ("ионизационный затвор"). Эффективность ГГВП убывает по мере ионизации генерирующих атомов (опустошения их основного состояния). Таким образом, если за время лазерного импульса происходит глубокая ионизация среды, то длительность импульса гармоник ограничена временем, в течение которого проходит ионизация. Проходящая на временах порядка оптического периода ионизация позволит получить одиночный аттосекундный импульс, как предложено в работах [72–74]. Для столь быстрой ионизации необходима не только высокая пиковая интенсивность импульса, но и малая длительность его переднего фронта (иначе ионизация начнётся задолго до максимума импульса). Поэтому применение ионизационного затвора требует очень коротких лазерных импульсов (по-видимому, ещё более коротких, чем в других методах получения одиночного аттосекундного импульса). Важной особенностью этого метода является то, что он ограничивает время генерации всех ГВП, а не только гармоник в области края плато (как метод амплитудного затвора). В более реалистичном случае (тем более для высокоинтенсивных лазерных импульсов, требуемых для реализации ионизационного затвора) передний фронт лазерного импульса содержит как минимум несколько полупериодов поля. Тогда относительно низкочастотные начальные всплески гармоник, порождаемые на переднем фронте, могут быть заблокированы с помощью спектральной фильтрации (ценой уменьшения спектральной ширины и, следовательно, увеличения длительности генерируемого полезного импульса) — в этом случае метод становится близким к методу амплитудного затвора.

2.2.4. Использование переменной во времени отстройки от фазового синхронизма. Обсуждавшиеся выше подходы к получению одиночного аттосекундного импульса предполагают использование генерирующих импульсов со стабилизированной абсолютной фазой. Однако абсолютная фаза существующих систем имеет ограниченную долговременную стабильность, а энергия таких лазерных импульсов ограничена, как правило, несколькими сотнями микроджоулей. Из-за низкой эффективности генерации высоких гармоник это приводит к тому, что энергия получаемых аттосекундных импульсов ограничена наноджоулевым (или даже субнаноджоулевым)

диапазоном. Столь низкая энергия аттосекундных импульсов существенно ограничивает область их применения. С другой стороны, в настоящее время экспериментально доступны импульсы высоких гармоник с энергией на уровне нескольких микроджоулей [75, 76]; рекордно высокие значения достигают 100–200 мкДж в диапазоне энергий фотонов до 30 эВ [77]. Указанные энергии излучения гармоник, однако, достигнуты при ГГВП относительно длинными лазерными импульсами без стабилизации абсолютной фазы. Использование таких лазерных импульсов для генерации *одиночного* аттосекундного импульса позволит существенно увеличить его энергию, а также сделать источники аттосекундных импульсов более доступными. Увеличение энергии аттосекундного импульса сделает возможным исследование нелинейно-оптических явлений в аттосекундном диапазоне, в связи с чем задача повышения энергии аттосекундных импульсов представляется весьма актуальной.

Высокоэнергетичные аттосекундные импульсы могут быть получены с помощью методики, основанной на управлении временной динамикой *макроскопического* высокочастотного отклика среды. Как отмечалось в обзоре [1, раздел 2.4], эффективность ГГВП сильно зависит от выполнения условий фазового синхронизма и достигает максимума, когда фазовые скорости гармоники и лазерного излучения почти равны между собой. Величина фазовой расстройки в процессе генерации гармоник определяется геометрией эксперимента, давлением и типом газа, а также плотностью свободных электронов, очень сильно влияющей на фазовую скорость лазерного импульса. Последний фактор делает фазовый синхронизм ГГВП особенно чувствительным к плотности свободных электронов в мишени. В то же время ГГВП всегда сопровождается ионизацией среды, поэтому электронная плотность меняется во времени. Таким образом, отстройка от фазового синхронизма меняется в течение лазерного импульса [78, 79], поэтому эффективность генерации может быть максимальной внутри некоторого временного окна, где отстройка от синхронизма минимальна. Если отстройка от синхронизма меняется существенно за время порядка половины оптического периода, то эффективно генерироваться может только один аттоимпульс [80–83]. Такая ситуация может иметь место при туннельной ионизации, когда плотность свободных электронов скачкообразно увеличивается вблизи максимумов мгновенных значений электрического поля лазера. Высота скачков и, следовательно, соответствующая добавка к фазовой отстройке определяются пиковой интенсивностью лазерного излучения и его временным профилем, толщиной мишени, давлением и типом газа.

Однако описанная простая картина имеет место лишь в одномерном случае. Обычно интенсивность лазерного излучения меняется в сечении пучка, поэтому степень ионизации неоднородна по сечению. Эта зависимость плотности свободных электронов от радиуса приводит к тому, что положение во времени "окна" эффективной генерации УФ-излучения также зависит от радиуса. Таким образом, общее время эффективной генерации увеличивается. Более того, из-за особенностей осевого и внеосевого фазового синхронизма в дальнем поле временная структура аттосекундных импульсов может меняться по сечению пучка [84, 85].

Для того чтобы преодолеть указанное ограничение, в работе [80] предлагалось использовать лазерный пучок

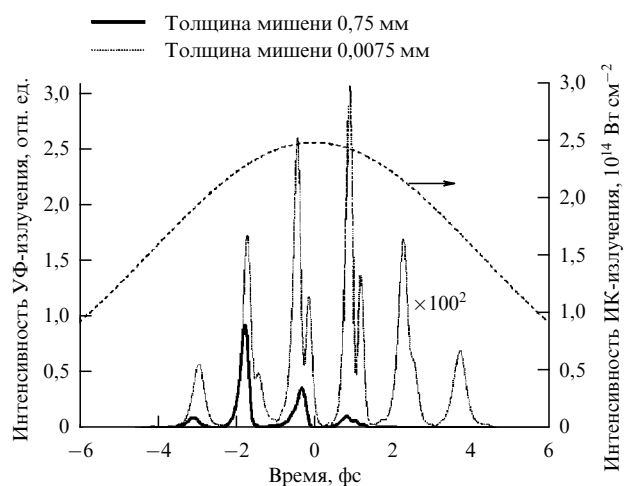


Рис. 5. Аттосекундные импульсы, генерируемые в аргоне лазерным пучком с "плоской вершиной", в относительно толстой мишени (0,75 мм) и очень тонком слое. Представлена интенсивность УФ-излучения с частотами выше $32\omega_0$. Как видно, в тонком слое генерируется пуг, состоящий из нескольких импульсов, тогда как в толстой мишени только один из них генерируется эффективно благодаря выполнению условий фазового синхронизма. (Данные работы [80].)

со специальным профилем интенсивности, а именно пучок, в котором интенсивность в области мишени почти не зависит от радиуса вплоть до некоторого расстояния от оси и быстро убывает на больших расстояниях; в [80] предложен также метод получения такого пучка. Профиль интенсивности "с плоской вершиной" обеспечивает одновременную ионизацию по всей центральной части пучка. Отметим, что в похожих пучках ранее была экспериментально продемонстрирована оптимизация условий для достижения высокой эффективности ГГВП [86, 87].

Чтобы проиллюстрировать роль зависящего от времени фазового синхронизма, на рис. 5 приведено сравнение аттоимпульсов, генерируемых лазерным импульсом длительностью 10 фс в мишени толщиной 0,75 мм и в слое газа толщиной, в сто раз меньшей. Интенсивность излучения, генерируемого в тонком газовом слое, умножена на квадрат отношения толщин (100^2). Свойства излучения, генерируемого в тонкой мишени, определяются только микроскопическим откликом, а не фазовым синхронизмом. Соответственно наблюдается пуг аттоимпульсов длительностью примерно 5 фс. Напротив, для "толстой" мишени время УФ-излучения ограничено меняющимся во времени фазовым синхронизмом, в результате чего только один импульс из пуга генерируется эффективно.

Важно, что временная динамика отстройки от фазового синхронизма в данном случае связана с абсолютной фазой лазерного излучения (так как туннельная ионизация происходит вблизи пиков поля). Поэтому и положение "окна синхронизма" во времени, и моменты излучения аттосекундных импульсов определяются абсолютной фазой. В результате, как показывают расчёты [80], основные характеристики одиночного аттосекундного импульса, получаемого этим методом, лишь в небольшой степени зависят от абсолютной фазы лазерного излучения.

Первые экспериментальные результаты по генерации гармоник лазерным пучком "с плоской вершиной" опубликованы в [88–90].

2.2.5. Использование двуцветного поля. Как было показано уже в ранних работах [91, 92], при ГГВП в поле интенсивного лазерного излучения и его второй гармоники в спектре гармоник присутствуют как нечётные, так и чётные гармоники основной частоты, причём их интенсивность может быть близкой даже при относительно небольшой интенсивности второй гармоники. Это свойство генерируемого спектра соответствует увеличению периодичности процесса с половины оптического периода до полного периода; в частности, при определённой взаимной фазе между основной частотой и частотой второй гармоники аттосекундные импульсы в пуге следуют один за другим на каждом периоде (а не полупериоде) лазерного излучения [93, 94]. Качественно указанное свойство объясняется тем, что добавка второй гармоники нарушает исходную симметрию поля накачки: если на некотором полупериоде основной частоты поле второй гармоники *складывается* с полем основной частоты в области пика поля, то на следующем полупериоде оно *вычитается* из него. Данное обстоятельство приводит к различным вероятностям ионизации на этих полупериодах и, следовательно, к различным интенсивностям генерируемых аттосекундных импульсов. Очень сильная зависимость вероятности туннельной ионизации от амплитуды поля приводит к тому, что генерация аттосекундных импульсов может быть практически подавлена на каждом втором полупериоде уже при относительно небольшой интенсивности второй гармоники. Удвоение периода следования аттосекундных импульсов в пуге, очевидно, удваивает время, за которое должен "закраться затвор" для получения одиночного импульса. Таким образом, можно сказать, что добавление поля второй гармоники позволяет использовать примерно вдвое более длинные импульсы во всех вышеперечисленных методах получения одиночного аттосекундного импульса.

В работе [94] предлагалось использовать двуцветное поле при получении одиночного аттосекундного импульса методом амплитудного затвора. Метод поляризационного затвора при генерации в двуцветном поле [95] с использованием лазерного источника длительностью импульсов 9 фс позволил получить суперконтинуум, соответствующий одиночному импульсу длительностью 130 ас. Применение двуцветного поля и "обобщённого" поляризационного затвора позволило получить [71] одиночный аттосекундный импульс длительностью 150 ас, используя лазерный импульс длительностью 28 фс. Посредством компенсации атточирпа выделенного методом поляризационного затвора одиночного импульса излучения гармоник с энергиями фотонов от 55 до 130 эВ, сгенерированного в двуцветном поле с использованием лазерного источника с длительностью импульсов 7 фс, была достигнута рекордно малая на то время длительность импульса гармоник 67 ас [96]. В расчётах [80] продемонстрировано получение одиночного аттосекундного импульса в двуцветном поле за счёт переменной отстройки от фазового синхронизма с помощью лазерного импульса длительностью 20 фс. Наконец, в работе [97] предложено использовать трёхцветное генерирующее поле с некратными частотами для получения одиночного аттосекундного импульса.

Отметим, что использование двуцветного генерирующего поля в определённых случаях позволяет существенно увеличить эффективность генерации. Так, в дву-

цветном поле (лазерное излучение и поляризованная в перпендикулярной плоскости его вторая гармоника сравнимой интенсивности) получена рекордно высокая эффективность генерации [98] (5×10^{-5} для 38-й гармоники титан-сапфирового лазера); объяснения увеличения эффективности генерации в двуцветном поле предлагаются в [98–100]. Таким образом, применение двуцветного поля представляет собой перспективный путь получения одиночных АИ высокой интенсивности.

2.2.6. Использование лазерных пучков с вращающимся волновым фронтом ("аттосекундный маяк"). Во всех обсуждавшихся выше методах выделения одиночного аттосекундного импульса из пучка импульсов важную роль играют особенности спектральных характеристик генерируемого излучения и характеристики лазерного излучения во времени. Сравнительно недавно был предложен принципиально другой подход, позволяющий развести аттосекундные импульсы из сгенерированной последовательности по разным направлениям распространения. Такой метод разделения импульсов получил название "аттосекундный маяк" [101]. В основе метода лежит принцип вращения волнового фронта [102] в области генерации высоких гармоник (в точке фокуса лазерного излучения).

Пусть перед фокусировкой поле в лазерном импульсе имеет следующий вид:

$$E(x_i, t) = E_0 \exp \left(-2 \left[\frac{t - \xi x_i}{\tau_i} \right]^2 - 2 \frac{x_i^2}{w_i^2} + i\omega_L t \right), \quad (3)$$

где x_i — одна из поперечных координат, τ_i — спектрально ограниченная длительность импульса, w_i — диаметр пучка, ω_L — центральная частота лазерного излучения, ξ — параметр наклона волнового фронта. Импульс, задаваемый выражением (3), называется импульсом со скошенным фронтом. Такой импульс может быть получен посредством небольшой расстройки решётчатого компрессора на последней стадии усиления фемтосекундного импульса.

Поле в фокусе $\tilde{E}(k, t)$ представляет собой преобразование Фурье от поля перед линзой (задаваемого выражением (3)), где $k = k_L x_f / f$, x_f — поперечная координата в фокальной плоскости, f — фокусное расстояние линзы, $k_L = \omega_L / c$. Можно показать [103], что при фокусировке импульса (3) локальная частота лазерного излучения будет зависеть от x_f :

$$\begin{aligned} \tilde{E}(x_f, t) &\propto \exp \left(-2 \frac{t^2}{\tau_f^2} - 2 \frac{x_f^2}{w_f^2} \right) \exp [i\phi(x_f, t)], \\ \phi(x_f, t) &= 4 \frac{w_i \xi}{w_f \tau_f \tau_i} x_f t + \omega_L t, \end{aligned} \quad (4)$$

где длительность импульса в точке фокуса τ_f и размер перетяжки w_f вдоль координаты x_f имеют вид

$$\frac{\tau_f}{\tau_i} = \frac{w_f}{w_0} = \sqrt{1 + \left(\frac{w_i \xi}{\tau_i} \right)^2},$$

$w_0 = 4f / (k_L w_i)$ — размер перетяжки в фокусе при $\xi = 0$. Мгновенное направление распространения света $\beta(t)$ задаётся выражением $\beta \approx k_{\perp}(t) / k_L$, где $k_{\perp}(t) = \partial \phi / \partial x_f$. Так как β оказывается зависящим от времени, направление распространения меняется с течением времени, а

именно, волновой фронт в фокальной плоскости вращается со скоростью

$$v_r = \frac{d\beta}{dt} = \frac{w_i^2}{f \tau_i^2} \frac{\xi}{1 + (w_i \xi / \tau_i)^2}.$$

Максимально возможное значение скорости вращения волнового фронта при заданной длительности импульса τ_i и расходимости оптического излучения $\theta_L = w_i / f$ достигается при $\xi = \tau_i / w_i$: $v_r^{\max} = \theta_L / (2\tau_i)$.

Так как волновой фронт в фокальной плоскости при использовании импульсов со скошенным фронтом вращается, аттосекундные импульсы, генерируемые в разные моменты времени, распространяются в различных направлениях. Для получения в каждом направлении одиночного импульса необходимо, чтобы за время между двумя соседними генерируемыми импульсами волновой фронт поворачивался на величину, превышающую расходимость θ_n аттосекундного импульса, т.е. для лазерного импульса с максимальной скоростью вращения волнового фронта получаем условие его максимальной длительности:

$$N_c \leq \frac{\theta_L}{\alpha p \theta_n},$$

где N_c — число периодов в лазерном импульсе, p — количество аттосекундных импульсов, генерируемых на каждом оптическом периоде, α — коэффициент порядка единицы, определяемый требуемым контрастом между данным аттосекундным импульсом и его ближайшими соседями, распространяющимися в том же направлении.

