

Генерация высших гармоник в лазерно-индуцированной плазме

Р.А. Ганеев

Когерентные источники излучения коротковолнового (2–120 нм) диапазона находят всё большее применение как в фундаментальных исследованиях, так и для практических целей. Одним из наиболее эффективных методов генерации подобного экстремального ультрафиолетового (УФ) излучения является генерация высших гармоник ультракоротких лазерных импульсов. В обзоре представлены исследования генерации высших гармоник фемтосекундных импульсов в лазерно-индуцированной плазме начиная с первой демонстрации этого процесса в оптимальных условиях формирования плазменных факелов (Optics Letters 30 768 (2005)) и по настоящее время. Анализируются достижения этого метода преобразования длины волны интенсивных лазерных источников в экстремальный УФ-диапазон спектра. Особое внимание уделено новым методикам по увеличению эффективности преобразования в гармоники. В частности, демонстрируются успехи в таких областях, как: (а) резонансное усиление одиночных гармоник, (б) усиление групп гармоник, вызванное квазифазовым согласованием взаимодействующих волн в различных спектральных диапазонах, (в) двух- и трёхцветная накачка плазмы с целью генерации нечётных и чётных гармоник и параметрических волн, (г) использование квантовых точек и наночастиц для усиления гармоник низших порядков и другие результаты. Обсуждаются перспективы и потенциальные области применения данного метода генерации когерентного коротковолнового излучения в дальней УФ-области спектра, и проводится сравнение с другими методами генерации гармоник.

Ключевые слова: генерация высших гармоник, лазерная плазма, экстремальное ультрафиолетовое излучение, резонансное усиление гармоник, квазифазовое согласование, двухцветная накачка плазмы, наночастицы, эффективность преобразования

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

DOI: <https://doi.org/10.3367/UFNr.2026.04.040135>

Содержание

1. Источники когерентного коротковолнового излучения (938).
 2. Экспериментальные методы для генерации гармоник в лазерной плазме (941).
 3. Разработка методов увеличения эффективности генерации высших гармоник в лазерно-индуцированной плазме (942).
 4. Резонансное усиление одиночной гармоники (945).
 5. Двухцветная и трёхцветная накачка плазмы (950).
 6. Квазифазовое согласование нескольких гармоник в различных спектральных диапазонах (954).
 7. Эффективная генерация гармоник ультракороткими лазерными импульсами в плазменных факелах, содержащих наночастицы и квантовые точки (956).
 8. Перспективы генерации высших гармоник в лазерной плазме (960).
- Список литературы (963).

Р.А. Ганеев

Институт Перспективных Исследований,
Университет "Новый Узбекистан",
ул. Мустакиллик 54, 100007 Ташкент, Узбекистан
E-mail: r.ganeev@newuu.uz

Статья поступила 22 января 2026 г.,
после доработки 30 апреля 2026 г.

1. Источники когерентного коротковолнового излучения

Экстремальное ультрафиолетовое (ЭУФ) излучение или высокоэнергетическое коротковолновое излучение — это излучение в части электромагнитного спектра, охватывающей длины волн короче водородной линии Лайман-альфа (121 нм) до рентгеновского диапазона (2–5 нм). Оно может генерироваться плазменными источниками, источниками генерации гармоник и синхротронными источниками света. Основными областями применения ЭУФ излучения являются фотоэлектронная спектроскопия, медицина и литография. В частности, ЭУФ литография — это технология, используемая в полупроводниковой промышленности для изготовления интегральных схем. Существует разновидность литографии, которая использует свет с длиной волны 13,5 нм, излучаемый импульсной лазерной плазмой для создания сверхмалых компонентов интегральных схем на полупроводниковых подложках. Использование этого излучения при изготовлении чипов с наноразмерными характеристиками компонентов играет решающую роль в развивающейся области нанoeлектроники. Применение ЭУФ в медицине позволяет производить модификацию клеток и микроорганизмов для решения проблем, связанных со здоровьем. Помимо практического применения, такие источники могут быть успешно использованы

для инъекции в синхротроны для достижения увеличения интенсивности усиленного ЭУФ излучения.

Разница между когерентными (лазерными) и некогерентными коротковолновыми источниками определяется их фазовыми и временными характеристиками, а также их пространственной расходимостью. Лазеры отличаются от других источников излучения тем, что они излучают когерентный свет. Пространственная когерентность позволяет лазерному излучению фокусироваться в очень маленькой области, что обеспечивает его применение в таких областях, как оптическая связь, лазерная резка и маркировка, а также литография. Она также позволяет лазерному лучу оставаться сконцентрированным на достаточно больших расстояниях благодаря малой расходимости этого излучения. Лазеры также могут обладать высокой временной когерентностью, что позволяет им излучать свет с очень узким частотным спектром. Временная когерентность также может быть использована для получения ультракоротких световых импульсов.

Некогерентное ультрафиолетовое излучение может быть получено различными способами, в частности, путём формирования лазерной плазмы. Излучение от таких источников вблизи области их формирования интенсивнее, чем от когерентных ЭУФ источников (рентгеновских лазеров, лазеров на свободных электронах (ЛСЭ) и источников, основанных на генерации высших гармоник (ГВГ) лазерных импульсов). Однако это излучение имеет большую расходимость, что препятствует его распространению и фокусировке в направлении объектов, расположенных на некотором расстоянии от зоны формирования некогерентного ЭУФ излучения. В отличие от этого, расходимость когерентного коротковолнового излучения значительно меньше. Эта характеристика излучения позволяет ему распространяться на достаточно большое расстояние и фокусироваться на сверхмалых площадях обрабатываемых материалов. Таким образом, использование когерентного ЭУФ излучения является более приемлемым по сравнению с применимостью некогерентных источников, генерирующих в том же диапазоне. В целом, когерентные ЭУФ импульсы позволяют повысить разрешающую способность оптической литографии, улучшить визуализацию наноразмерных и субклеточных систем и внести свой вклад в спектроскопию с использованием коротковолнового излучения.