Так как рассматриваемый метод не привязан исключительно к процессу генерации высоких гармоник в газах, он может быть применён и к другим схемам генерации аттосекундных импульсов. Впервые принцип "аттосекундного маяка" был реализован в эксперименте по генерации ВУФ-излучения при отражении лазерного импульса релятивистской интенсивности от плазменного зеркала [7]. В данном случае требование к длительности лазерного импульса снижается по сравнению с требованием к таковой при генерации в газах, поскольку на каждом периоде генерируется только один аттосекундный всплеск (в отличие от газа, нелинейная среда в данном случае не центросимметрична). В эксперименте использовался лазерный импульс длительностью 7 фс с контролируемой волновой формой, пиковая интенсивность в фокусе составляла немного менее 10^{18} Вт см $^{-2}$. Показано, что вращение волнового фронта приводит к появлению пространственной модуляции в генерируемом ВУФ-излучении: образуется несколько разведённых по направлениям распространения максимумов, которые могут быть интерпретированы как отдельные аттосекундные импульсы.

В работе [104] "аттосекундный маяк" впервые был реализован при ГГВП в газе.

3. Методы измерения аттосекундных импульсов

С развитием техники получения импульсов субфемтосекундной длительности возник вопрос о возможности их измерения с помощью методик, разработанных ранее для оптического диапазона. Вопрос оказался непро-

стым, так как несущая частота аттосекундных импульсов попадает в ВУФ-диапазон или мягкий рентгеновский диапазон частот, который пока является недостаточно освоенным с точки зрения метрологии. Одна из основных трудностей состоит в отсутствии оптических элементов с требуемыми характеристиками для данного диапазона, что делает проблематичным транспортирование излучения. Кроме того, нелинейные поляризуемости веществ при повышении частоты излучения быстро стремятся к нулю, тем самым сильно затрудняя реализацию различных корреляционных методов измерения в высокочастотной области. Ситуация усугубляется ещё и тем, что интенсивность генерируемых аттосекундных импульсов, как правило, невелика — лишь в отдельных случаях благодаря острой фокусировке достигается уровень 10^{14} Вт см $^{-2}$ [105, 106]. Низкий уровень интенсивности измеряемых импульсов пока не позволяет эффективно применять автокорреляционные методы измерений, основанные на использовании нелинейных свойств среды (см. более подробно раздел 3.7). Поэтому задача измерения аттосекундных импульсов потребовала серьёзной модернизации методов измерения, известных в оптике, и даже разработки принципиально новых. В основе большинства методов измерения аттосекундных импульсов лежат различные модификации таких методов пико- и фемтосекундной оптики, как стрик-камера [107, 108], FROG (Frequency-Resolved Optical Gating) [109, 110], SPIDER (Spectral Phase Interferometry for Direct Electric field Reconstruction) [111], и томографические методы [112, 113]. В разделах 3.1–3.7 кратко описаны основные предложенные к настоящему моменту методы измерения аттосекундных импульсов.

Генерируемое в процессе ГТВП аттосекундное излучение идеально синхронизовано с лазерным излучением, служащим в качестве накачки в этом процессе [3]. Таким образом, для измерения характеристик генерируемого аттосекундного излучения может быть использована отщеплённая от основного пучка часть ("реплика") исходного лазерного излучения, с контролируемой задержкой направленная в измерительную камеру. Именно на этом принципе основано большинство методов измерения характеристик аттосекундных импульсов. Для таких измерений, называемых кросскорреляционными, используется одновременное воздействие аттосекундного излучения и задержанной реплики лазерного импульса на газ в измерительной камере.

Наиболее широкая группа методов аттосекундной метрологии подразумевает использование спектроскопии фотоэлектронов, рождающихся в процессе измерений. Для этой группы методов эксперимент по измерению длительности аттосекундного импульса сводится к следующему: в газовую струю фокусируется пучок исследуемого УФ-излучения (представляющего собой пучок аттосекундных импульсов или одиночный АИ) и пучок когерентного с ним лазерного излучения (ниже обозначаемого нами как стробирующее поле). Интенсивность стробирующего излучения подбирается так, чтобы оно само по себе не вызывало ионизации газа. Между генерирующим и стробирующим полем имеется варьируемая фазовая задержка φ ; таким образом контролируется положение аттосекундных импульсов относительно пиков мгновенного значения низкочастотного поля. Фотоионизация газа происходит под действием АИ, а воздействие стробирующего поля приводит к модификации

спектра возникающих фотоэлектронов. Исторически первым предложенным методом для определения длительности одиночного АИ является аттосекундная стрик-камера (streak camera) [114]. Однако более детальное теоретическое исследование (см. разделы 3.1–3.7) показывает, что из энергетического и углового спектров фотоэлектронов можно получить значительно более широкую информацию. В целом, на том же принципе основаны такие методы, как FROG-CRAB, SPIDER (для несколько более сложных условий эксперимента) и RABBIT (для пуга аттосекундных импульсов).

3.1. Метод RABBIT

Метод измерения аттосекундных импульсов RABBIT (изначальная аббревиатура — RABBITT, Reconstruction of Attosecond Beating By Interference of Two-photon Transitions) [15, 18, 115], в отличие от других обсуждаемых ниже методов, не имеет прямых аналогов в оптическом диапазоне (хотя, как мы покажем далее, является вариантом оптического стробирования). RABBIT-метод используется в случае, когда генерируется пучок АИ с близкими параметрами. Спектр такого излучения представляет собой набор нечётных гармоник; для восстановления временных характеристик аттосекундных импульсов должна быть известна не только интенсивность гармоник, но и разность между их фазами. При фотоионизации газа под действием комбинации излучения гармоник и низкочастотного излучения умеренной интенсивности в спектре фотоэлектронов присутствуют не только пики, соответствующие поглощению кванта гармоник, но и дополнительные пики (sidebands) на частотах чётных гармоник, соответствующие поглощению одного кванта гармоник $\pm$ одного кванта низкочастотного поля [116] (рис. 6). Таким образом, пик на частоте чётной гармоник $2q\omega$ связан с двумя процессами: $\omega_{2q-1} + \omega$ и $\omega_{2q+1} - \omega$ (здесь ω_{2q-1} и ω_{2q+1} — частоты соседних нечётных гармоник). Амплитуды вероятностей этих про-

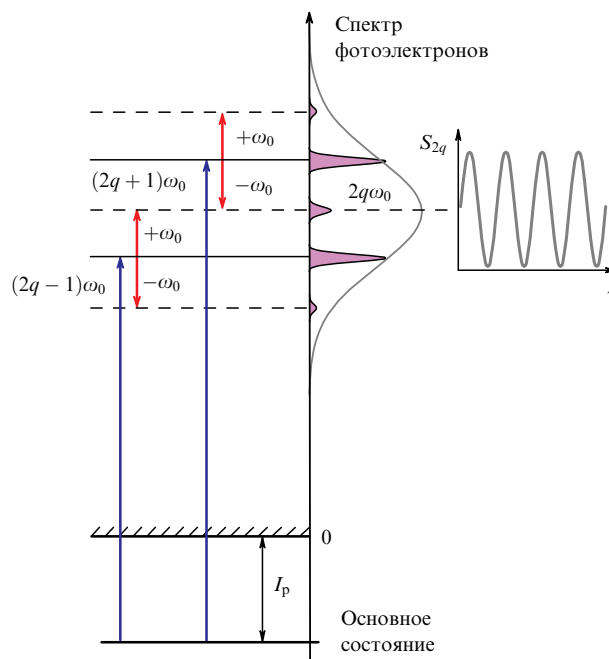


Рис. 6. К объяснению принципа измерения фаз гармоник методом RABBIT.

цессов интерферируют конструктивно или деструктивно, в зависимости от задержки τ , а также от разности между фазами соседних гармоник $\varphi_{2q-1} - \varphi_{2q+1}$, так что интенсивность этого пика [116]

$$S_{2q}(\tau) \propto \cos(2\omega\tau + \varphi_{2q-1} - \varphi_{2q+1}). \quad (5)$$

(аргумент в (5) в общем случае также содержит обусловленную комплексностью соответствующего атомарного матричного элемента добавку, которая обычно пренебрежимо мала или может быть вычислена теоретически (см. табл. 1 в [15])).

Таким образом, измеряя зависимости интенсивностей различных пиков в спектре фотоэлектронов от времени задержки τ , можно восстановить разность между фазами соседних гармоник по всему спектру, т.е. полное спектральное распределение фазы излучения. Для успешного применения метода необходимо, чтобы соседние пики в спектре фотоэлектронов были хорошо разрешены, т.е. он неприменим для измерения одиночных аттосекундных импульсов.

Методом RABBIT впервые были экспериментально измерены не только длительность аттосекундного импульса, но и его временной профиль [15]. Авторы работы [15] использовали 40-фемтосекундный лазерный импульс излучения Ti:Sa-лазера для генерации высоких гармоник в струе аргона. Вторая струя аргона использовалась для диагностики генерируемого излучения в диапазоне гармоник с 11-й по 19-ю. В результате измерений авторы получили усреднённый профиль поля сгенерированного в данном эксперименте аттосекундного излучения, представлявшего собой последовательность импульсов длительностью 250 ас каждый; погрешность измерений составила около 20 ас. Эта методика была развита в работах [16, 117] и использована в ряде экспериментов [118–120]. Более подробно метод RABBIT и результаты, достигнутые с его помощью, описаны в обзорах [18, 121, 122].

В работе [123] метод RABBIT применён для исследования фаз высоких гармоник, генерируемых в плазме лазерного факела. Показано, что фазы гармоник, генерирующихся в этой среде, согласованы между собой; наличие резонанса с переходом из основного состояния генерирующей частицы в автоионизационное приводит к существенной добавке к фазе резонансной гармоники, в согласии с теоретическими расчётами [124, 125].

3.2. Аттосекундная стрик-камера

Метод аттосекундной стрик-камеры, как следует из его названия, является модернизацией обычной стрик-камеры. Основной принцип действия стрик-камеры — создание электронной реплики светового импульса в результате облучения фотокатода и измерение длительности полученного импульса электронов с помощью электронной оптики. Базовый принцип измерения в аттосекундной стрик-камере остался тем же. Аттосекундный импульс создаёт фотоэлектроны посредством однофотонной ионизации атомов газа, фотоэлектроны ускоряются стробирующим полем, затем измеряется угловой или энергетический спектр фотоэлектронов, который зависит от того, насколько быстро произошла фотоионизация по сравнению с длительностью оптического периода ускоряющего поля, т.е. от длительности аттосекундного импульса (рис. 7).

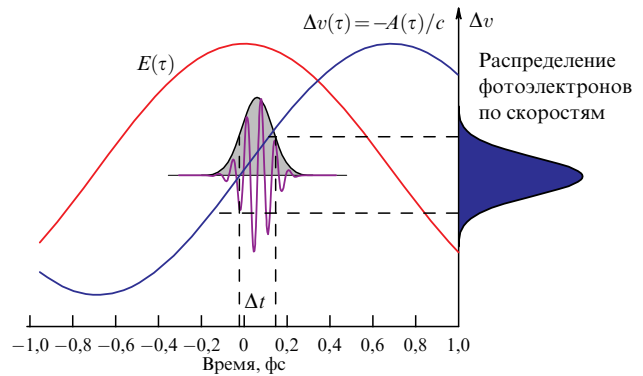


Рис. 7. К объяснению принципа измерения длительности аттосекундного импульса с помощью аттосекундной стрик-камеры при регистрации фотоэлектронов в продольном направлении.

Рассмотрим фотоэлектрон, родившийся с кинетической энергией

$$W_0 = \frac{v_0^2}{2} = \Omega - I_p \gg I_p,$$

где Ω — центральная частота АИ. (Здесь и далее используется атомная система единиц $e = m = \hbar = 1$.)

После окончания низкочастотного импульса электрон, родившийся в момент t , будет иметь конечную скорость (лазерный импульс достаточно короткий, поэтому смещение электрона в течение лазерного импульса много меньше размеров фокуса):

$$\mathbf{v}_f = \mathbf{v}_0 - \frac{\mathbf{A}(t)}{c}, \quad (6)$$

где $\mathbf{A}$ — векторный потенциал поля. Поскольку УФ-поле имеет высокую частоту и низкую интенсивность, ускорением свободного электрона УФ-полем можно пренебречь и в качестве $\mathbf{A}$ рассматривать только векторный потенциал низкочастотного поля.

Если низкочастотное поле имеет циркулярную поляризацию, то наиболее вероятное направление конечной скорости определяется направлением векторного потенциала $\mathbf{A}(t)$ в момент фотоионизации. Таким образом, измеряя угловое распределение электронов после окончания действия отклоняющего поля, можно вычислить длительность исходного аттосекундного импульса [114]. Погрешность данного метода зависит от величины начальной кинетической энергии электронов.

В работах [29, 126–128] использовалось не циркулярно, а линейно поляризованное лазерное поле. Измерялось не угловое, а энергетическое распределение электронов, вылетевших под углом θ к направлению поляризации лазерного поля, в зависимости от времени задержки τ между аттосекундным и лазерным импульсами. Из (6) можно найти энергию электрона после окончания низкочастотного импульса (полагая $A(t) \approx -[cE(t)/\omega] \times \sin(\omega t + \phi)$, где $E(t)$ — медленно изменяющаяся амплитуда лазерного поля) [126]:

$$\begin{aligned} \frac{v_f^2}{2} &= \frac{v_0^2}{2} + \frac{A^2(t)}{2c^2} \cos(2\theta) - \frac{A(t)}{c} \times \\ &\times \cos \theta \sqrt{v_0^2 - \frac{A^2(t)}{c^2} \sin^2 \theta} \approx \\ &\approx W_0 + 2U_p(t) \cos(2\theta) \sin^2(\omega t + \phi) + \alpha \sqrt{8W_0 U_p(t)} \times \\ &\times \cos \theta \sin(\omega t + \phi), \end{aligned} \quad (7)$$

где

$$\alpha = \sqrt{1 - \frac{2U_p(t)}{W_0} \sin^2 \theta \sin^2 (\omega t + \phi)}.$$

Энергетический спектр фотоэлектронов уширен по двум причинам: во-первых, конечная спектральная ширина аттосекундного импульса $\Delta\Omega$ приводит к конечной ширине начального распределения электронов по энергиям ΔW_0 ; во-вторых, конечная длительность аттосекундного импульса Δt соответствует разбросу значений t в (7), приводящему к соответствующему уширению конечного энергетического распределения. Таким образом, сигнал, регистрируемый аттосекундной стрик-камерой, содержит в себе информацию о величине Δt , восстановить которую можно при соответствующей обработке сигнала.

Рассмотрим две простейшие геометрии регистрации фотоэлектронов: в направлении электрического поля лазерного импульса и в поперечном направлении.

Регистрация в продольном направлении ($\theta = 0$). В этом случае выражение (7) с учётом условия $U_p \ll W_0$ преобразуется в следующее:

$$\frac{v_f^2}{2} \approx W_0 + 2\sqrt{2W_0U_p} \sin(\omega t + \phi). \quad (8)$$

Из (8) следует, что спектр фотоэлектронов смещается по оси энергии на величину, зависящую от того, в какую фазу лазерного поля попадает измеряемый аттосекундный импульс. Спектрограмма, дающая зависимость спектра фотоэлектронов от времени задержки (стрик-спектрограмма), регистрируется в эксперименте. Для дальнейшего извлечения информации о длительности и чирпе аттосекундного импульса эксперимент моделируется численно, при этом параметры аттосекундного импульса подбираются такими, чтобы достигалось максимальное согласие с экспериментально измеренной стрик-спектрограммой электронов.

Регистрация в поперечном направлении ($\theta = \pi/2$). В такой геометрии выражение (7) сводится к

$$\frac{v_f^2}{2} \approx W_0 - 2U_p \sin^2(\omega t + \phi), \quad (9)$$

т.е. максимум в спектре фотоэлектронов осциллирует на удвоенной частоте лазерного поля при изменении задержки между лазерным и аттосекундным импульсами.

В случае поперечной регистрации сдвиг спектра фотоэлектронов сопровождается его уширением. Формулу для ширины спектра можно получить, вычислив разность между кинетическими энергиями W электронов, вылетающих под углами $\pi/2 + \Delta\theta$ и $\pi/2 - \Delta\theta$, где $\Delta\theta$ — угловой размер электронного детектора:

$$\begin{aligned} \Delta W(t) &= W\left(\frac{\pi}{2} + \Delta\theta\right) - W\left(\frac{\pi}{2} - \Delta\theta\right) \approx \left[W\left(\frac{\pi}{2}\right) + \left|\frac{dW}{d\theta}\right|_{\theta=\pi/2} \Delta\theta\right] - \left[W\left(\frac{\pi}{2}\right) - \left|\frac{dW}{d\theta}\right|_{\theta=\pi/2} \Delta\theta\right] \approx \\ &\approx 4\sqrt{2W_0U_p} |\sin(\omega t + \phi)| \Delta\theta. \end{aligned} \quad (10)$$

Из (10) видно, что с изменением времени задержки ширина спектра фотоэлектронов испытывает помимо

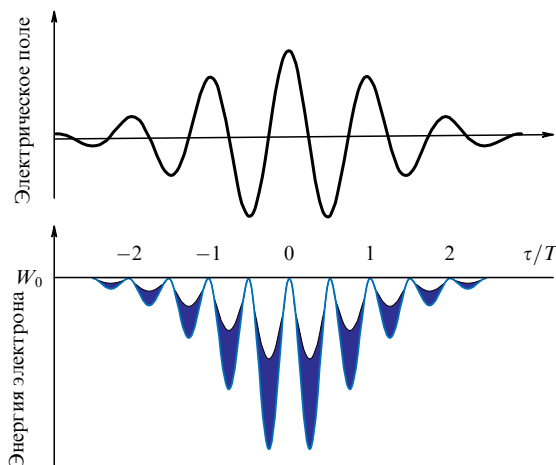


Рис. 8. К объяснению принципа измерения длительности аттосекундного импульса с помощью аттосекундной стрик-камеры при регистрации фотоэлектронов в поперечном направлении.

сдвига (9) осцилляции по закону $|\sin(\omega t + \phi)|$. Соответствующая стрик-спектрограмма для случая ультракороткого импульса ускоряющего поля представлена на рис. 8. Длительность аттосекундного импульса определяется согласно критерию наибольшего соответствия между рассчитанной и измеренной спектрограммами.

Методом стрик-камеры с регистрацией в поперечном направлении в работе [29] получено значение длительности одиночного аттосекундного импульса в 650 ас при воздействии на атомы криптона лазерным импульсом длительностью около 7 фс. Согласно оценкам погрешность измерений составила 150 ас.

У каждой из двух рассмотренных выше геометрий есть свои преимущества. Из сравнения выражений (8) и (9) видно, что смещение спектра фотоэлектронов больше при продольном детектировании, так как в (8) входит первая степень напряжённости лазерного поля, тогда как в (9) она входит квадратично. Таким образом, для измерений в продольном направлении можно использовать лазерное поле меньшей интенсивности, что понижает шум в измеряемом сигнале, вызванный фотоэлектронами, появившимися в результате ионизации низкочастотным полем.

С другой стороны, недостатком схемы продольной регистрации является то, что вносимый лазерным полем энергетический сдвиг зависит от начальной энергии электрона. Такая зависимость становится существенной, если спектральная ширина электронного волнового пакета сравнима с его средней энергией. Схема с поперечной регистрацией лишена этого недостатка (см. выражение (9)).

Описанный выше метод аттосекундной стрик-камеры является самым простым с точки зрения реализации в эксперименте из всех методов, рассматриваемых в настоящем обзоре, но в то же время он даёт лишь минимум информации об исследуемом аттосекундном импульсе. Представленные далее методы позволяют извлекать более полную информацию об аттосекундных импульсах.

Минимальная длительность Δt , которая может быть измерена с помощью аттосекундной стрик-камеры, определяется следующим условием: изменение энергии электрона за счёт стробирующего поля сравнимо с неопределённостью энергии электрона непосредственно после фотоионизации [53]. При оптимальных условиях (при

продольном детектировании, при фотоионизации вблизи пика стробирующего поля) это условие даёт

$$\Delta t \propto \frac{1}{\sqrt{v_0 E_0}}. \quad (11)$$

Выражение (11) представляет собой лишь грубую оценку. При высоком значении отношения сигнал/шум разрешение метода может быть выше [30, 129, 130].

Отметим, что метод аттосекундной стрик-камеры не предполагает обязательной стабилизации абсолютной фазы лазерного излучения. Более подробно метод аттосекундной стрик-камеры, а также другие рассмотренные ниже методы, основанные на оптическом стробировании, описаны в обзорах [131–134].

3.3. Спектр фотоэлектронов при оптическом стробировании

Модуляция спектра фотоэлектронов с помощью низкочастотного поля, лежащая в основе принципа работы аттосекундной стрик-камеры, позволяет проводить более полные измерения как аттосекундного УФ-импульса, так и самого лазерного поля. В этом разделе мы приведём общее выражение для электронного спектра.

Пусть поле аттосекундного импульса имеет вид

$$E_X(t) = a_X(t) \exp(-i\Omega t) + \text{с.с.} \quad (12)$$

Можно показать [126, 127, 135, 136], что электронный спектр, измеренный в продольном направлении при задержке τ между низкочастотным лазерным и высокочастотным аттосекундными импульсами (как и выше, при предположении, что высокочастотное поле определяет только фотоионизацию, а низкочастотное — только ускорение после фотоионизации), может быть представлен в виде

$$\sigma(v, \tau) = |d(v)|^2 \left| \int_{-\infty}^{+\infty} a_X(t) G(t - \tau) \times \right. \\ \left. \times \exp\left[\frac{it(v^2 - v_0^2)}{2}\right] dt \right|^2, \quad (13)$$

где

$$G(t - \tau) = \exp[i\Theta(t - \tau)], \quad (14)$$

$$\Theta(t) = -v \int_t^{+\infty} A(t') dt' - \frac{1}{2} \int_t^{+\infty} A^2(t') dt', \quad (15)$$

v — конечная скорость электрона, $d(v)$ — дипольный момент перехода из связанного состояния в атоме в свободное состояние электрона, движущегося со скоростью v . При выводе выражения (13) предполагается, что эта функция является гладкой (отсутствуют резонансы) и достаточно "медленной", так что $d(v) \approx d(v + A(t))$. Отметим, что функция $|d(v)|^2$, как правило, известна из независимых экспериментов.

В случае очень короткого аттосекундного импульса модификация спектра стробирующим полем сводится к сдвигу [137], полученному при классическом рассмотрении в разделе 3.2. Для более длинного УФ-импульса модификация спектра носит более сложный характер [138–143]. Наконец, для цуга аттосекундных импульсов модификация спектра представляет собой появление дополнительных линий на частотах чётных гармоник, как рассмотрено при описании метода RABBIT.

Выше отмечалось, что использование такого метода, как аттосекундная стрик-камера, позволяет проводить измерения не только над аттосекундным импульсом, но и над самим лазерным полем; причём в методе аттосекундной стрик-камеры объектом измерений становятся уже не усреднённые по периоду величины, как в методах фемтосекундной оптики, а изменение лазерного поля на масштабе времён внутри одного периода. Наиболее непосредственным образом такие измерения осуществляются в случае использования короткого одиночного аттосекундного импульса с регистрацией электронов в продольном направлении: тогда при достаточно большой начальной энергии электрона (определяемой средней энергией фотона в аттосекундном импульсе) сдвиг его энергии в результате действия лазерного поля пропорционален векторному потенциалу электрического поля лазерного импульса в момент ионизации (см. проведённое в разделе 3.2 классическое рассмотрение). В случае лазерного импульса со стабилизированной абсолютной фазой (или в более общем случае со стабилизированной волновой формой) измерение спектров кинетической энергии электронов в зависимости от варьируемой задержки между аттосекундным и лазерным импульсами позволяет прописать временной профиль осцилляций электрического поля. Первый демонстрационный эксперимент, в котором было осуществлено такое измерение, представлен в [144]. Появившаяся возможность проведения подобных измерений играет большую роль в развитии таких важных направлений физики сверхбыстрых процессов, как контролируемый синтез волновых форм ультракоротких оптических импульсов и их применение для управления электронными процессами, аттосекундная спектроскопия и петагерцевая электроника [145–148].

3.4. Метод FROG-CRAB

Структура выражения (13) для спектра фотоэлектронов позволяет рассматривать его как спектрограмму искомым функцией $a_X(t)$ (т.е. преобразование Фурье от произведения функции $a_X(t)$ на временное окно $G(t - \tau)$). В отличие от временного окна в стандартном методе FROG, развитом в фемтосекундной оптике, в данном случае временное окно является не амплитудным, а фазовым (см. выражения (14), (15)). Поскольку временное окно существенно меняется на субфемтосекундных временах, это даёт возможность проводить измерения субфемтосекундных длительностей. Применение итеративных алгоритмов, разработанных ранее для восстановления фемтосекундных импульсов [149] или созданных специально для определения характеристик аттосекундных импульсов [150–154], позволяет восстановить из спектра (13), измеренного для различных τ , комплексную амплитуду аттосекундного импульса $a_X(t)$ и зависимость мгновенного значения низкочастотного поля от времени $E(t)$ (что, разумеется, предполагает стабилизацию абсолютной фазы низкочастотного поля). Метод получил название FROG-CRAB (FROG for Complete Reconstruction of Attosecond Bursts) [119, 136, 150]. Благодаря большому объёму информации, содержащемуся в спектрограмме, разрешающая способность метода (при высоком соотношении сигнал/шум) может быть существенно выше, чем даёт оценка (11). Метод FROG-CRAB делает в принципе возможным восстановление параметров не только одного АИ, но и параметров каждого из серии аттосекундных импульсов, хотя последнее пред-

полагает повышение требований к отношению сигнал/шум в спектре. В случае цуга из большого числа АИ спектр в областях между гармониками состоит в основном из шума, и тогда измерения могут быть проведены только с помощью RABBIT.

Метод FROG-CRAB впервые успешно использовался в работе [67], где в результате оптимизации параметров эксперимента удалось получить практически спектрально ограниченный одиночный аттосекундный импульс длительностью всего 130 ас, а в [96] этим методом были измерены одиночные АИ длительностью 67 ас, полученные методом поляризационного затвора в двухцветном лазерном поле. Полное временное восстановление характеристик цуга аттосекундных импульсов с помощью метода FROG-CRAB экспериментально показано в [155]. В частности, продемонстрировано извлечение информации как об огибающей цуга аттосекундных импульсов, так и о детальной структуре каждого импульса в генерируемом цуге, включая информацию об относительных вкладах длинных и коротких траекторий и величине соответствующего аттоцирпа.

Таким образом, FROG-CRAB является весьма мощным методом восстановления формы аттосекундных импульсов, однако у него также есть недостаток, присущий всем описанным выше методам, основанным на оптическом стробировании. А именно, временное разрешение метода определяется интенсивностью низкочастотного стробирующего поля (подробнее об этом говорилось в разделе 3.2). В результате для измерения очень коротких АИ с широким спектром может потребоваться настолько высокая интенсивность низкочастотного поля, что оно само будет приводить к ионизации атома. Как следствие, полезный сигнал в спектрограмме будет зашумлённым или даже полностью подавленным сигналом, обусловленным электронами, оторванными от атома низкочастотным полем. В работе [156] предложен способ измерения аттосекундных импульсов, позволяющий обойти указанное ограничение.

Для измерения аттосекундных импульсов в [156] предложено использовать всё те же спектрограммы, но специальным образом отфильтрованные: из всего набора данных необходимо посредством спектральной фильтрации выделить лишь компоненту, осциллирующую с частотой стробирующего поля при изменении времени задержки, и полученную таким образом спектрограмму использовать для восстановления параметров АИ. Далее, как и в методе FROG-CRAB, для нахождения параметров АИ используется итерационный алгоритм. Благодаря спектральной селекции наиболее информативной части из полных данных спектрограммы удастся значительно повысить временную разрешающую способность метода при умеренных интенсивностях стробирующего поля ($10^{11} - 10^{12}$ Вт см⁻²). Метод, получивший название PROOF (Phase Retrieval by Omega Oscillation Filtering), позволяет измерять существенно более короткие импульсы, длительностью 20 ас и даже менее. В [68] с помощью метода PROOF измерены одиночные импульсы длительностью около 53 ас, полученные методом поляризационного затвора. Заметим, что, поскольку PROOF предполагает использование стробирующего поля невысокой интенсивности, при которой доминирующий вклад в спектрограмму вносят переходы с участием помимо фотона гармоники лишь одного ИК-фотона, этот метод в определённом смысле является близким к методу

RABBIT, но предназначенным для измерения одиночных аттосекундных импульсов.

3.5. Метод SPIDER

SPIDER (Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction), так же как и FROG, является мощнейшим методом для измерения фемтосекундных импульсов в оптике. Преимущество SPIDER состоит в том, что алгоритм восстановления импульса из экспериментальных данных является чисто аналитическим, т.е. не требует привлечения итерационных алгоритмов. Кроме того, в эксперименте требуется измерение не спектрограммы, а всего одного спектра. Метод основан на интерференции двух реплик измеряемого импульса, несколько сдвинутых относительно друг друга по времени и по частоте. Пусть $E(\omega)$ — фурье-образ одной из реплик. Тогда фурье-образ реплики, сдвинутой по времени на τ и по частоте на ω' , выражается как $\exp(i\omega\tau)E(\omega - \omega')$. Обе реплики подаются на вход спектрометра. Формируемая при этом интерферограмма имеет вид

$$S(\omega) = |E(\omega) + \exp(i\omega\tau)E(\omega - \omega')|^2. \quad (16)$$

Отсюда аналитически однозначно восстанавливается поле исходного импульса [111, 157].

Трудность реализации данного метода применительно к аттосекундным импульсам заключается в изменении частоты одной из реплик. В оптике эта задача решается смещением обеих реплик с двумя различными частями длинного chirпированного импульса, различающимися по частоте на величину ω' , на нелинейном кристалле. Реализовать данный механизм в случае аттосекундных импульсов не удастся, поскольку, как отмечалось выше, нелинейности в требуемом диапазоне частот крайне малы, а интенсивность аттосекундных импульсов недостаточно высока. К настоящему времени предложено несколько модификаций методики SPIDER применительно к измерению аттосекундных импульсов.