Механизм, связанный с использованием плотных электронных пучков, лежит в основе принципов ЛСЭ [1–4]. Следующий подход в достижении когерентной ЭУФ генерации включает рентгеновские лазеры [5–7]. Эти методы основаны на принципах, отличных от ГВГ лазерного излучения. Вышеупомянутые методы когерентной ЭУФ генерации обладают рядом недостатков, которые ограничивают их применимость. К недостаткам ЭУФ лазеров относятся их низкая частота следования импульсов, плохая пространственная когерентность и большая расходимость. Что касается подобных ЛСЭ, генерирующих излучение в коротковолновом спектральном диапазоне, то на сегодняшний день доступно лишь несколько подобных источников. Кроме того, применение этих лазеров в значительной степени ограничено их высокой стоимостью.

В ЭУФ диапазоне также могут генерировать излучение источники, основанные на обратном комптоновском

рассеянии. Источники рентгеновского излучения, основанные на обратном процессе комптоновского рассеяния [8], вызывают интерес из-за их ультракороткого импульса, квазимонохроматического спектра и относительно высокой интенсивности. Энергетический спектр рентгеновского пучка, создаваемого источниками обратного комптоновского рассеяния, в фиксированном направлении наблюдения представляет собой квазимонохроматическое, приблизительно гауссово распределение. Среднее значение этого распределения изменяется в зависимости от полярного угла рассеяния между направлением электронного луча и направлением наблюдения рентгеновского луча.

Здесь также следует упомянуть и о кольцевых источниках синхротронного излучения. Синхротронное излучение образуется в кольцевом ускорителе электронов (синхротроне), в котором электроны движутся по замкнутой изогнутой траектории в магнитном поле. Процесс возникновения синхротронного излучения связан с круговым движением электронов в поле поворотных магнитов, приводящим к тому, что электрон испытывает центростремительное ускорение, за счёт чего и возникает данное излучение. Диапазон этого излучения достаточно широк. Он может быть и в инфракрасной и видимой областях спектра, а также в рентгеновском диапазоне [9].

В то же время ГВГ — это эффективный и сравнительно дешёвый подход для генерации когерентных ЭУФ фотонов. Генерация гармоник в сверхплотной плазме с использованием очень интенсивных лазерных импульсов ($10^{18} - 10^{19}$ Вт см⁻²) может быть описана двумя механизмами: когерентным излучением и релятивистским процессом осциллирования плазменного зеркала [10–19]. Оба механизма испускают ЭУФ излучение в отражённом направлении посредством нелинейных процессов преобразования на переднем фронте развивающейся плазмы. Исследования генерации гармоник в плотной плазме, возникающей при фокусировке мощного лазерного излучения, проводились начиная с семидесятых годов прошлого столетия [20–22].

Другие методы ГВГ используют значительно меньшую интенсивность возбуждающего лазерного излучения ($10^{14} - 10^{15}$ Вт см⁻²), что делает их более доступными в плане реализации этого процесса благодаря наличию подобных лазерных источников во многих лабораториях. До сих пор наиболее часто используемым методом генерации когерентного ЭУФ излучения остается ГВГ в газах [23–26]. Когда лазерный импульс высокой интенсивности проходит через изотропную среду, в частности газ, её атомы и ионы излучают нечётные гармоники. Для длины волны лазерного излучения λ на выходе нелинейной среды наблюдается суперпозиция составляющих λ , $\lambda/3$, $\lambda/5$, $\lambda/7$ и т.д. Гармоники лазерного излучения возникают в результате трёхступенчатого процесса [26], который включает ионизацию атома (или последующую ионизацию однократно заряженного иона), ускорение электрона в электромагнитном поле лазерной волны и последующую рекомбинацию ускоренного электрона с "родительским" ионом, в результате чего реализуется генерация гармоник лазерного излучения. Этот процесс периодически повторяется каждую половину цикла электромагнитной волны. Таким образом, гармоники высшего порядка обусловлены рекомбинацией ускоренных электронов.

Схожий механизм генерации гармоник происходит в лазерно-индуцированной плазме (ЛИП), возникающей в результате лазерной абляции различных материалов. ЛИП представляет собой состояние вещества с варьируемой температурой и плотностью, которое образуется в результате взаимодействия лазерного излучения с веществом. Процесс формирования ЛИП происходит следующим образом. Лазерный импульс воздействует на поверхность объекта, и при этом происходит быстрый нагрев вещества и его частичная или полная ионизация с образованием плазмы. ЛИП, в зависимости от использования различных источников лазерного излучения, может обладать рядом специфических характеристик, среди которых можно выделить следующие свойства: (а) формирование плазменного факела происходит со сверхвысокой скоростью за малое время, (б) плазма характеризуется сильным самосвечением, и (в) плазменный факел имеет малый пространственный масштаб.

Применение ЛИП для ГВГ начало свое развитие в девяностых годах прошлого века. Максимальные наблюдаемые гармоники, генерируемые в тех экспериментах [27, 28], были ниже двадцатого порядка, что было следствием использования неподходящих условий при формировании плазмы для ГВГ. Эти исследования не продемонстрировали платообразного распределения интенсивностей гармоник из-за использования относительно высоких концентраций плазмы, которая также содержала большую концентрацию свободных электронов, что резко подавляло эффективность генерации гармоник более высокого порядка. Эти обстоятельства привели к охлаждению интереса к подобному методу преобразования длины волны лазерных источников в коротковолновую область.

В 2011 г. был продемонстрирован метод ГВГ при прохождении лазерных импульсов через твердотельные структуры [29–34]. Однако первые попытки реализовать этот метод позволили осуществить данный процесс с использованием длинноволновых лазеров, излучающих в диапазоне нескольких микрометров, что не привело на первом этапе к генерации в области ЭУФ (т.е. на длинах волн ниже 100 нм) из-за значительного поглощения генерируемых коротковолновых гармоник в этих твердых телах. Относительно недавно появились сообщения о первых попытках генерировать гармоники в твердых телах в области ЭУФ [35–38]. В частности, в работе [38] была продемонстрирована ГВГ в образцах оксида цинка и оксида магния вплоть до 29-го порядка излучения лазера с длиной волны 1550 нм, т.е. до диапазона ниже 55 нм. Кроме того, было показано, что тонкие пленки оксида кремния, подвергающиеся воздействию интенсивных ультракоротких импульсов (т.е., с длительностями от нескольких циклов до долей циклов электромагнитной волны), генерируют широкополосное когерентное ЭУФ излучение с энергией около 40 эВ, несмотря на значительное поглощение в тонких слоях [35].

Все вышеперечисленные методы ГВГ продемонстрировали низкие эффективности генерации гармоник в коротковолновой области ЭУФ (5–30 нм), недостаточные для применения в материаловедении. Более высокая эффективность преобразования в релятивистских лазерно-плазменных экспериментах отмечалась лишь в случае самых низких порядков гармоник (от 2-го до 6-го порядков). Затем эффективность генерации гармоник продолжала быстро падать (до 10^{-7} и ниже для тридцатых

гармоник), в отличие от гармоник, генерируемых в газах и плазме низкой плотности. Предположительно, именно по этой причине в последние годы акцент в случае гармоник, генерируемых в газах, был сделан на оптимизацию другого эффекта, обнаруженного в этих исследованиях, — генерации аттосекундных импульсов [39, 40].

Увеличение эффективности преобразования в гармоники является одной из основных задач исследователей, работающих в данном направлении. И если в случае ГВГ в газах этот параметр в области плато остаётся практически без изменений в течение всего времени использования этой методики (10^{-6} – 10^{-7}) вследствие ограничения в механизмах усиления в атомной среде, другая ситуация наблюдается в случае ГВГ в плазме. Четыре методики (резонансное усиление, использование квантовых точек и наночастиц, двухфотонная накачка плазмы и квазифазовое согласование (КФС) взаимодействующих волн) позволяют варьировать усиление гармоник в различных областях ЭУФ диапазона. Достигнутая за последнее время эффективность преобразования в гармоники в плазменных средах (10^{-5} и в ряде случаев 10^{-4}) возросла незначительно по сравнению с результатами десятилетней давности. Это связано, по всей видимости, с приближением к максимально возможным значениям этого параметра. В этом обзоре обсуждается эта особенность, и приводятся механизмы, способствующие ограничению в дальнейшем росте эффективности преобразования излучения в лазерной плазме. В этом плане, использованные новые методики приводили не столько к существенному увеличению эффективности ГВГ в плазме, сколько к более глубокому пониманию процессов, ограничивающих этот механизм преобразования длины волны лазерного излучения. Другим положительным моментом здесь является использование ГВГ как методики, позволяющей исследовать различные вещества исходя из характеристик генерируемых гармоник.

Таким образом, понимание ограничивающих процессов в случае ГВГ в слабоионизированной ЛИП за последние двадцать лет позволило значительно улучшить протекание этого процесса и продемонстрировать новые принципы усиления гармоник в этой среде с использованием различных передовых подходов. Кроме этого, данный метод генерации гармоник позволил продемонстрировать достижения в области материаловедения. Ниже мы представляем обзор этих исследований. Мы описываем экспериментальные методы, применяемые для демонстрации эффективной ГВГ в ЛИП, рассматриваем достижения, продемонстрированные в этой области, анализируем наиболее передовые подходы по усилению гармоник и обсуждаем перспективы и потенциальные применения этого метода генерации когерентного ЭУФ излучения.

Следует отметить публикацию нескольких обзоров, раскрывающих особенности ряда физических процессов, происходящих при взаимодействии сильных световых полей с веществом. К ним можно отнести работы, затрагивающие тематики, близкие к тем, что будут рассмотрены в этом обзоре [41–43]. Ряд недавних обзоров [44–46] также рассматривает те или иные аспекты преобразования частоты лазерного излучения.

Наиболее полный обзор ГВГ в плазменных средах был опубликован более 10 лет назад [47]. Обзоры появлялись и в последующие периоды. Однако они касались

отдельных сторон этого процесса. Представляемый в этой статье обзор содержит наиболее полный список публикаций по данной теме за последние 20 лет и позволяет представить общую картину развития и перспектив данного метода генерации когерентного ЭУФ излучения.

Структура данного обзора следующая. В разделе 2 мы описываем экспериментальные схемы, используемые для генерации гармоник в слабоионизированной плазме. В разделе 3 мы приводим обзор ранних и текущих исследований по этой тематике. В разделе 4 мы анализируем роль ионных резонансов в изменении интенсивности некоторых гармоник в процессе ГВГ в плазме. Двухцветная накачка (ДЦН) и трёхцветная накачка плазмы обсуждаются в разделе 5. В разделе 6 мы анализируем исследования, позволяющие модифицировать распределение интенсивности гармоник вдоль ЭУФ области с использованием КФС взаимодействующих волн в ЛИП. Применение кластеров, квантовых точек и наночастиц для повышения эффективности генерации гармоник рассмотрено в разделе 7. Наконец, в разделе 8 мы обсуждаем перспективы ГВГ в ЛИП.

2. Экспериментальные методы для генерации гармоник в лазерной плазме

Наиболее часто используемая схема ГВГ в ЛИП представлена на рис. 1а. Лазерная плазма создается внутри вакуумной камеры с помощью фокусировки пикосекунд-

ного или наносекундного излучения различных лазеров. Нагревающие импульсы (heating pulses, HP) фокусируются на поверхность различных исследуемых мишеней (target, T).

После некоторой задержки с начала лазерной абляции мишеней, необходимой для отлёта плазменного факела (laser-induced plasma, LIP) от поверхности образцов, в него направляется сфокусированное излучение от фемтосекундного лазера (driving pulse, DP). При этом, в процессе взаимодействия интенсивного лазерного поля с атомами и ионами плазменного факела генерируются гармоники этого поля, которые, наряду с самим излучением фемтосекундного лазера (driving pulse + harmonic emission, DP + HE), направляются в спектрометр, позволяющий анализировать излучение в ЭУФ области спектра (extreme ultraviolet radiation spectrometer, XUVS).