В работе [158] предложена схема измерения, основанная на описанном выше оптическом стробировании. Две сдвинутые лишь по времени реплики аттосекундного импульса создают при фотоионизации газа в присутствии стробирующего поля два электронных волновых пакета, сдвинутых не только по времени, но и по энергии, так как фотоионизация происходит при различных фазах стробирующего поля. Важное преимущество рассматриваемого метода по сравнению с описанными выше состоит в том, что требуются гораздо меньшие напряжённости стробирующего поля, поэтому предположение о невозможности им процесса фотоионизации является очень надёжным. Применяя к спектру фотоэлектронов стандартную процедуру восстановления SPIDER, можно определить временной профиль электронного волнового пакета, а по нему — поле исходного аттосекундного импульса. Недостаток этой схемы заключается в том, что измеряемой величиной является спектр фотоэлектронов, а разрешения (по энергии) современных электронных спектрометров ещё недостаточно для необходимой в данном случае точности регистрации спектра.

Авторами работы [159] предложено сразу генерировать две реплики аттосекундного импульса, немного различающиеся по частоте. В этом случае реализуется классическая чисто оптическая схема SPIDER, в которой ре-

гистрирующим элементом служит обычный рентгеновский спектрометр с разрешением, намного превосходящим энергетическое разрешение электронного спектрометра. Генерировать две реплики аттосекундного импульса предложено с помощью двух фемтосекундных импульсов, немного сдвинутых (на величину порядка 1 % или даже менее) по частоте. Частотный сдвиг аттосекундных импульсов будет значительно выше (примерно во столько раз, во сколько раз центральная частота АИ больше частоты генерирующего поля), что и обеспечивает нужную величину частотного сдвига. То, что сдвиг аттосекундного излучения является функцией частоты его спектральных компонент, а не постоянной величиной, как в классической схеме SPIDER, не мешает стандартной процедуре восстановления поля импульса. Недостатком рассматриваемой схемы является то, что генерирующая газовая среда частично ионизируется первым фемтосекундным импульсом и не успевает восстановиться к моменту прихода второго импульса. Для решения последней проблемы авторы [159] предложили заменить временное разнесение импульсов пространственным, что позволяет избавиться от вышеупомянутого нежелательного эффекта, а процедура восстановления SPIDER легко модифицируется под такую конфигурацию схемы эксперимента.

В [160] приведены результаты первого эксперимента, использующего методику SPIDER с двумя разнесёнными во времени репликами лазерного импульса, а также измерен временной профиль 11-й гармоники.

Очевидно, что экспериментальная реализация метода SPIDER достаточно сложна. Однако для измерения длительностей, существенно меньших оптического периода, этот метод является одним из предпочтительных. Его временное разрешение определяется точностью контроля над временной задержкой между репликами измеряемого излучения, а также между репликами и пиками стробирующего поля. Важно, что в качестве реплик могут использоваться аттосекундные импульсы, генерируемые на двух последовательных полупериодах лазерного поля [158, 161]. Поскольку, как отмечалось, стробирующее поле когерентно с генерирующим, точность контроля над временными задержками может быть очень высокой.

3.6. Измерения *in situ*

Описанные выше методы аттосекундной метрологии относятся к классу методов *ex situ*, в которых генерация и измерение аттосекундных импульсов осуществляются в различных газовых мишенях. Альтернативу такому подходу составляют измерения *in situ*, проводимые в той же среде, где генерируются высокие гармоники. Подход *in situ*, в отличие от подходов *ex situ*, позволяет измерять характеристики аттосекундных импульсов непосредственно в процессе их генерации. В работе [162] для таких измерений предложено добавить к генерирующему лазерному полю слабое поле на второй гармонике. Вследствие низкой интенсивности поля на второй гармонике оно оказывает существенное влияние только на динамику свободных электронов. Таким образом, моменты отрыва электрона от атома или молекулы и его рекомбинации эффективно ограничивают возмущение во времени, создавая тем самым временную маску. Поле второй гармоники нарушает исходную симметрию процесса ионизации частиц среды, приводя к появлению

чётных гармоник. Интенсивность этих гармоник максимальна тогда, когда максимум поля второй гармоники в наибольшей степени перекрывается с интервалом времени свободного движения электрона. Анализируя спектр высоких гармоник как функцию от времени задержки между основным излучением и второй гармоникой, можно восстановить параметры аттотирпа, в значительной степени определяющего временной профиль поля генерируемых аттосекундных импульсов. Нетрудно увидеть, что концептуально данный метод весьма близок к методу RABBIT.

Так как описанный выше метод подразумевает нарушение симметрии временной динамики процесса, лежащего в основе генерации высоких гармоник, между соседними полуосцилляциями лазерного поля, его прямое использование не может обеспечить адекватного измерения одиночных аттосекундных импульсов. Чтобы устранить указанный недостаток, в работе [163] предложена небольшая модификация метода. Вместо использования коллинеарных пучков предложено направлять пучок на второй гармонике под небольшим углом к основному лазерному излучению. В результате фазовый сдвиг между компонентами на частотах ω и 2ω в области лазерного фокуса оказывается зависящим от вертикальной координаты. Как следствие, фаза излучения гармоники также становится изменяющейся в вертикальном направлении. Временное нарушение симметрии процесса генерации гармоник тогда заменяется пространственным, так как под влиянием поля второй гармоники искажается волновой фронт генерируемого излучения. Снимаемая угловое распределение сигнала гармоник в дальней зоне от времени задержки между основным излучением и второй гармоникой, можно получить полный аналог спектрограммы, используемой в методе FROG-CRAB для восстановления параметров аттосекундного импульса. Для восстановления параметров АИ применяется аналогичный итерационный алгоритм. Данный метод получил название STRAP (Space – Time Reconstruction of Attosecond Pulses).

Преимуществом методов *in situ* является то, что они требуют измерения лишь спектра генерируемого сигнала, а не электронных реплик аттосекундных импульсов, т.е. являются чисто оптическими. Однако у них есть и существенные недостатки, обусловленные тем, что измерение неразрывно связано с самим процессом генерации аттосекундного излучения. Во-первых, методы *in situ* базируются на использовании второй гармоники в качестве слабого возмущения, поэтому с их помощью можно характеризовать только излучение, генерируемое в одноцветном поле. Во-вторых, если после самого процесса генерации аттосекундный импульс ещё каким-либо образом модифицируется (например, аттотирп устраняется в диспергирующей среде), то для измерения конечного импульса потребуются использование стандартных методов *ex situ*. Преимущества и недостатки измерений *in situ* подробно описаны в обзоре [164].

3.7. Автокорреляционные методы

Хотя на сегодняшний день в подавляющем большинстве случаев для измерений аттосекундных импульсов используется принцип оптического стробирования, в последнее время повышение интенсивности получаемых аттосекундных импульсов сделало возможным эксперименты за рамками этого подхода.

На сегодня хорошо разработаны методы измерения автокорреляционной функции лазерного импульса с помощью нелинейных процессов второго порядка. При измерениях в УФ-диапазоне в качестве квадратичной нелинейности может быть использована двухфотонная ионизация атомов: выход фотоэлектронов или ионов в зависимости от временной задержки между двумя репликами УФ-импульса характеризует его автокорреляционную функцию. В случае УФ-излучения ввиду отсутствия недиспергирующих светоделителей, применяемых для оптического диапазона, для реализации варьируемой задержки используются делители волнового фронта, представляющие собой сферическое зеркало, разделённое на две части, одна из которых фиксирована в пространстве, а другая смещается с помощью пьезоподвижки. Согласно оценкам минимальная интенсивность УФ-излучения, необходимая для надёжной регистрации нелинейного ионизационного сигнала, составляет более 10^{10} Вт см $^{-2}$ [134]. Получение таких и даже больших интенсивностей возможно, в частности, за счёт пространственной фокусировки высоких гармоник [21, 22, 165]. Описанный автокорреляционный метод был предложен и использован для измерений фемтосекундных [166], а затем и субфемтосекундных [17, 167–169] УФ-импульсов как в виде пуга [17, 167, 168], так и в виде одиночного АИ [169, 170]. Кроме того, использование этой нелинейности позволило провести и более полное восстановление аттосекундного импульса: в работе [171] реализован практически полный аналог оптического метода FROG. В эксперименте [171] регистрировался спектр фотоэлектронов как функция времени задержки τ между двумя репликами аттосекундного импульса $E_X(t)$:

$$\sigma(W, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} E_X(t) E_X(t - \tau) \exp(iWt) dt \right|^2, \quad (17)$$

где W — энергия фотоэлектрона. Видно, что эта спектрограмма формально идентична спектрограмме FROG при реализации рассматриваемого метода для фемтосекундных импульсов. Схожий подход предложен в [172] для измерения характеристик пуга АИ.

Описанные выше в настоящем разделе методы основаны на использовании нерезонансного двухфотонного процесса фотоионизации. Использование резонансных процессов позволяет существенно (на несколько порядков величины) снизить требования к интенсивности УФ-излучения. В [173–175] предложен метод, основанный на резонансном возбуждении и последующей диссоциации возбуждённых молекул. Также возможно использование резонансного двухфотонного процесса возбуждения высоколежащего автоионизационного состояния; фотовозбуждение автоионизационного состояния атомов гелия с помощью комбинации 19-й и 21-й гармоник титан-сапфирового лазера исследовано в работе [176]. С применением подходов [173–176] может быть исследовано УФ-поле в относительно узком спектральном диапазоне, определяемом энергией возбуждённого состояния. Свободным от этого недостатка является метод ART (Attosecond pulse Reconstruction using Raman-type Transitions) [177], основанный на использовании рамановских двухфотонных переходов: для таких переходов энергия УФ-фотона может быть существенно выше, чем энергия возбуждённого уровня.

Преимуществом использования резонансных процессов является также относительная простота регистрации,

так как измерение эффективности диссоциации молекул или эффективности фотовозбуждения атомов существенно проще, чем измерение спектра фотоэлектронов. В [177] предложен также полностью оптический вариант метода измерения автокорреляции аттосекундных импульсов.

Описанные в разделах 3.1–3.6 методы требуют использования нелинейных взаимодействий света с веществом. Кроме того, все рассмотренные там методы требуют проведения серии измерений при различных задержках между составляющими используемых многокомпонентных световых полей и обладают высокой чувствительностью к шумам. В работах [178–180] развит полностью оптический метод "двойной слепой голографии" (Double-blind holography), основанный на линейных измерениях спектров двух неизвестных ультракоротких импульсов и их спектральной интерференции. В работе [180] продемонстрирована реализация этого метода на примере аттосекундных импульсов гармоник, генерируемых в двух различных газах и в их смеси. Продemonстрирована также возможность осуществления процедуры восстановления на основе однократного измерения над парой задержанных относительно друг друга аттосекундных импульсов, что позволяет в перспективе применять такой подход в случаях, когда генерируемые ультракороткие импульсы обладают низкой повторяемостью (характерной, например, для импульсов, генерируемых лазерами на свободных электронах).

Некоторые другие методы измерения аттосекундных импульсов и новые алгоритмы восстановления их характеристик представлены в [133, 134].

4. Применения аттосекундных импульсов

Создание технологий получения аттосекундных импульсов явило собой новый этап в развитии экспериментальной физики и химии сверхбыстрых процессов. Использование аттосекундных импульсов обеспечило ряд принципиально новых возможностей для исследования светоиндуцированных процессов в веществе и управления этими процессами.

4.1. Аттосекундное зондирование электронных процессов

Одним из наиболее бурно развивающихся направлений аттосекундной физики стала аттосекундная спектроскопия. Среди подходов к осуществлению спектроскопических измерений с субфемтосекундным временным разрешением наиболее естественным представляется подход, подразумевающий реализацию принципа "аттосекундная накачка – аттосекундное зондирование". Однако из-за недостаточной высокой интенсивности аттосекундных импульсов, получаемых в настоящее время, и низкой эффективности нелинейных процессов в ВУФ-диапазоне и рентгеновском диапазоне такой подход пока не получил значительного развития. Основной используемый в аттосекундной спектроскопии подход, реализованный, в частности, в таких описанных в разделе 3 методах аттосекундной метрологии, как аттосекундная стрик-камера [53, 126] и RABBIT [15, 181], а также в аттосекундной абсорбционной спектроскопии [182, 183], является подходом смешанного типа: в качестве одного из импульсов (накачки или зондирования) служит аттосекундный импульс (или пуг импульсов) излучения ВУФ-диапазона или рентгеновского диапазона, а в качестве другого —

синхронизированный с ним интенсивный фемтосекундный лазерный импульс оптического диапазона от того же источника, который использовался для получения аттосекундных импульсов. Важными с точки зрения временного разрешения в этом случае являются длительность аттосекундных импульсов и точность контроля за фазой лазерного импульса и его задержкой относительно АИ. С учётом имеющихся достижений можно констатировать: к настоящему времени становятся доступными временные измерения с разрешением в несколько десятков аттосекунд, что уже продемонстрировано в экспериментах [184].

4.1.1. Аттосекундная фотоэлектронная спектроскопия.

Аттосекундная стрик-камера. Временная зависимость ионизационных токов, возникающих при испускании первичных фотоэлектронов вследствие однофотонного фотоэффекта, в значительной мере повторяет временной профиль интенсивности аттосекундного импульса. В случае АИ с длительностью, значительно меньшей периода стробирующего лазерного поля, профиль стрик-спектрограммы будет представлять собой осцилляции, повторяющие осцилляции векторного потенциала стробирующего поля и уширенные в соответствии со спектральной шириной аттосекундного импульса. Испускание вторичных электронов (возникающих, например, вследствие оже-процесса) может обладать характерной длительностью, сравнимой с периодом лазерного поля или даже превышающей её. В этом случае в получаемой стрик-спектрограмме возникают интерференционные модуляции, расшифровка которых (например, посредством сравнения с результатами теоретического моделирования) позволяет извлекать информацию о динамике соответствующего вторичного процесса. Первым примером таких наблюдений стало использование аттосекундной стрик-камеры для измерения времени оже-процесса в атомах криптона [185]. Измеренное время жизни вакансии на М-оболочке атома Кг составило около 7,9 фс.

Другим важным аспектом динамики ионизационных процессов является временная задержка ионизации. Теория ионизационных процессов связывает эту величину с так называемой вигнеровской задержкой, впервые введённой Айзенбудом, Вигнером и Смитом [186–188] при рассмотрении задачи рассеяния электронов потенциальной ямой. Вигнеровская задержка, определённая в задаче рассеяния как производная от фазы рассеяния по энергии частицы E , интерпретируется как время задержки центральным потенциалом рассеиваемого им волнового пакета. Поскольку ионизацию можно рассматривать как частный случай рассеяния, в теории ионизационных процессов также вводится аналогичная вигнеровской задержке величина, интерпретируемая в данном случае как задержка по времени между импульсом света и вылетом электрона.

Экспериментальные исследования задержек фотоионизации стали возможными в результате появления техники получения импульсов длительностью менее 100 ас. Одним из первых таких исследований в атомарных газах стало измерение времени задержки между моментами ионизации из разных электронных состояний (2s- и 2p-состояния в неоне) [184]. Найденная задержка составила 20 ас, что в то время явилось рекордно малым *временным* интервалом, измеренным при наблюдениях микропроцессов в веществе. Проведённые измерения стимулиро-

вали развитие нового направления аттосекундной физики, связанного с исследованием инерции ионизационных процессов. Такие исследования представляют большой интерес как с фундаментальной точки зрения, так и в контексте решения проблемы "нуля времени" в аттосекундных измерениях. Многочисленные теоретические работы, посвящённые этой проблеме, выявили, что теории, учитывающие влияние многоэлектронных корреляций на фотоионизацию, дают, как правило, значительно меньшее время (~ 5 ас) вигнеровской задержки ионизации по сравнению с задержками, наблюдавшимися в экспериментах. Существенные расхождения с результатами экспериментов поставили под вопрос как точность теорий фотоионизации сложных атомов, так и границы применимости приближений (в первую очередь приближения сильного поля), лежащих в основе анализа данных измерений методом аттосекундной стрик-камеры. Результаты теоретических и экспериментальных исследований в этой области приведены, например, в обзоре [189] и цитируемой там литературе. Установлено, в частности, что существенный вклад в экспериментально измеряемую аттосекундной стрик-камерой задержку вносят такие не имеющие отношения к вигнеровской задержке артефакты, как влияние кулоновского поля родительского иона на движение свободного электрона под действием зондирующего лазерного поля и лазерно-индуцируемая поляризация исследуемого атома.

Усовершенствование методики эксперимента с использованием аттосекундной стрик-камеры позволило провести измерения, проливающие свет на роль многоэлектронных взаимодействий в фотоэффекте [190]. В качестве объекта исследований был выбран атом гелия — простейшая многоэлектронная система, для которой могут быть произведены точные численные квантовомеханические расчёты; результаты эксперимента сравнивались с соответствующими численными расчётами, что позволило из обработки экспериментальных данных извлечь высокоточную информацию о временах задержки между разными каналами фотоэмиссии: прямого отрыва электрона и процесса, в котором часть энергии поглощённого ВУФ-фотона уносится отрываемым электроном, а другая её часть расходуется на возбуждение ("встряхивание") второго атомарного электрона. Измерения с различными энергиями ВУФ-фотона позволили получить детальную информацию о процессе внутриатомного перераспределения энергии, обусловленного межэлектронными корреляциями. Точность измерений временных задержек при этом впервые в аттосекундной физике достигла субаттосекундного уровня (до 850 зс).

Хотя первоначально основным объектом исследований, связанных с применением аттосекундных импульсов, были газовые среды, принцип аттосекундной стрик-камеры находит всё более широкое применение и для исследования электронных процессов в твёрдых телах. В первом демонстрационном эксперименте [191] исследовался процесс переноса заряда в кристалле вольфрама. Сравнение спектрограмм электронов, удалённых аттосекундным импульсом с глубоких уровней и из области вблизи поверхности Ферми, позволило для времени задержки между эмиссией электронов, локализованных вблизи ядер, и делокализованных электронов вблизи границы зоны проводимости получить значение ~ 110 ас, что даёт соответственный временной масштаб транспорта электронов в вольфраме. В резком противоречии с

результатами измерений в вольфраме, аналогичные измерения в магнии [192] не выявили (в пределах экспериментальной точности ~ 20 ас) различий в моментах испускания с поверхности для исходно глубоко локализованных электронов и делокализованных электронов валентной зоны. Полученные в [192] результаты свидетельствуют: исходная степень локализации электронов является не единственным и, по-видимому, не самым важным фактором, определяющим динамику фотоэмиссии в твёрдых телах; значительно более важную роль могут играть характеристики вещества, определяющие транспорт электронов (энергетические зависимости групповых скоростей электронных волновых пакетов и средних длин их свободного пробега) в веществе. Продemonстрированные возможности аттосекундной фотоэмиссионной спектроскопии, несомненно, найдут дальнейшее применение в исследованиях на естественных временных масштабах электронных процессов динамики зарядов в твёрдых телах и на поверхностях.

Фотоэлектронная интерферометрия. К данной группе относятся методы, в которых информация об исследуемых процессах извлекается из наблюдений интерференционной модуляции спектров фотоэлектронов и её изменений при варьировании времени задержки между исходно синхронизованными импульсами ВУФ- и ИК-излучения. В качестве ВУФ-излучения могут использоваться как одиночные аттосекундные импульсы, так и их пучки, получаемые при ГГВП ИК-излучения.

Укажем в качестве примера использования одиночных аттосекундных импульсов на продемонстрированный в [193] интерферометрический метод измерения характеристик электронных волновых пакетов (ЭВП) связанных состояний, возбуждаемых при воздействии на атомы или молекулы одиночным аттосекундным импульсом. Аттосекундное излучение подбирается таким образом, что его спектральный состав позволяет одновременно возбуждать ЭВП и связанных, и свободных состояний. В качестве опорного сигнала используется ЭВП связанных состояний, а зондирующим служит импульс ИК-излучения, который направляется в среду с регулируемой задержкой относительно аттосекундного импульса и осуществляет дополнительную ионизацию частиц газа. ЭВП свободных состояний, создаваемые прямой (ВУФ) и двухступенчатой (ВУФ + ИК) ионизацией, интерферируют; обработка интерферограммы, получаемой при измерениях спектров фотоэлектронов при различных относительных задержках ВУФ- и ИК-импульсов, позволяет извлекать информацию о спектральном составе ЭВП связанных состояний. Спектральное разрешение при этом определяется обратной величиной ВУФ/ИК-задержки и оказывается в несколько сотен раз больше величины, определяемой шириной фурье-спектра возбуждающего (аттосекундного) импульса.

Как одно из направлений исследований, опирающихся на использование последовательностей аттосекундных импульсов (RABBIT и т.п.), отметим измерения динамики процессов фотоэмиссии, осуществляемые посредством наблюдения и обработки интерференционной составляющей в спектре испущенных электронов при воздействии на исследуемую среду пучком импульсов ВУФ-излучения и репликой ИК-импульса, применявшегося для получения этого пучка АИ. Одним из первых экспериментальных исследований, продемонстрировавших возможности измерения времени задержки между

моментами ионизации из разных электронных состояний с помощью интерференционной методики, стала работа [194]. Измерения в [194] основывались на сравнении спектрограмм свободных электронов, полученных в результате ионизации из 3s- и 3p-состояний аргона под действием излучения высоких гармоник в присутствии небольшой добавки поля на основной частоте с варьируемой временной задержкой.

Отметим также работы, продемонстрировавшие влияние атомных [195] и молекулярных [196, 197] резонансов на фазовые сдвиги модуляции определённых компонент сигнала фотоионизации в методе RABBIT. В качестве примера экспериментальных наблюдений таких эффектов следует отметить работу [198], где измерены задержки фотоионизации молекулы N_2O , связанные с влиянием резонансов формы. Такие резонансы наблюдаются тогда, когда эффективный потенциал, являющийся суммой молекулярного и центробежного потенциалов, образует ловушку, в которой возникают метастабильные состояния; захват фотоэлектрона в ловушку вызывает задержку его отрыва от молекулы. В исследованном в работе [198] энергетическом интервале от 20 до 40 эВ выявлено несколько резонансов формы, соответствующих разным электронным состояниям; максимальная резонансная задержка, в основном обусловленная этими резонансами, составила около 160 ас.

Первоначальная версия метода RABBIT подразумевала анализ интегральных по энергии осциллирующих дополнительных максимумов в спектрах фотоэлектронов. Однако высокое спектральное разрешение современных электронных спектрометров позволяет проводить такие измерения с разрешением по энергии. Соответствующая техника, получившая название Rainbow RABBIT (rainbow — радужный, многоцветный) [199, 200], позволяет измерять изменения спектральных амплитуд и фаз регистрируемого сигнала в пределах отдельного дополнительного пика. Такие изменения могут быть значительными тогда, когда континуум энергетических состояний атома или молекулы в данном интервале энергий обладает резкой структурой, что наблюдается, например, в случаях, соответствующих автоионизационным состояниям, резонансам формы, куперовским минимумам и др. Измерения, возможность которых предоставляет метод Rainbow RABBIT, позволяют определять относительные вклады различных ионизационных процессов в регистрируемый сигнал или анализировать сложные электронные волновые пакеты.

4.1.2. Аттосекундная абсорбционная спектроскопия.

Одним из мощных методов экспериментальных исследований в аттосекундной физике в последнее время становится аттосекундная спектроскопия нестационарного поглощения (Attosecond Transient Absorption Spectroscopy, ATAS) [182, 193, 201]. В отличие от представленных выше методов, метод ATAS является полностью оптическим — он основан на наблюдении изменений интегрального или разрешённого по спектру поглощения энергии аттосекундного импульса при варьировании задержки между ним и синхронизованным с ним фемтосекундным лазерным импульсом. Оптическая схема регистрации, используемая методом ATAS, привлекательна тем, что она значительно проще с точки зрения технической реализации, чем лежащие в основе методов аттосекундной фотоэлектронной спектроскопии схемы,

требующие измерения спектров электронов. Более того, техника аттосекундного нестационарного поглощения не накладывает серьёзных ограничений на интенсивность лазерного излучения и может успешно использоваться как при низких интенсивностях, когда вероятность ионизации и ponderomotive энергия электронов недостаточно велики для обеспечения приемлемых уровней сигнала и энергетического разрешения методов фотоэлектронной спектроскопии, так и при высоких интенсивностях, когда появление большого числа дополнительных каналов ионизации затрудняет интерпретацию электронных спектров. Важным достоинством рентгеновских спектрометров, применяемых в аттосекундной абсорбционной спектроскопии, является их высокое спектральное разрешение, необходимое для регистрации тонких изменений спектров пропускания исследуемых сред [202]. В отличие от аттосекундной фотоэлектронной спектроскопии, метод ATAS позволяет одновременно наблюдать динамику состояний, лежащих как выше, так и ниже порога ионизации.

Метод ATAS подразумевает два основных сценария, различающихся порядком следования ИК- и ВУФ-импульсов. В более традиционном сценарии (ИК→ВУФ) среда сначала подвергается воздействию ИК-импульса, который возбуждает в ней тот или иной динамический процесс. Этот процесс зондируется аттосекундным ВУФ-импульсом, посылаемым с варьируемой задержкой τ . В данном случае информация о динамике исследуемого процесса содержится в зависящей от задержки τ интегральной или разрешённой по энергии фотонов интенсивности прошедшего через среду ВУФ-излучения (рис. 9). В другом, кажущемся менее логичным, сценарии (ВУФ→ИК) аттосекундный импульс воздействует на среду раньше пика ИК-импульса (или перекрывается с ним). В этом случае аттосекундный импульс играет роль накачки, возбуждающей благодаря его большой спектральной ширине внутреннюю динамику атома, молекулы или образующегося иона с участием большого набора энергетических состояний (или, иными словами, создающей поляризацию квантовой системы), а ИК-излучение, воздействуя на данную систему, меняет эту динамику, связывая посредством одно- или многофотонных переходов состояния возбуждённой системы с другими состояниями дискретного или непрерывного спектра (или, иными словами, возмущая поляризацию, созданную аттосекундным импульсом). Динамика всех процессов, происходящих в ходе такого двухимпульсного воздействия, отображается в наблюдаемой спектрограмме поглощения ВУФ-излучения. Структуры, наблюдаемые в спектрах прохождения ВУФ-излучения через исследуемую среду, можно интерпретировать как результат спектральной интерференции между излучением возбуждённой системы и прошедшим через среду широкополосным излучением. Возмущение наведённой поляризации ИК-импульсом изменяет итоговую спектральную структуру наблюдаемого излучения (рис. 10) [203].

Первое применение метода ATAS с использованием одиночного АИ при реализации ИК→ВУФ-сценария было продемонстрировано в работе [182]. Исследовалась динамика волнового пакета связанных электронных состояний, создаваемого в результате ионизации атомов криптона предельно коротким лазерным импульсом со стабилизированной фазой. Спектрограмма поглощения аттосекундного импульса ионами Kr^+ , построенная в

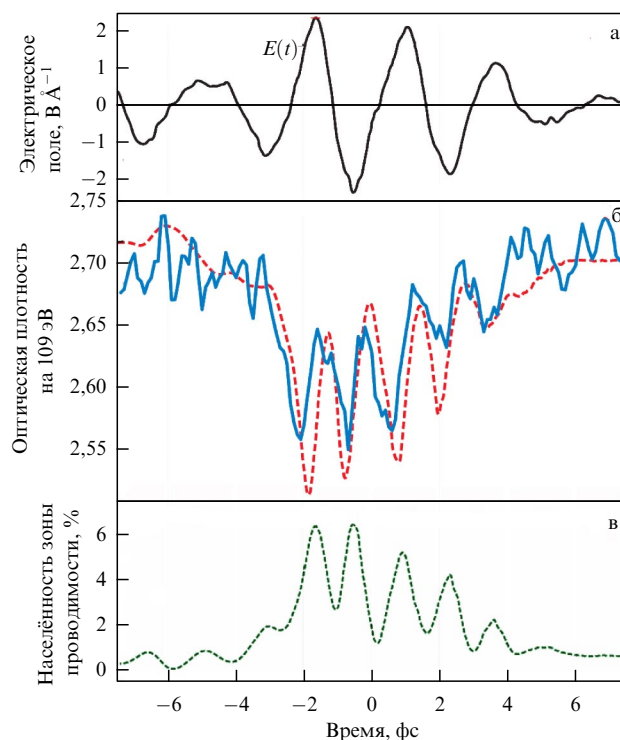


Рис. 9. Результаты наблюдения с помощью аттосекундной абсорбционной спектроскопии сверхбыстрых обратимых переходов изолятор–проводник в процессе воздействия ультракоротких импульсов титан-сапфирового лазера на диэлектрик (диоксид кремния). (а) Временной профиль электрического поля лазерного импульса, измеренный методом аттосекундной стрик-камеры. Зависящие от времени задержки между 72-аттосекундным зондирующим АИ и лазерным импульсом: (б) оптическая плотность образца SiO_2 вблизи $\hbar\omega_0 = 109$ эВ, проинтегрированная по интервалу $\Delta\hbar\omega_0 = 1$ эВ (сплошная кривая — данные экспериментальных измерений, штриховая кривая — результат теоретического расчёта), (в) населённость зоны проводимости (теоретический расчёт). (Данные из работы [204].)

результате измерений 40 спектров поглощения при различных задержках с шагом примерно в 1 фс, позволила выявить динамику осцилляций пространственного распределения заряда (включая дырку, образованную вследствие ионизации атома Kr) на 4p-оболочке с периодом около 6 фс. Техника ATAS с использованием цуга аттосекундных импульсов впервые была продемонстрирована в [183], где наблюдались осцилляции пропускания фотонов различных гармоник, обусловленные интерференцией электронных волновых пакетов при воздействии на атомы гелия суперпозицией лазерного импульса и порожденного им цуга АИ.

В рамках описанного выше подхода с использованием одиночных АИ осуществлены и наблюдения лазерно-индуцированной динамики в твердотельных средах. Так, в работе [204] наблюдались сверхбыстрые обратимые переходы изолятор–проводник в процессе воздействия малоцикловых импульсов титан-сапфирового лазера на диэлектрик (SiO_2) (см. рис. 9). Продемонстрированное управление проводимостью твердотельных сред на масштабе одного периода лазерного поля (менее 3 фс) указывает на перспективы продвижения скорости оптоэлектронных устройств в петагерцевый режим [147], что на несколько порядков превосходит быстродействие современной полупроводниковой электроники.