Типичная схема и вид экспериментальной установки, используемой для генерации гармоник в лазерной плазме, приведены на рис. 1б. Весь исследовательский комплекс состоит из титан-сапфирового лазера, параметрического усилителя света (ПУС), вакуумной камеры с мишенями и ЭУФ спектрометра. Излучение лазера или ПУС пропусклось через плазменный факел шириной 0,3 мм, и затем гармоники регистрировались ЭУФ спектрометром.

Лазер служил источником импульсов с длиной волны 800 нм и длительностью 55 фс. Как правило, ГВГ в ЛИП осуществлялось с использованием одноцветной накачки, т.е. с использованием излучения на одной длине волны.

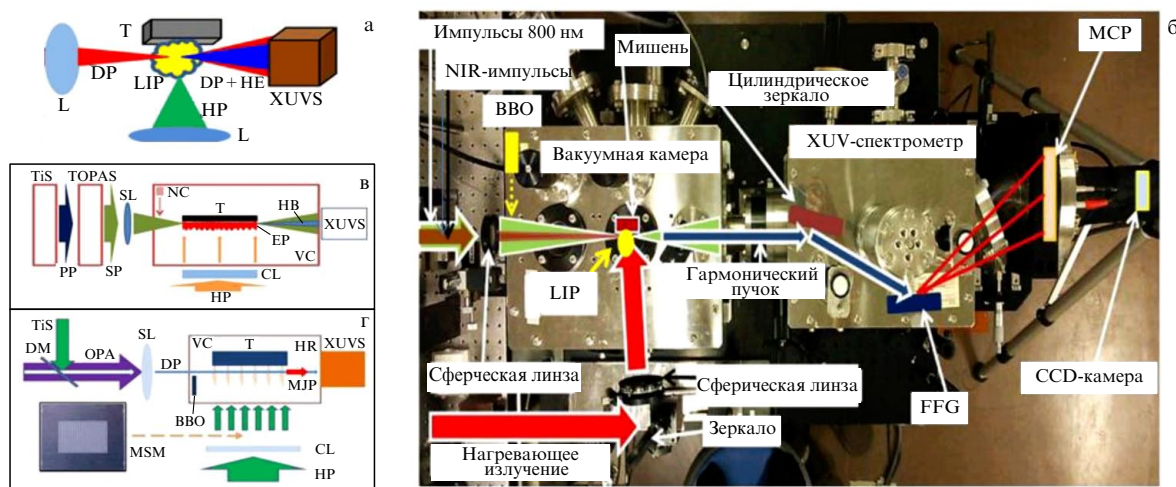


Рис. 1. Экспериментальные установки для исследования ГВГ в ЛИП. (а) Упрощённая схема генерации гармоник в лазерно-индуцированной плазме. L — линзы; DP — фемтосекундные импульсы для генерации гармоник; HP — нагревающие импульсы; T — мишень; LIP — лазерно-индуцированная плазма; DP + HE — импульсы фемтосекундного лазера и гармоник; XUVS — спектрометр экстремального ультрафиолетового излучения. (б) Фотография экспериментальной установки и подробная схема ГВГ в плазме с использованием излучения ближнего инфракрасного диапазона (near-infrared pulses, NIR pulses) и титан-сапфирового лазера (800 nm pulses). FFG — дифракционная решётка (flat-field grating); MCP — микроканальная пластина; BVO — нелинейный кристалл для генерации второй гармоники (H2) импульсов с длиной волны 800 нм или импульсов инфракрасного диапазона. (в) Генерация гармоник в протяжённой лазерной плазме. TiS — титан-сапфировый лазер; TOPAS — оптический параметрический усилитель; PP — импульсы накачки для оптического параметрического усилителя; SP — импульс усиленного излучения от оптического параметрического усилителя или импульс от титан-сапфирового лазера; HP — пикосекундный импульс для абляции мишени; SL — сферическая линза; CL — цилиндрическая линза; VC — вакуумная камера; T — мишень; EP — протяжённая плазма; NC — нелинейный кристалл (BVO) для генерации второй гармоники; HB — излучение гармоник; XUVS — спектрометр для анализа экстремального ультрафиолетового излучения [40]. Воспроизведено с разрешения EPJ.org. (г) Схема генерации гармоник в многоструйной плазме. HP — нагревающий импульс; DP — преобразуемый импульс; CL — цилиндрическая линза; SL — сферическая линза; MSM — маска с несколькими щелями; DM — дихроичное зеркало; TiS — фемтосекундное излучение титан-сапфирового лазера; OPA — фемтосекундное излучение оптического параметрического усилителя; VC — вакуумная камера; T — мишень; BVO — нелинейный кристалл для генерации второй гармоники; HR — излучение гармоник; MJP — многоструйная плазма; XUVS — спектрометр экстремального ультрафиолетового излучения.

Некоторые эксперименты проводились с использованием двухцветной накачки ЛИП путём установки нелинейного кристалла на пути лазерного излучения, преобразования части 800 нм излучения в 400 нм излучение и последующим прохождением этих двух импульсов через плазму. В исследованиях использовались как протяжённая плазма, так и многоструйная плазма. Длина протяжённой плазмы была равна длине мишеней, использовавшихся для абляции (5 мм). Такая плазма создавалась с использованием 350 пс греющих импульсов (ГИ) сфокусированных на поверхность мишени с помощью цилиндрической линзы (рис. 1в). Интенсивность ГИ на поверхности мишени варьировалась в диапазоне от 1×10^9 до 4×10^9 Вт см⁻² в зависимости от свойств мишеней и требуемых условий для формирования оптимальной плазмы, содержащей определённую концентрацию свободных электронов.

Для создания многоструйной структуры протяжённая плазма разделялась на группу плазменных струй путём установки многощелевой маски (ММ) между цилиндрической линзой и входным окном вакуумной камеры (рис. 1г). При этом греющий лазерный пучок разделялся на несколько пучков, которые после взаимодействия с поверхностью мишени создавали плазменные струи, отделённые друг от друга. Толщина этих струй и расстояние между ними зависели от размеров щелей ММ и расстояния между ними. В ходе этих исследований использовались ММ с размерами щелей 0,3, 0,4 и 0,5 мм и аналогичными расстояниями между щелями. Преобразуемое излучение распространялось через эти струи (соответственно, 8, 6 и 5 струй вдоль мишеней длиной 5 мм) и направлялось в ЭУФ спектрометр.