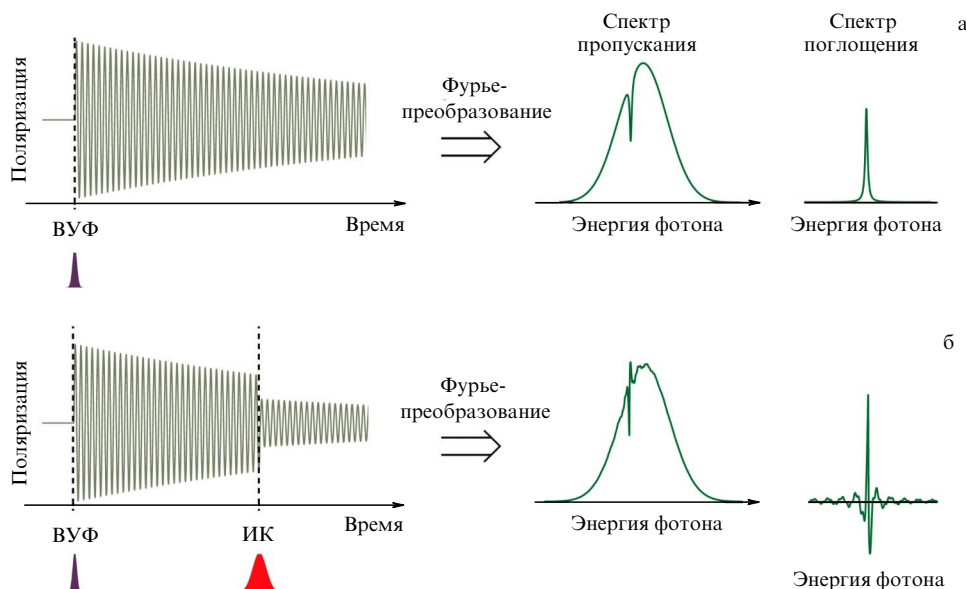


Рис. 10. К объяснению принципа аттосекундной абсорбционной спектроскопии в случае, когда аттосекундный импульс предшествует пику ИК-импульса. (а) На образец воздействует только ВУФ-излучение: аттосекундный ВУФ-импульс индуцирует поляризацию в образце (слева); переизлучаемые при этом фотоны складываются с некоторой фазовой задержкой с проходящими фотонами; спектр прошедшего сигнала (в центре) содержит провал вблизи частоты резонансного перехода; ему соответствует одиночный пик в спектре поглощения (справа). (б) ИК-импульс, воздействующий на среду с некоторой задержкой, возмущает наведённую поляризацию (слева), изменяя спектр прошедшего сигнала (в центре) и модифицируя наблюдаемый профиль поглощения (справа) [203].

Второй описанный выше сценарий ВУФ→ИК получил широкое применение в экспериментальных исследованиях самых разнообразных сверхбыстрых процессов в веществе. В частности, с использованием фемто- или аттосекундного ВУФ-излучения, получаемого с помощью ГГВП, проведены исследования в режиме реального времени динамики таких явлений, как электромагнитно-индуцированная прозрачность [205], динамический эффект Штарка [206], квантовые биения между возбуждёнными атомарными состояниями [207, 208] и др. Показана возможность наблюдения различных короткоживущих состояний, таких как автоионизационные [201, 209] и светоиндуцированные [210, 211] состояния, и исследования их динамики. Так, в работах [210, 211] продемонстрировано зондирование переходной динамики поглощения ВУФ-излучения (в виде одиночного аттосекундного импульса) в атомах гелия в присутствии ультракороткого ИК-лазерного импульса. В измерениях наблюдались нестационарные структуры в поглощении, представляющие собой проявления лазерно-индуцированных виртуальных промежуточных состояний (Light-Induced States, LIS), возникающих в процессах двух- и трёхфотонного поглощения двухчастотного (ВУФ + ИК) поля.

Результаты эксперимента [210] показаны на рис. 11. В области перекрытия ВУФ- и ИК-импульсов, выделенной красным прямоугольником, наблюдаются структуры, обусловленные двухфотонными процессами с участием LIS. В эксперименте [211] также отчётливо наблюдались осциллирующие структуры вблизи границы однофотонной ионизации, соответствующие разрешённому во времени (и пропорциональному мгновенной интенсивности ИК-излучения) сдвигу границы континуума в спектре энергий атомарного валентного электрона (усреднённая по периоду поля величина которого хорошо известна как пондеромоторный сдвиг порога ионизации [212]).

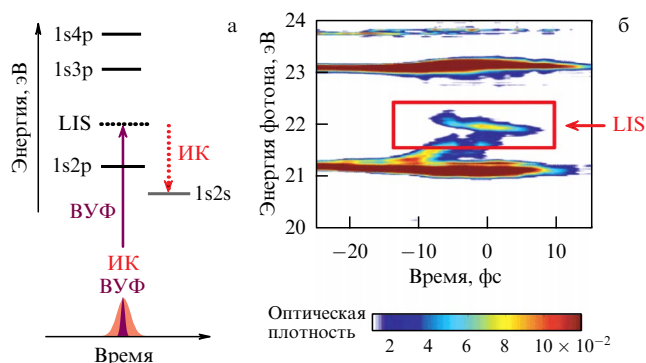


Рис. 11. Наблюдение светоиндуцированных состояний (LIS) методом аттосекундной абсорбционной спектроскопии. (а) Диаграмма уровней энергии, показывающая LIS в гелии. Сплошная фиолетовая стрелка — ВУФ-фотон, красная пунктирная стрелка — ИК-фотон. Уровни, на которые разрешены однофотонные переходы из основного состояния, показаны чёрными горизонтальными линиями, "тёмные" состояния — серой линией, LIS — пунктирной линией. (б) Спектрограмма АТАС. При отрицательных временных задержках ВУФ-импульс предшествует ИК-импульсу. При больших отрицательных и положительных временных задержках наблюдаются только пики поглощения, соответствующие разрешённым однофотонным переходам. В области перекрытия ВУФ- и ИК-импульсов (вблизи нулевой задержки), выделенной красным прямоугольником, наблюдаются структуры, обусловленные LIS. (Данные работы [210].)

Вскоре после первых экспериментов с атомарными газами начались исследования методом АТАС различных сверхбыстрых процессов в молекулах. Первые результаты таких исследований представлены в [213–216]. Развитие основанных на ГГВП компактных источников мягкого рентгеновского излучения (в том числе аттосекундной длительности) с энергиями фотонов в области "водяного окна" (от 284 до 543 эВ, т.е. между краями К-полос поглощения углерода и кислорода) (см. [217] и цитируемую там литературу) открыло широкие возможности

использования фемто- и аттосекундной рентгеновской абсорбционной спектроскопии для элемент-специфических исследований динамики процессов в сложных молекулах [218–221], в том числе в таких окружениях, как растворы [222, 223] и поверхности. Так, использование одиночных аттосекундных импульсов с максимумом спектрального распределения вблизи энергии 400 эВ, т.е. в области края К-полосы поглощения азота, позволило одновременно исследовать с помощью ATAS аттосекундную электронную, фемтосекундную колебательную и субпикосекундную вращательную динамику молекулы NO [221].

Хотя в аттосекундных экспериментах в рамках схемы накачка – зондирование в качестве одного из импульсов, воздействующих на исследуемый объект, используется интенсивный лазерный импульс оптического диапазона, в теоретических работах обсуждаются также схемы возможных экспериментов, в которых могли бы применяться только аттосекундные импульсы. Схема такого типа предложена, например, для зондирования динамики возникновения и эволюции вакансий, создаваемых на внутренних атомарных оболочках аттосекундным излучением [224]. Согласно предложенной схеме, вакансия создаётся в результате ионизации с внутренней оболочки под действием аттосекундного импульса, а зондирование проводится аттосекундным импульсом с центральной частотой, резонансной частоте перехода между занятым глубоколежащим уровнем и вакансией.

4.2. Аттосекундное инициирование внутриатомных и внутримолекулярных процессов

Одним из важных разделов аттосекундной физики стало исследование внутриатомных и внутримолекулярных процессов, инициируемых аттосекундными импульсами. Типичной в этом случае является схема, в которой благодаря большой энергии фотона и малой длительности аттосекундного импульса в хорошо определённый момент времени система переводится в какое-либо переходное возбуждённое состояние, после чего её динамика определяется воздействием поля интенсивного лазерного импульса оптического диапазона.

Применительно к атомарным системам указанный подход впервые был продемонстрирован в работе [225]. Аттосекундный импульс с центральной энергией фотонов около 91 эВ, воздействуя на атомы неона, производил однофотонную ионизацию из состояния $2p$. При этом в образовавшихся ионах Ne^+ с некоторой вероятностью возникали переходы с глубоких уровней на более высокие в результате "встряхиывания" электронов (передачи избыточной энергии при отрыве валентного электрона аттосекундным импульсом). Далее газовую мишень подвергали воздействию фемтосекундного ИК-импульса с варьируемой задержкой. Под действием этого импульса возникала туннельная ионизация ионов Ne^+ . Измерение выхода двукратно заряженных ионов как функции от времени задержки между возбуждающим (ВУФ) и пробным (ИК) импульсами позволило разрешить во времени динамику описанного выше процесса. Наблюдалось ступенчатое возрастание выхода ионов Ne^{2+} от одного полупериода лазерного поля к другому с вероятностью, зависящей от мгновенной амплитуды лазерного импульса. В проведённом эксперименте с атомами неона для двухстадийного процесса заселения возбуждённых состояний иона Ne^+ и туннелирования из них получено время 380 ас.

Одной из первых реализаций указанной схемы по отношению к молекулярным системам стало экспериментальное исследование диссоциативной ионизации молекулы H_2 и динамики ядерного волнового пакета образующегося молекулярного иона H_2^+ под действием аттосекундных импульсов ВУФ-излучения высоких гармоник и фемтосекундного излучения фундаментальной частоты [226]. Как продемонстрировано, выход продуктов диссоциации и спектр их кинетических энергий сильно зависят от длительности лазерного импульса и его задержки относительно АИ, что, в частности, указывает на возможности аттосекундного контроля над процессами светоиндуцированной диссоциации молекул.

Развитием описанной выше схемы стала экспериментальная работа [227], в которой исследовалась динамика локализации электрона в результате аттосекундной фотоионизации молекулы. Таким образом, впервые одиночные аттосекундные импульсы использовались для зондирования внутримолекулярной электронной динамики. В результате исследований показано, что при диссоциативной ионизации молекулы водорода локализация электрона зависит на субфемтосекундных временных масштабах от времени задержки между импульсами ВУФ- и ИК-излучения.

В работе [228] продемонстрировано применение развитой в [227] методологии к исследованию сверхбыстрых процессов миграции заряда в более сложных молекулах. В проведённом эксперименте аттосекундный импульс инициировал быструю ионизацию молекулы фенилаланина. Последующее воздействие зондирующего фемтосекундного лазерного импульса приводило к образованию двукратно заряженного молекулярного фрагмента, выход которого измерялся как функция от времени задержки между возбуждающим и зондирующим импульсами. Измерения показали наличие осцилляций в выходе продукта с периодом менее 4,5 фс, значительно меньшим характерных времён связанного с движениями ядер колебательного отклика системы. Результаты эксперимента получили объяснение в терминах ультрабыстрой динамики электронного волнового пакета, проявляющейся в периодических вариациях плотности заряда в области аминогруппы, которые, по-видимому, влияют на эффективность поглощения энергии зондирующего импульса аминогруппой и тем самым обеспечивают наблюдаемые вариации выхода продукта.

Приведённые примеры иллюстрируют перспективность использования аттосекундных импульсов для исследования внутримолекулярной электронной динамики. Информация о деталях этой динамики важна для понимания химических реакций и биологических процессов. Создание техники аттосекундного эксперимента обеспечило инструментарий для индуцирования электронных процессов, их наблюдения в реальном времени и в перспективе управления ими. Представляется возможным исследование и более сложной внутримолекулярной динамики, в которую вовлечены как электроны, так и ядра. На начальном этапе в таких процессах, как правило, доминирует отклик электронов как значительно более лёгких частиц. В результате фотоионизации молекулы под действием аттосекундного импульса формируются когерентные суперпозиции электронных состояний родительского молекулярного иона. Далее сверхбыстрое испускание электрона может инициировать также и ядерную динамику, которая в свою очередь может при-

водить к разрушению электронной когерентности. Факторы, влияющие на декогерентизацию электронного движения, и роль ядерного движения в таких процессах являются важными фундаментальными вопросами, стоящими перед аттосекундной наукой, в частности перед аттосекундным квантовым контролем. Согласно недавним расчётам, время электронной декогерентизации после фотоионизации молекул может составлять всего несколько фемтосекунд [229, 230]. Важность подобных исследований продиктована той большой ролью, которую электронная когерентность играет во многих химических процессах, в частности, по-видимому, в обеспечении высокой эффективности преобразования энергии при фотосинтезе [231].

4.3. Аттосекундное управление электронными процессами

Облучение мишеней комбинацией синхронизированных импульсов фемтосекундного ИК-излучения и аттосекундного ВУФ-излучения или рентгеновского излучения с регулируемой задержкой между ними открывает большие возможности не только для зондирования аттосекундной квантовой динамики методом накачка–зондирование, но и для управления электронными процессами на аттосекундном масштабе времён. Исследуемые при этом задачи можно условно разбить на две группы в соответствии с тем, какую роль по отношению друг к другу играют низко- и высокочастотные компоненты суммарного поля.

В первом случае аттосекундное ВУФ-излучение играет роль управляющего поля, обеспечивающего формирование локализованных во времени электронных волновых пакетов, подлежащих дальнейшему воздействию со стороны сильного ИК-лазерного поля. Благодаря ультрамалой длительности по сравнению с периодом поля ИК-излучения аттосекундные импульсы могут осуществлять быстрое однофотонное возбуждение или отрыв электронов от атомов в точно заданных фазах лазерного поля, что может быть использовано для управления такими процессами в сильных лазерных полях, как ГГВП или надпороговая ионизация [232–234]. Такой высокоточный контроль над моментом ионизации атома посредством варьирования задержки между ВУФ- и ИК-полями впервые был экспериментально осуществлён в [234], где продемонстрировано применение данного подхода для управления эффективностью обмена энергией между интенсивным ИК-лазерным полем и электронами в процессе надпороговой ионизации (использовалось управляющее аттосекундное излучение с энергиями фотонов, несколько превышающими потенциал ионизации атома). Проведены также эксперименты по управлению ГГВП посредством контроля над стадией ионизации с помощью затравочных аттосекундных импульсов [235, 236], продемонстрировавшие значительное (вплоть до пятикратного) увеличение выхода гармоник по сравнению с таковым в случае использования только ИК-поля, а также получена генерация высоких гармоник при интенсивностях лазерного излучения ниже порога ионизации атомов [237].

Второй режим управления процессами ионизации подразумевает использование фемтосекундного ИК-излучения как управляющего поля. Управление выходом ионов (с использованием аттосекундного излучения с энергиями фотонов, меньшими потенциала ионизации

или близкими к нему) продемонстрировано в [238]. В этом режиме показана возможность реализации электромагнитно-индуцируемой прозрачности для ВУФ-излучения за счёт деструктивной интерференции амплитуд вероятности многофотонной ($\omega_{\text{VUV}} + n\omega_{\text{IR}}$) ионизации по различным каналам [239]. Проведены также эксперименты, в которых продемонстрировано управление не только интегральным по спектру поглощением аттосекундного излучения, но и относительной величиной поглощения для отдельных гармоник, составляющих аттосекундные импульсы [183], что, в частности, может использоваться как способ поглощательного формирования ультракоротких импульсов ВУФ-излучения. Таким образом, упомянутые здесь результаты являются первыми демонстрациями распространения на ВУФ-диапазон тех идей управления оптическими свойствами сред и распространяющегося в них излучения посредством когерентного манипулирования атомами и молекулами, которые ранее получили широкое развитие для видимого и ИК-диапазонов.

В ряде работ проведены зондирование и контроль электронной динамики при диссоциативной ионизации молекул в двухкомпонентном поле, представляющем собой комбинацию фемтосекундного импульса ИК-излучения и последовательности аттосекундных импульсов ВУФ-излучения с регулируемой задержкой между этими компонентами. Зависимость выхода, распределения по каналам диссоциации и угловых распределений фрагментов от задержки между импульсами продемонстрирована как для простейших молекул (H_2 , D_2) [240], так и для более сложных молекул, имеющих многоэлектронный отклик (O_2) [241]. В [242] показаны ещё более богатые возможности использования такого подхода для реализации аттосекундного когерентного контроля молекулярной динамики: на примере молекулы D_2 продемонстрировано использование контролируемой квантовой интерференции различных каналов эволюции электронной подсистемы для переключения между заселением различных возбуждённых электронных состояний нейтральной молекулы на аттосекундном временном масштабе; показано также, что такое переключение может быть первым шагом для осуществления фемтосекундного управления дальнейшей ионизационной и диссоциативной динамикой молекулярной системы. Результаты этих экспериментов свидетельствуют о том, что аттосекундный электронный отклик молекулярных систем может быть использован для управления химическими реакциями, т.е. для развития аттохимии.

5. Заключение

За более чем 20 лет, прошедших со времени появления первых публикаций о генерации аттосекундных импульсов и измерении их характеристик [15, 29], аттосекундная физика превратилась в крупную междисциплинарную область исследований на стыке лазерной, атомной и молекулярной физики, направленных на получение и измерение световых импульсов субфемтосекундной длительности и их применение для зондирования сверхбыстрых процессов, обусловленных динамикой электронов в различных средах, а также для управления этими процессами. Для дальнейшего прогресса в указанной области исследований необходимо решение ряда серьёзных проблем, таких как:

1) разработка мощных волоконных и параметрических лазерных источников малоцикловых световых импульсов (в том числе со стабилизированной СЕР-фазой) для получения аттосекундных импульсов (в том числе одиночных) с высокой (порядка или более 100 кГц) частотой повторения;

2) значительное увеличение интенсивности аттосекундных импульсов, вплоть до значений, требуемых для реализации принципа "аттосекундная накачка – аттосекундное зондирование";

3) компенсация аттоцирпа в широкой спектральной области для получения как можно более коротких АИ. Помимо "водяного окна", содержащего края К-полос поглощения углерода, азота и кислорода, большой интерес представляет область энергий фотонов более 500 эВ, где находятся края полос поглощения многих практически важных элементов, в том числе магнетиков;

4) компенсация магнитного дрейфа электрона как одного из основных лимитирующих факторов [243] на пути к генерации высоких гармоник с энергиями фотонов значительно выше 1 кэВ при использовании мощных лазерных источников среднего ИК-диапазона;

5) получение интенсивных аттосекундных импульсов с высокой эллиптичностью поляризации;

6) развитие техники измерения ультракоротких световых импульсов, в том числе в обычном воздухе, с высокой частотой повторения и в различных частотных диапазонах;

7) распространение развитых на примерах атомарных и простых молекулярных систем методов аттосекундной спектроскопии на задачи исследования динамики, в том числе неадиабатической, более сложных молекулярных систем, а также конденсированных сред.

Некоторые пути решения указанных выше проблем продемонстрированы в ряде недавних работ [244 – 258].

В заключение необходимо отметить, что в последние годы наряду с источниками на основе ГГВП бурными темпами развиваются такие источники, как лазеры на свободных электронах (ЛСЭ). Каждый из этих двух типов рентгеновских источников обладает своими преимуществами. Яркость, достигаемая ЛСЭ в рентгеновском диапазоне, на много порядков величины превышает яркость источников на основе ГГВП; в то же время последние обеспечивают беспрецедентно высокое временное разрешение (порядка 50 ас) и возможность высокоточной синхронизации с внешними источниками оптического диапазона, что легло в основу многих из описанных в обзоре аттосекундных технологий. Следует, однако, отметить, что в последние годы достигнут значительный прогресс в улучшении временных характеристик излучения ЛСЭ. Среди различных подходов к повышению когерентности излучения ЛСЭ [259] наиболее значимое место занимает использование когерентного излучения, обеспечиваемого ГГВП, в качестве затравки для дальнейшего усиления в ЛСЭ [260 – 262], что создаёт предпосылки для создания комплексных экспериментальных станций, использующих излучение всех перечисленных источников. Такие станции могут сочетать в себе использование узкополосных высокоинтенсивных импульсов ЛСЭ, осуществляющих фотоионизацию частиц мишени из определённых внутренних оболочек, со сверхширокополосным аттосекундным суперконтинуумом, охватывающим спектральный диапазон от УФ-области до области водяного окна и обеспечивающим реализацию многоканальной аттосекундной

абсорбционной спектроскопии для зондирования электронной и структурной динамики мишени вблизи краёв различных полос поглощения одновременно [263].

Работа поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (грант 20-12-50293). В.В.С. выражает благодарность Фонду развития теоретической физики и математики "Базис" за финансовую поддержку.

Список литературы

1. Стрелков В В и др. *УФН* **186** 449 (2016); Strelkov V V et al. *Phys. Usp.* **59** 425 (2016)
2. Chang Z *Fundamentals of Attosecond Optics* (Boca Raton, FL: CRC Press, 2011)
3. Farkas Gy, Tóth Cs *Phys. Lett. A* **68** 447 (1992)
4. Antoine Ph, L'Huillier A, Lewenstein M *Phys. Rev. Lett.* **77** 1234 (1996)
5. Платоненко В Т, Стрелков В В *Квантовая электроника* **24** 799 (1997); Platonenko V T, Strelkov V V *Quantum Electron.* **27** 779 (1997)
6. Коржиманов А В и др. *УФН* **181** 9 (2011); Korzhimanov A V et al. *Phys. Usp.* **54** 9 (2011)
7. Wheeler J A et al. *Nat. Photon.* **6** 829 (2012)
8. Corkum P B *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994 (1993)
9. Lewenstein M et al. *Phys. Rev. A* **49** 2117 (1994)
10. Kan C et al. *Phys. Rev. A* **52** R4336 (1995)
11. Gaarde M B et al. *Phys. Rev. A* **59** 1367 (1999)
12. Khokhlova M A, Strelkov V V *Phys. Rev. A* **93** 043416 (2016)
13. Salières P, L'Huillier A, Lewenstein M *Phys. Rev. Lett.* **74** 3776 (1995)
14. Balcou Ph et al. *Phys. Rev. A* **55** 3204 (1997)
15. Paul P M et al. *Science* **292** 1689 (2001)
16. Mairesse Y et al. *Science* **302** 1540 (2003)
17. Tzallas P et al. *Nature* **426** 267 (2003)
18. Agostini P, DiMauro L F *Rep. Prog. Phys.* **67** 813 (2004)
19. Scrinzi A et al. *J. Phys. B* **39** R1 (2006)
20. Frumker E et al. *Opt. Express* **20** 13878 (2012)
21. Quintard L et al. *Sci. Adv.* **5** eaau7175 (2019)
22. Veyrinas K et al. *Opt. Express* **29** 29813 (2021)
23. Platonenko V T, Strelkov V V *J. Opt. Soc. Am. B* **16** 435 (1999)
24. Платоненко В Т, Стрелков В В, Игнатович Ф В *Квантовая электроника* **28** 43 (1999); Platonenko V T, Strelkov V V, Ignatovich F V *Quantum Electron.* **29** 601 (1999)
25. Bellini M et al. *Phys. Rev. Lett.* **81** 297 (1998)
26. López-Martens R et al. *Phys. Rev. Lett.* **94** 033001 (2005)
27. Kim K T et al. *Phys. Rev. A* **69** 051805 (2004)
28. Gustafsson E et al. *Opt. Lett.* **32** 1353 (2007)
29. Hentschel M et al. *Nature* **414** 509 (2001)
30. Goulielmakis E et al. *Science* **320** 1614 (2008)
31. Morlens A-S et al. *Opt. Lett.* **30** 1554 (2005)
32. Kim K T et al. *Phys. Rev. Lett.* **99** 223904 (2007)
33. Ko D H et al. *New J. Phys.* **12** 063008 (2010)
34. Zheng Y et al. *Phys. Rev. Lett.* **103** 043904 (2009)
35. Kohler M C, Keitel C H, Hatsagortsyan K Z *Opt. Express* **19** 4411 (2011)
36. Brabec Th, Krausz F *Rev. Mod. Phys.* **72** 545 (2000)
37. Paulus G G et al. *Nature* **414** 182 (2001)
38. Baltuška A et al. *Nature* **421** 611 (2003)
39. Liu X et al. *Phys. Rev. Lett.* **93** 263001 (2004)
40. Milošević D B et al. *J. Phys. B* **39** R203 (2006)
41. Kling M F et al. *Science* **312** 246 (2006)
42. Kieß M et al. *Nat. Phys.* **2** 327 (2006)
43. Silaev A A, Vvedenskii N V *Phys. Rev. Lett.* **102** 115005 (2009)
44. Nerush E N, Kostyukov I Yu *Phys. Rev. Lett.* **103** 035001 (2009)
45. Schiffrin A et al. *Nature* **493** 70 (2013)
46. Kübel M et al. *Phys. Rev. Lett.* **116** 193001 (2016)
47. Christov I P, Murnane M M, Kapteyn H C *Phys. Rev. Lett.* **78** 1251 (1997)
48. de Bohan A et al. *Phys. Rev. Lett.* **81** 1837 (1998)
49. Telle H R et al. *Appl. Phys. B* **69** 327 (1999)
50. Jones D J et al. *Science* **288** 635 (2000)
51. Apolonski A et al. *Phys. Rev. Lett.* **85** 740 (2000)