3. Разработка методов увеличения эффективности генерации высших гармоник в лазерно-индуцированной плазме

Первые исследования генерации гармоник в плазме, проведённые в 1992–1997 гг. [27, 28, 48–50], оказались гораздо менее успешными по сравнению с исследованиями генерации гармоник в газах. В тех исследованиях были получены гармоники относительно низкого порядка (т.е. до 19-го порядка, рис. 2а). Особенностью тех экспериментов было использование высоких интенсивностей ГИ, что приводило к формированию плазмы, содержащей, наряду с большим количеством атомов и ионов ($> 10^{18}$ см⁻³), высокую концентрацию свободных электронов. Эти условия в значительной степени ограничивали возможность генерации высших порядков гармоник вследствие значительного фазового рассогласования между волнами фемтосекундного преобразуемого импульса и гармоник. Между тем, применение плазмы низкой плотности ($\sim 10^{17}$ см⁻³) позволило в значительной степени улучшить условия ГВГ, что привело к генерации гармоник вплоть до 63-го порядка вследствие малой концентрации свободных электронов (рис. 2б, верхняя панель) [51]. С тех пор этот метод генерации когерентного ЭУФ излучения получил значительное развитие, продемонстрировав новые неожиданные возможности при взаимодействии лазерных импульсов со слабоионизированной плазмой.

Технология эффективной ГВГ в лазерной плазме получила широкое развитие с 2005 г., когда был предложен и продемонстрирован описанный выше новый подход в использовании плазмы с низкой плотностью, низкой

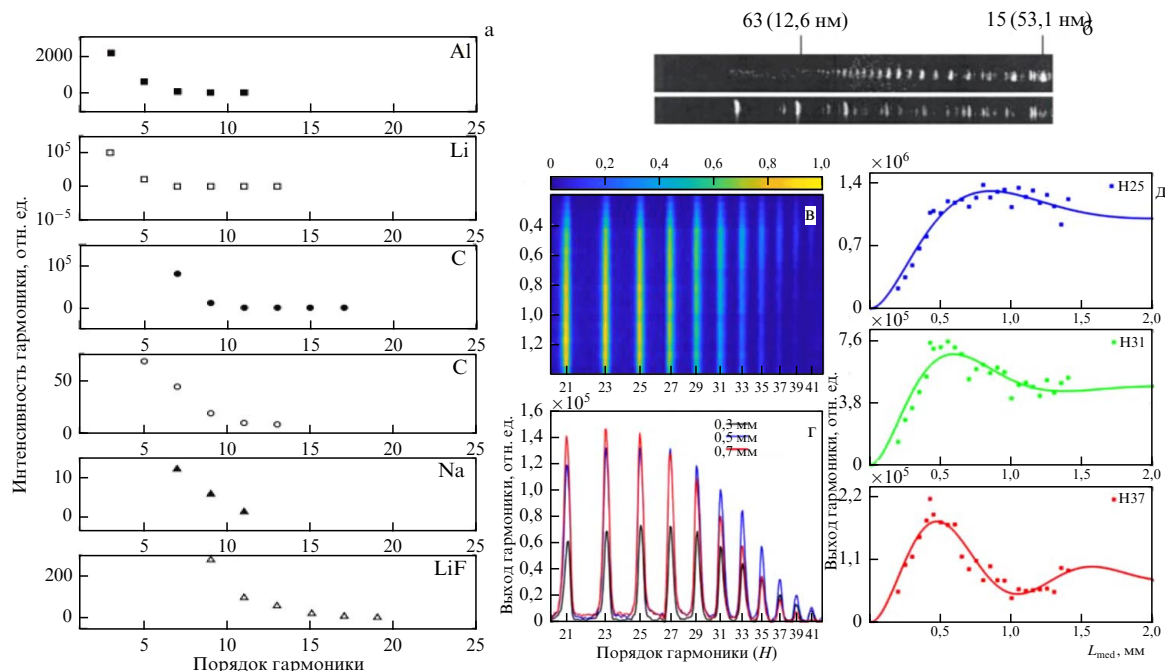


Рис. 2. (а) Спектры гармоник, полученные в различных ЛИП (Al, Li, C, Na и LiF) на ранней стадии исследований (1992–1997 гг.). (б) Необработанные изображения спектров гармоник, генерировавшихся в плазме бора, полученные при оптимальной абляции мишени (верхняя панель), и спектров плазменного излучения, возникающего при сильной абляции бора (нижняя панель) [51]. Воспроизведено с разрешения © Optica Publishing Group. (в–д) Генерация гармоник в плазме меди. (в) Изображения спектров гармоник в зависимости от длины плазменного факела. (г) Спектры гармоник при трёх различных длинах плазмы: 0,3 мм, 0,5 мм и 0,7 мм. (д) Относительные интенсивности гармоник в зависимости от длины плазмы для трёх порядков гармоник: 25-го, 31-го и 37-го [78]. Воспроизведено с разрешения © Optica Publishing Group.

степенью ионизации и малой концентрацией свободных электронов [51]. Этот подход позволил существенно изменить динамику этого процесса и увеличить порядок генерирующих гармоник до сотого и выше. С тех пор всё большее число лабораторий стало участвовать в реализации фундаментальных и практических аспектов этого направления в создании источников когерентного ЭУФ излучения и исследовании на основе этого метода характеристик компонент лазерной плазмы [52–83]. Ниже мы кратко ознакомим с наиболее интересными результатами, полученными в ходе этих исследований.

Увеличение энергии гармоник имеет первостепенное значение для их практического применения. Когерентный ЭУФ источник с энергией импульсов в несколько мкДж, основанный на генерации гармоник в плазме, был продемонстрирован в работе [55]. Применение высокоэнергетичных фемтосекундных импульсов позволило генерировать гармоники в некоторых плазменных формированиях с эффективностью преобразования 10^{-6} и выше. Углеродная плазма показала самую высокую эффективность преобразования в длинноволновом диапазоне ЭУФ (60–100 нм) среди других плазменных формирований, при этом превышая эффективность преобразования гармоник в газовых средах [55, 65].