52. Baltuška A, Fuji T, Kobayashi T *Phys. Rev. Lett.* **88** 133901 (2002)
53. Kienberger R et al. *Nature* **427** 817 (2004)
54. Cavalieri A L et al. *New J. Phys.* **9** 242 (2007)
55. Wonisch A et al. *Appl. Opt.* **45** 4147 (2006)
56. Gaumnitz T et al. *Opt. Express* **25** 27506 (2017)
57. Strelkov V V et al. *Phys. Rev. A* **86** 013404 (2012)
58. Sola I J et al. *Nat. Phys.* **2** 319 (2006)
59. Corkum P B, Burnett N H, Ivanov M Y *Opt. Lett.* **19** 1870 (1994)
60. Strelkov V et al. *Appl. Phys. B* **78** 879 (2004)
61. Strelkov V et al. *J. Phys. B* **38** L161 (2005)
62. Платоненко В Т, Стрелков В В *Квантовая электроника* **25** 771 (1998); Platonenko V T, Strelkov V V *Quantum Electron.* **28** 749 (1998)
63. Chang Z *Phys. Rev. A* **70** 043802 (2004)
64. Tcherbakoff O et al. *Phys. Rev. A* **68** 043804 (2003)
65. Sola I J et al. *Phys. Rev. A* **74** 013810 (2006)
66. Strelkov V et al. *Laser Phys.* **15** 871 (2005)
67. Sansone G et al. *Science* **314** 443 (2006)
68. Li J et al. *Nat. Commun.* **8** 186 (2017)
69. Tzallas P et al. *Nat. Phys.* **3** 846 (2007)
70. Skantzakis E et al. *Opt. Lett.* **34** 1732 (2009)
71. Feng X et al. *Phys. Rev. Lett.* **103** 183901 (2009)
72. Kim K T et al. *Phys. Rev. A* **69** 051805 (2004)
73. Strelkov V V et al. *J. Phys. B* **39** 577 (2006)
74. Pfeifer T et al. *Opt. Express* **15** 17120 (2007)
75. Hergott J-F et al. *Phys. Rev. A* **66** 021801 (2002)
76. Takahashi E, Nabekawa Y, Midorikawa K *Opt. Lett.* **27** 1920 (2002)
77. Nayak A et al. *Phys. Rev. A* **98** 023426 (2018)
78. Constant E et al. *Phys. Rev. Lett.* **82** 1668 (1999)
79. Kazamias S et al. *Phys. Rev. Lett.* **90** 193901 (2003)
80. Strelkov V V, Mével E, Constant E *New J. Phys.* **10** 083040 (2008)
81. Jullien A et al. *Appl. Phys. B* **93** 433 (2008)
82. Abel M J et al. *Chem. Phys.* **366** 9 (2009)
83. Calegari F et al., in *Multiphoton Processes and Attosecond Physics. Proc. of the 12th Intern. Conf. on Multiphoton Processes, ICOMP12 and the 3rd Intern. Conf. on Attosecond Physics, ATTO3* (Springer Proc. in Physics, Vol. 125, Eds K Yamanouchi, M Katsumi) (Heidelberg: Springer, 2012) p. 91
84. Gaarde M B, Schafer K J *Phys. Rev. Lett.* **89** 213901 (2002)
85. Gaarde M B, Schafer K J *Opt. Lett.* **31** 3188 (2006)
86. Roos L et al. *Phys. Rev. A* **60** 5010 (1999)
87. Toma E S et al. *J. Phys. B* **32** 5843 (1999)
88. Boutu W et al. *Phys. Rev. A* **84** 063406 (2011)
89. Dubrouil A et al. *Opt. Lett.* **36** 2486 (2011)
90. Treacher D J et al. *J. Opt.* **23** 015502 (2021)
91. Perry M D, Crane J K *Phys. Rev. A* **48** R4051 (1993)
92. Watanabe S et al. *Phys. Rev. Lett.* **73** 2692 (1994)
93. Mauritsson J et al. *Phys. Rev. Lett.* **97** 013001 (2006)
94. Pfeifer T et al. *Opt. Lett.* **31** 975 (2006)
95. Mashiko H et al. *Phys. Rev. Lett.* **100** 103906 (2008)
96. Zhao K et al. *Opt. Lett.* **37** 3891 (2012)
97. Bandulet H-C et al. *Phys. Rev. A* **81** 013803 (2010)
98. Kim I J et al. *Phys. Rev. Lett.* **94** 243901 (2005)
99. Geng J-W et al. *Phys. Rev. Lett.* **115** 193001 (2015)
100. Emelina A S et al. *Opt. Express* **24** 13971 (2016)
101. Vincenti H, Quéré F *Phys. Rev. Lett.* **108** 113904 (2012)
102. Akturk S et al. *J. Opt.* **12** 093001 (2010)
103. Vincenti H, Quéré F *Phys. Rev. Lett.* **108** 113904 (2012) см. Supplemental Material, <http://link.aps.org/supplemental/10.1103/PhysRevLett.108.113904>
104. Kim K T et al. *Nat. Photon.* **7** 651 (2013)
105. Mashiko H, Suda A, Midorikawa K *Opt. Lett.* **29** 1927 (2004)
106. Major B et al. *Optica* **8** 960 (2021)
107. Bradley D J, Liddy B, Sleat W E *Opt. Commun.* **2** 391 (1971)
108. Schelev M Ya, Richardson M C, Alcock A J *Appl. Phys. Lett.* **18** 354 (1971)
109. Kane D J, Trebino R *Opt. Lett.* **18** 823 (1993)
110. Trebino R, Kane D J *J. Opt. Soc. Am. A* **10** 1101 (1993)
111. Iaconis C, Walmsley I A *Opt. Lett.* **23** 792 (1998)
112. Beck M et al. *Opt. Lett.* **18** 2041 (1993)
113. Walmsley I A, Wong V J *J. Opt. Soc. Am. B* **13** 2453 (1996)
114. Constant E et al. *Phys. Rev. A* **56** 3870 (1997)
115. Isinger M et al. *Phil. Trans. R. Soc. A* **377** 20170475 (2019)
116. Vénierard V, Taïeb R, Maquet A *Phys. Rev. A* **54** 721 (1996)
117. Varjú K et al. *J. Mod. Opt.* **52** 379 (2005)
118. Aseyev S A et al. *Phys. Rev. Lett.* **91** 223902 (2003)
119. Mairesse Y, Quéré F *Phys. Rev. A* **71** 011401 (2005)
120. Dinu L C et al. *Phys. Rev. Lett.* **91** 063901 (2003)
121. Kling M F, Vrakking M J J *Annu. Rev. Phys. Chem.* **59** 463 (2008)
122. Gallmann L, Cirelli C, Keller U *Annu. Rev. Phys. Chem.* **63** 447 (2012)
123. Haessler S et al. *New J. Phys.* **15** 013051 (2013)
124. Strelkov V *Phys. Rev. Lett.* **104** 123901 (2010)
125. Strelkov V V, Khokhlova M A, Shubin N Yu *Phys. Rev. A* **89** 053833 (2014)
126. Itatani J et al. *Phys. Rev. Lett.* **88** 173903 (2002)
127. Kitzler M et al. *Phys. Rev. Lett.* **88** 173904 (2002)
128. Drescher M et al. *Science* **291** 1923 (2001)
129. Smirnova O, Yakovlev V S, Ivanov M *Phys. Rev. Lett.* **94** 213001 (2005)
130. Yakovlev V S, Bammer F, Scrinzi A J *Mod. Opt.* **52** 395 (2005)
131. Corkum P B, Krausz F *Nat. Phys.* **3** 381 (2007)
132. Krausz F, Ivanov M *Rev. Mod. Phys.* **81** 163 (2009)
133. Pfeifer T, Spielmann C, Gerber G *Rep. Prog. Phys.* **69** 443 (2006)
134. Orfanos I et al. *APL Photon.* **4** 080901 (2019)
135. Kosik E M et al. *J. Mod. Opt.* **52** 361 (2005)
136. Quéré F, Mairesse Y, Itatani J *J. Mod. Opt.* **52** 339 (2005)
137. Drescher M, Krausz F *J. Phys. B* **38** S727 (2005)
138. Schins J M et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **13** 197 (1996)
139. Schins J M et al. *Phys. Rev. Lett.* **73** 2180 (1994)
140. Glover T E et al. *Phys. Rev. Lett.* **76** 2468 (1996)
141. Bouhal A et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **14** 950 (1997)
142. Toma E S et al. *Phys. Rev. A* **62** 061801 (2000)
143. Ge Y *Phys. Rev. A* **74** 015803 (2006)
144. Goulielmakis E et al. *Science* **305** 1267 (2004)
145. Goulielmakis E et al. *Science* **317** 769 (2007)
146. Wirth A et al. *Science* **334** 195 (2011)
147. Krausz F, Stockman M I *Nat. Photon.* **8** 205 (2014)
148. Fattahi H et al. *Optica* **1** 45 (2014)
149. Kane D J *IEEE J. Quantum Electron.* **35** 421 (1999)
150. Gagnon J, Goulielmakis E, Yakovlev V S *Appl. Phys. B* **92** 25 (2008)
151. Lucchini M et al. *Opt. Express* **23** 29502 (2015)
152. Keathley P D et al. *New J. Phys.* **18** 073009 (2016)
153. Zhao X et al. *Phys. Rev. A* **95** 043407 (2017)
154. White J, Chang Z *Opt. Express* **27** 4799 (2019)
155. Kim K T et al. *New J. Phys.* **12** 083019 (2010)
156. Chini M et al. *Opt. Express* **18** 13006 (2010)
157. Walmsley I A, Dorrer C *Adv. Opt. Photon.* **1** 308 (2009)
158. Quéré F et al. *Phys. Rev. Lett.* **90** 073902 (2003)
159. Cormier E et al. *Phys. Rev. Lett.* **94** 033905 (2005)
160. Mairesse Y et al. *Phys. Rev. Lett.* **94** 173903 (2005)
161. Remetter T et al. *Nat. Phys.* **2** 323 (2006)
162. Dudovich N et al. *Nat. Phys.* **2** 781 (2006)
163. Kim K T et al. *Nat. Phys.* **9** 159 (2013)
164. Kim K T, Villeneuve D M, Corkum P B *Nat. Photon.* **8** 187 (2014)
165. Hoftlund M et al. *Ultrafast Sci.* **2021** 9797453 (2021)
166. Kobayashi Y et al. *Opt. Lett.* **23** 64 (1998)
167. Nikolopoulos L et al. *Phys. Rev. Lett.* **94** 113905 (2005)
168. Nomura Y et al. *Nat. Phys.* **5** 124 (2009)
169. Sekikawa T et al. *Nature* **432** 605 (2004)
170. Tzallas P, Skantzakis E, Charalambidis D *J. Phys. B* **45** 074007 (2012)
171. Kosuge A et al. *Phys. Rev. Lett.* **97** 263901 (2006)
172. Nabekawa Y et al. *Phys. Rev. Lett.* **96** 083901 (2006)
173. Nabekawa Y et al. *Phys. Rev. Lett.* **97** 153904 (2006)
174. Shimizu T et al. *Phys. Rev. A* **75** 033817 (2007)
175. Takahashi E et al. *Nat. Commun.* **4** 2691 (2013)
176. Sekikawa T et al. *Opt. Express* **16** 21922 (2008)
177. Strelkov V V, Birulia V A, Magunov A I *New J. Phys.* **20** 093025 (2018)
178. Raz O et al. *Phys. Rev. Lett.* **107** 133902 (2011)
179. Raz O et al. *Opt. Express* **22** 24935 (2014)
180. Pedatzur O et al. *Nat. Photon.* **13** 91 (2019)
181. Muller H G *Appl. Phys. B* **74** s17 (2002)
182. Goulielmakis E et al. *Nature* **466** 739 (2010)
183. Holler M et al. *Phys. Rev. Lett.* **106** 123601 (2011)
184. Schultze M et al. *Science* **328** 1658 (2010)

185. Drescher M et al. *Nature* **419** 803 (2002)
186. Eisenbud L, PhD Thesis (Princeton, NJ: Princeton Univ., 1948)
187. Wigner E P *Phys. Rev.* **98** 145 (1955)
188. Smith F T *Phys. Rev.* **118** 349 (1960)
189. Dahlström J M, L'Huillier A, Maquet A J. *Phys. B* **45** 183001 (2012)
190. Ossiander M et al. *Nat. Phys.* **13** 280 (2016)
191. Cavalieri A L et al. *Nature* **449** 1029 (2007)
192. Neppi S et al. *Phys. Rev. Lett.* **109** 087401 (2012)
193. Mauritsson J et al. *Phys. Rev. Lett.* **105** 053001 (2010)
194. Klünder K et al. *Phys. Rev. Lett.* **106** 143002 (2011)
195. Swoboda M et al. *Phys. Rev. Lett.* **104** 103003 (2010)
196. Haessler S et al. *Phys. Rev. A* **80** 011404 (2009)
197. Caillat J et al. *Phys. Rev. Lett.* **106** 093002 (2011)
198. Huppert M et al. *Phys. Rev. Lett.* **117** 093001 (2016)
199. Gruson V et al. *Science* **354** 734 (2016)
200. Busto D et al. *J. Phys. B* **51** 044002 (2018)
201. Wang H et al. *Phys. Rev. Lett.* **105** 143002 (2010)
202. Wang X et al. *Appl. Opt.* **52** 323 (2013)
203. Beck A R, Neumark D M, Leone S R *Chem. Phys. Lett.* **624** 119 (2015)
204. Schultze M et al. *Nature* **493** 75 (2013)
205. Loh Z-H, Greene C H, Leone S R *Chem. Phys.* **350** 7 (2008)
206. Chini M et al. *Phys. Rev. Lett.* **109** 073601 (2012)
207. Beck A R et al. *New J. Phys.* **16** 113016 (2014)
208. Ott C et al. *Nature* **516** 374 (2014)
209. Bernhardt B et al. *Phys. Rev. A* **89** 023408 (2014)
210. Chen S et al. *Phys. Rev. A* **86** 063408 (2012)
211. Chini M et al. *Sci. Rep.* **3** 1105 (2013)
212. Muller H G, Tip A, van der Wiel M J J. *Phys. B* **16** L679 (1983)
213. Cheng Y et al. *Phys. Rev. A* **94** 023403 (2016)
214. Warrick E R et al. *J. Phys. Chem. A* **120** 3165 (2016)
215. Reduzzi M et al. *J. Phys. B* **49** 065102 (2016)
216. Liao C-T et al. *Phys. Rev. A* **95** 043427 (2017)
217. Ren X et al. *J. Opt.* **20** 023001 (2018)
218. Pertot Y et al. *Science* **355** 264 (2017)
219. Attar A R et al. *Science* **356** 54 (2017)
220. Chew A et al. *Phys. Rev. A* **97** 031407 (2018)
221. Saito N et al. *Optica* **6** 1542 (2019)
222. Kleine C et al. *J. Phys. Chem. Lett.* **10** 52 (2019)
223. Smith A D et al. *J. Phys. Chem. Lett.* **11** 1981 (2020)
224. Baggesen J C, Lindroth E, Madsen L B *Phys. Rev. A* **85** 013415 (2012)
225. Uiberacker M et al. *Nature* **446** 627 (2007)
226. Kelkensberg F et al. *Phys. Rev. Lett.* **103** 123005 (2009)
227. Sansone G et al. *Nature* **465** 763 (2010)
228. Calegari F et al. *Science* **346** 336 (2014)
229. Vacher M et al. *Phys. Rev. Lett.* **118** 083001 (2017)
230. Arnold C, Vendrell O, Santra R *Phys. Rev. A* **95** 033425 (2017)
231. Romero E et al. *Nat. Phys.* **10** 676 (2014)
232. Bandrauk A D, Shon N H *Phys. Rev. A* **66** 031401 (2002)
233. Schafer K J et al. *Phys. Rev. Lett.* **92** 023003 (2004)
234. Johnsson P et al. *Phys. Rev. Lett.* **95** 013001 (2005)
235. Biegert J et al. *Laser Phys.* **15** 899 (2005)
236. Heinrich A et al. *J. Phys. B* **39** S275 (2006)
237. Gademann G et al. *New J. Phys.* **13** 033002 (2011)
238. Johnsson P et al. *Phys. Rev. Lett.* **99** 233001 (2007)
239. Ranitovic P et al. *Phys. Rev. Lett.* **106** 193008 (2011)
240. Kelkensberg F et al. *Phys. Rev. Lett.* **107** 043002 (2011)
241. Siu W et al. *Phys. Rev. A* **84** 063412 (2011)
242. Ranitovic P et al. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **111** 912 (2014)
243. Емелина А С, Емелин М Ю, Рябикин М Ю *Квантовая электроника* **44** 470 (2014); Emelina A S, Emelin M Yu, Ryabikin M Yu *Quantum Electron.* **44** 470 (2014)
244. Rothhardt J et al. *Opt. Express* **24** 18133 (2016)
245. Furch F J et al. *Opt. Lett.* **42** 2945 (2017)
246. Antonov V A et al. *Phys. Rev. Lett.* **123** 243903 (2019)
247. Fu Y et al. *Appl. Sci.* **8** 2451 (2018)
248. Chang Z *OSA Continuum* **2** 314 (2019)
249. Galloway B R et al. *Opt. Express* **24** 21818 (2016)
250. Zhai C et al. *Phys. Rev. A* **101** 053407 (2020)
251. Khokhlova M A et al. *Phys. Rev. A* **103** 043114 (2021)
252. Khairulin I R et al. *Sci. Rep.* **12** 6204 (2022)
253. Kubulek M et al. *Optica* **7** 35 (2020)
254. Korobenko A et al. *Optica* **7** 1372 (2020)
255. Neville S P et al. *Phys. Rev. Lett.* **120** 243001 (2018)
256. Timmers H et al. *Nat. Commun.* **10** 3133 (2019)
257. Zinchenko K S et al. *Science* **371** 489 (2021)
258. Rott F et al. *Struct. Dyn.* **8** 034104 (2021)
259. Pellegrini C, Marinelli A, Reiche S *Rev. Mod. Phys.* **88** 015006 (2016)
260. Lambert G et al. *Nature Phys.* **4** 296 (2008)
261. Togashi T et al. *Opt. Express* **19** 317 (2011)
262. Ackermann S et al. *Phys. Rev. Lett.* **111** 114801 (2013)
263. Young L et al. *J. Phys. B* **51** 032003 (2018)

Attosecond electromagnetic pulses: generation, measurement, and application. Attosecond metrology and spectroscopy

M.Yu. Ryabikin^(1,2,a), M.Yu. Emelin^(1,b), V.V. Strelkov^(3,4,c)

⁽¹⁾ Gaponov-Grekhov Institute of Applied Physics, Russian Academy of Sciences,
ul. Ulyanova 46, 603950 Nizhny Novgorod, Russian Federation

⁽²⁾ Lobachevsky State University of Nizhny Novgorod (National Research University),
prosp. Gagarina 23, 603950 Nizhny Novgorod, Russian Federation

⁽³⁾ Prokhorov General Physics Institute, Russian Academy of Sciences, ul. Vavilova 38, 119991 Moscow, Russian Federation

⁽⁴⁾ Moscow Institute of Physics and Technology (National Research University),
Institutskii per. 9, 141701 Dolgoprudny, Moscow Region, Russian Federation

E-mail: ^(a)mikhail.ryabikin@ipfran.ru, ^(b)emelin@ipfran.ru, ^(c)strelkov.v@gmail.com

When intense laser radiation interacts with matter, high-order harmonic generation (HHG) takes place; recent achievements in this area were reported by the authors in a review [V V Strelkov et al. *Phys. Usp.* **59** 425 (2016)]. Under certain conditions, the phases of the harmonics can be synchronized in such a way that, adding up, the fields of the harmonics form attosecond ultraviolet (or X-ray) pulses. In this review, we address the generation of a train of attosecond pulses and a single attosecond pulse from a group of high-order harmonics. The problem of measuring the duration of attosecond pulses required both a serious modernization of the measurement methods known in femtosecond optics and the development of fundamentally new approaches. This review describes the main methods for measuring attosecond pulses that have been successfully demonstrated to date. Finally, the use of such pulses to probe the dynamics of electronic processes in matter and to control such processes at attosecond times is discussed.

Keywords: attosecond ultraviolet and X-ray pulses, high-order harmonic generation, interaction of intense laser radiation with matter, phase matching, attosecond metrology, time-resolved nonlinear spectroscopy

PACS numbers: 42.65.Ky, 42.65.Re, **52.38. – r**

Bibliography — 263 references

Uspekhi Fizicheskikh Nauk **193** (4) 382–405 (2023)

DOI: <https://doi.org/10.3367/UFNr.2021.10.039078>

Received 30 July 2021

Physics – Uspekhi **66** (4) (2023)

DOI: <https://doi.org/10.3367/UFNe.2021.10.039078>