Важным параметром этого процесса является длина лазерной плазмы [78]. Обычно используемые условия фокусировки ГИ с использованием сферической линзы приводят к образованию плазмы шириной, примерно равной диаметру сфокусированного излучения на поверхности облучаемой мишени. В большинстве случаев этот параметр составлял несколько сотен микрометров (0,3–0,4 мм). Между тем, зависимость эффективности ГВГ от длины среды, в которой реализуется этот процесс, позволяет ожидать квадратичное увеличение энергии гармоник при использовании более длинной плазмы. Для создания подобной плазмы может использоваться цилиндрическая линза, которая при фокусировке ГИ на поверхность мишеней создавала бы условия для формирования протяжённой плазмы. В этом случае однородная протяжённая плазма может формироваться по всей длине мишени (обычно ~ 5 мм). В этих условиях наблюдалось увеличение энергии различных порядков гармоник с увеличением размера плазмы до некоторой длины, после чего происходило обратное преобразование гармоник в излучение преобразуемого импульса (рис. 2в–д). В этих условиях были проанализированы различные процессы, влияющие на условия согласования фаз гармоник и преобразуемого излучения, и при этом выявлено преобладающее влияние присутствия значительного количества свободных электронов на рассогласование этих фаз, приводящее к подавлению процесса ГВГ. Зависимость интенсивности гармоник высшего порядка от длины плазмы (L_{plasma}) также была проанализирована в работе [53]. Было показано, что интенсивность гармоник следует зависимости $I_H \propto (L_{\text{plasma}})^p$, где показатель масштабирования p обычно оказывается меньше 2 для всех порядков гармоник. Более того, значение показателя p уменьшается с увеличением порядка гармоник. Полученные результаты были объяснены с учётом рассогласования фаз и поглощения гармоник.

Лазерные фемтосекундные импульсы с пространственно изменяемой поляризацией и фазой (так называемые векторные и вихревые пучки) могут быть использованы для генерации гармоник различной поляризации и

фазы, представляющих эллиптические, круговые, векторные и вихревые ЭУФ пучки. Для многих применений требуется высокоинтенсивное структурированное ЭУФ излучение. Интенсивные гармоники, характеризующиеся определённым орбитальным угловым моментом (так называемые вихревые гармоники), были получены при ГВГ в плазме с использованием вихревых преобразуемых пучков [70]. Эти исследования показали, что ЛИП может служить средой для генерации интенсивных ЭУФ векторных пучков, управляемых векторными лазерными импульсами. Эти исследования позволили изучить влияние векторных лазерных импульсов на эффективность преобразования излучения и на величину максимально генерируемого порядка этих гармоник. Векторные лазерные пучки были использованы для генерации интенсивных гармоник в ЛИП, образующейся на поверхностях различных мишеней (сульфиде кадмия, углероде и индии). Изменение интенсивности и максимального порядка генерируемых гармоник исследовалось путём варьирования поляризации векторных пучков (т.е. с использованием радиальной поляризации, азимутальной поляризации и их сочетанием), а также с помощью изменения этих параметров с использованием лазерных фемтосекундных импульсов с изменяющейся во времени поляризацией.

Исследования, основанные на применении излучения различной пространственной поляризации для преобразования длины волны в газах и плазме, продемонстрировали возможность получения интенсивных радиально и азимутально поляризованных ЭУФ импульсов для применения в таких областях как лазерная обработка, ускорение частиц, коротковолновая литография, микроскопия и спектроскопия [84]. Пример абляции графита с использованием интенсивного фемтосекундного греющего импульса (энергия импульса 0,4 мДж, плотность потока $0,2 \text{ Дж см}^{-1}$, интенсивность на поверхности мишени $8 \times 10^{11} \text{ Вт см}^{-2}$, длительность импульса 250 фс) приведён на рис. 3а [85]. В этих условиях можно было наблюдать возбуждение линий C^+ , C^{2+} и C^{3+} в 30–90 нм спектральном диапазоне. Данное состояние плазмы не позволяло эффективно генерировать гармоники вследствие большой концентрации свободных электронов.

В последующих исследованиях с применением оптимально сформированной плазмы в ЭУФ спектрометре использовалось плоское зеркало с золотым покрытием, которое заменило цилиндрическое зеркало, что позволило проанализировать пространственные характеристики генерируемых гармоник. На рисунке 3б показан спектр гармоник, генерируемых в углеродной плазме в оптимальных условиях абляции. Правая вставка на этой панели отображает пространственный профиль 17-й гармоники (H17) вдоль вертикальной оси, который близок к гауссову распределению интенсивности. Введение фазовой пластины перед линзой, фокусирующей преобразуемые фемтосекундные импульсы в ЛИП, позволяло генерировать пространственно-модулированные пучки с радиальной либо азимутальной поляризацией. В этом случае, как эффективность преобразования в гармоники, так и максимально генерируемый порядок гармоник были ниже по сравнению со случаем использования линейно-поляризованного гауссова пучка, показанного на рис. 3б. Преобразованное излучение раздвигалось вдоль вертикальной оси, и при этом минимальная интенсивность наблюдалась в центральной области каждой

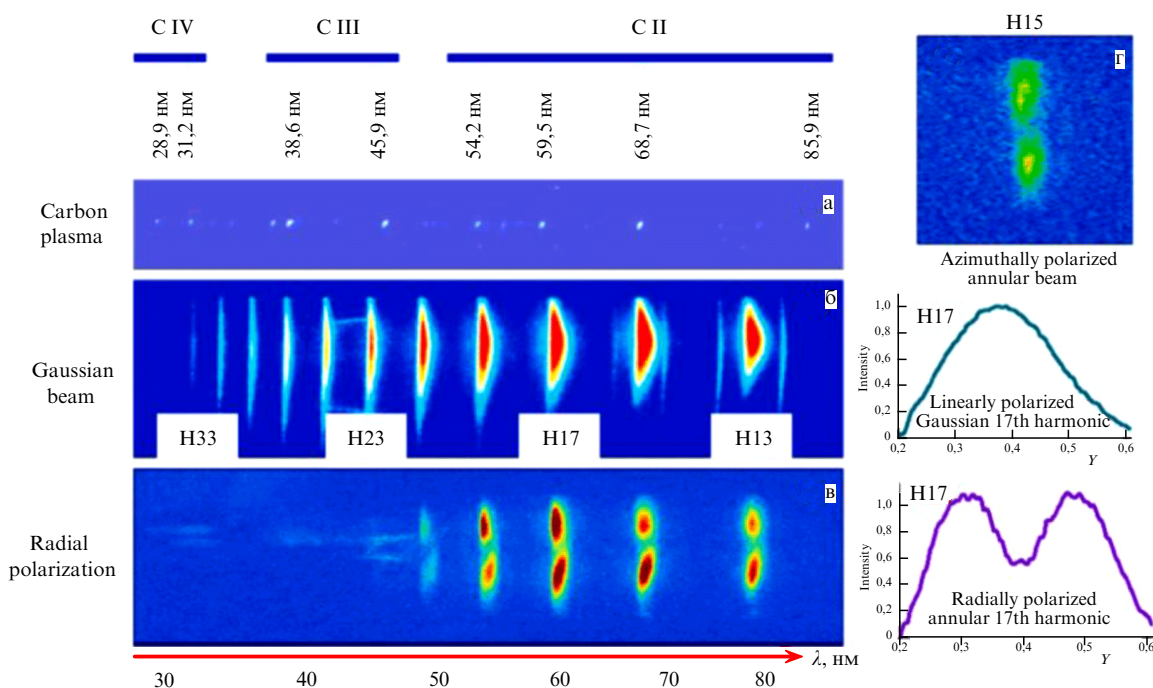


Рис. 3. Излучение плазмы и гармоник при абляции углерода. (а) Спектр плазмы при плотности энергии нагревающих 250 фс импульсов на поверхности мишени $0,2 \text{ Дж см}^{-2}$. (б) Генерация гармоник при плотности энергии нагревающих 250 фс импульсов на поверхности мишени $0,035 \text{ Дж см}^{-2}$ и с использованием линейно поляризованных гауссовых пучков с длительностью импульсов 40 фс, длиной волны 1030 нм, энергией импульсов 0,4 мДж и частотой следования импульсов 50 кГц. В ЭУФ спектрометре использовалось плоское зеркало. На правой вставке показано распределение интенсивности H17 вдоль вертикальной оси. (в) Генерация гармоник с использованием радиально поляризованных преобразуемых импульсов. На правой вставке показано распределение интенсивности H17 вдоль вертикальной оси. (г) Изображение 15-й гармоники, генерируемой в углеродной плазме с использованием преобразуемых импульсов с азимутальной поляризацией [85]. Воспроизведено с разрешения Urban und Fischer Verlag, Inc.

гармоники (рис. 3в). Правая вставка на этой панели показывает поперечный профиль H17 вдоль вертикальной оси. Можно видеть, что в этом случае преобразование спектральных линий гармоник сопровождается характерным наклоном центральной тёмной области (H13 – H21 на рис. 3в). Аналогичная форма тёмных полос, соответствующих отсутствию гармоник в этих областях, наблюдалась и в случае ГВГ с использованием вихревых пучков, взаимодействующих с газами [86].

Генерируемые гармоники могут в свою очередь быть использованы для определения характеристик различных ЛИП. В частности, в работе [87] одновременное измерение ЭУФ гармоник, генерируемых в графитовой плазме на нескольких дискретных длинах волн, позволило оценить профиль плотности нейтральных атомов, однозарядных ионов и молекул C_2 . Схема этих измерений показана на рис. 4а. При 50 нс задержке после начала абляции мишени, когда ЛИП преимущественно состояла из нейтральных и однозарядных ионов, было определено, что максимальная плотность нейтральных атомов углерода ($8 \times 10^{18} \text{ см}^{-3}$) была выше, чем плотность однозарядных ионов ($4 \times 10^{18} \text{ см}^{-3}$). При этом плотность молекул C_2 ($3,5 \times 10^{17} \text{ см}^{-3}$) была на порядок ниже по сравнению с плотностями частиц C и C^+ . Кроме того, максимальная плотность молекул C_2 была ближе к поверхности (120 мкм) по сравнению с нейтральными атомами углерода (150 мкм) и однозарядными ионами углерода (170 мкм).

Это исследование продемонстрировало возможности использования когерентного ЭУФ излучения в качестве универсального метода для определения характеристик

плазмы для различных применений. Например, этот метод оказался пригодным для определения концентрации заряженных частиц. Было также определено, что присутствие нейтральных атомов, ионов и молекул в плазме по-разному влияет на возможность генерации наиболее высокого порядка генерируемых гармоник, а также на их интенсивность. Таким образом, данный метод показал себя как новый способ оценки профиля плотности различных компонентов плазменной среды.

Существует несколько практических приложений ГВГ, в которых требуется информация о когерентности источников гармоник, такие как рентгеновская голография, когерентная дифракционная визуализация, инъекция излучения гармоник в ЛСЭ и т.д. Чтобы использовать ГВГ от плазменных струй в качестве когерентного источника, необходимо охарактеризовать и контролировать когерентность гармоник.

Можно предположить, что пространственная когерентность гармоник будет высокой из-за когерентной природы процесса генерации гармоник. Подробное исследование пространственной когерентности излучения гармоник высшего порядка, генерируемых при взаимодействии лазера с плазмой, было опубликовано в работе [61]. В ходе тех исследований были определены оптимальные параметры лазера для достижения хорошей пространственной когерентности гармоник, генерируемых в углеродной плазме (рис. 4б). Было отмечено, что пространственная когерентность зависит от порядка гармоник, размера лазерного пучка в плазме и условий фокусировки лазерного излучения. Также было показано, что, несмотря на значительную ионизацию, простран-

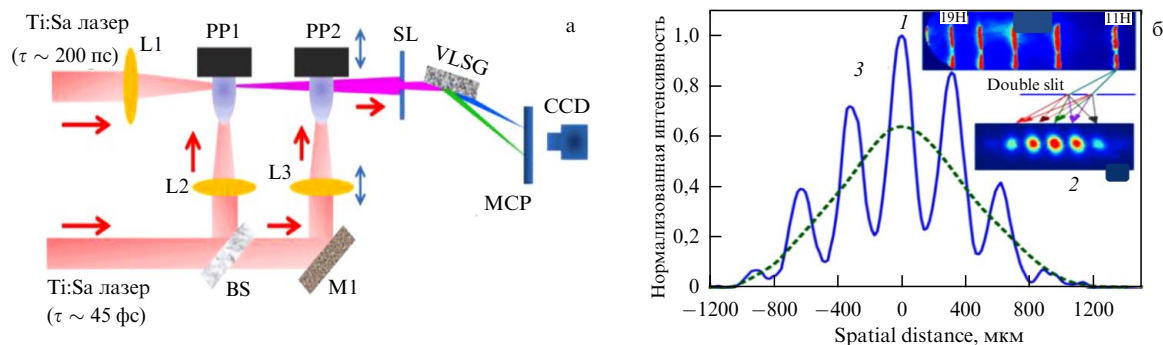


Рис. 4. (а) Схема экспериментальной установки, используемой для многоцветного ЭУФ анализа плазменных струй с использованием источника высших гармоник. Гармоники генерировались в плазменном факеле PP1 и использовались для ЭУФ анализа плазменного факела PP2. L1, L2 и L3 — линзы, M — зеркало, BS — светоделитель, SL — щель спектрографа, VLSG — дифракционная решётка с переменным интервалом [87]. Воспроизведено с разрешения AIP. (б) (1) Спектр гармоник; (2) Интерференционная картина 11-й гармоники, прошедшей через двойную щель (ширина щелей 30 мкм и расстояние между ними 100 мкм); (3) Сплошная линия: распределение интенсивностей интерференционных полос показанных на рис. 4б (2). Пунктирной линией показан рассчитанный профиль интенсивности 11-й гармоники для случая использования одной щели [61]. Воспроизведено с разрешения AIP.

ственная когерентность гармоник, полученных в ЛИП, аналогична когерентности гармоник, генерируемых в газовых струях. Отмечено, что пространственная когерентность была выше, когда лазер фокусировался перед плазменным факелом, чем после него. Это исследование показало возможность применения таких источников гармоник для интерферометрических и когерентных микроскопических применений.

Многочисленные исследования показали, что максимальные порядки гармоник, генерируемых в плазменных факелах, значительно различаются в зависимости от материала мишеней. Эти исследования показали, что, в соответствии с полуклассической теорией ГВГ, в первую очередь необходимо учитывать вклад ионов, а не нейтральных атомов находящихся в ЛИП, в генерацию гармоник.

Разработка двумерных (2D) нанокристаллов (НК), обладающих сильным нелинейно-оптическим откликом, имеет важное значение для различных применений в фотонике и оптических коммуникациях. В работе [75] была продемонстрирована эффективная ГВГ в плазме образованной на поверхности НК CsPbBr₃, легированных никелем (рис. 5а). Эти исследования показали, что двумерные НК позволяют достичь высокую эффективность генерации гармоник при сравнительно низких интенсивностях преобразуемых и греющих импульсов. В работе также была продемонстрирована важная роль легирующих примесей в увеличении энергии гармоник для случая НК CsPbBr₃. Было обнаружено, что тенденция, наблюдаемая при увеличении интенсивности генерируемых гармоник, коррелирует с увеличением нелинейно-оптических свойств третьего порядка тех же НК, исследованных на длине волны 800 нм. Анализ распространения плазмы, содержащей НК CsPbBr₃, легированных никелем, позволил оптимизировать задержку между наносекундными ГИ и фемтосекундными преобразуемыми импульсами для повышения эффективности генерации гармоник.

Таким образом, описанные выше исследования позволили решать задачи увеличения интенсивности когерентного ЭУФ излучения с учётом структурных различий плазменных факелов. Помимо этого, исследование новых материалов при ГВГ в плазме открыло путь к

получению коротковолнового излучения для различных применений в нелинейной спектроскопии. Эти исследования также показали, что использование ЛИП низкой плотности позволяет разработать новые подходы к изучению крупных молекул, кластеров, квантовых точек (КТ) и наночастиц (НЧ), подвергнутых абляции, что позволяет значительно расширить круг исследований различных наноструктурированных материалов по сравнению с генерацией гармоник в газах.

Многочисленные металлы и полупроводники были проанализированы методом абляции и генерации гармоник. Большинство твёрдых нерадиоактивных элементов периодической таблицы Менделеева, подвергнутых лазерной абляции, продемонстрировали способность к ГВГ в плазме (рис. 5б), хотя эффективность генерации гармоник для этих элементов значительно различалась. Кроме того, для изучения гармоник в ЛИП использовались различные молекулярные структуры.

4. Резонансное усиление одиночной гармоники

В этом разделе представлены результаты исследования усиления гармоник вблизи ионных резонансов. В работе [88] впервые было продемонстрировано усиление одиночной гармоники, находящейся вблизи ионного перехода индия, обладающего большой силой осциллятора (gf). В этих исследованиях наблюдалась сильная 13-я гармоника (длина волны $\lambda = 61,2$ нм) титан-сапфирового лазера ($\lambda = 800$ нм) с выходной интенсивностью, почти на два порядка превышающей интенсивности соседних гармоник (рис. 6а). Эффективность преобразования в 13-ю гармонику составила $\sim 10^{-4}$.

После наблюдения такого необычного распределения гармоник, разительно отличающегося от классического платообразного распределения интенсивности генерируемых гармоник, возник вопрос о природе этого явления. Необходимо было определить, было ли излучение, ассоциируемое с 13-й гармоникой, вызвано усиленным спонтанным излучением, повторным возбуждением плазмы фемтосекундным импульсом или нелинейно-оптическим процессом, связанным с усилением отдельной гармоники из-за её спектральной близости к сильному ионному переходу индия.

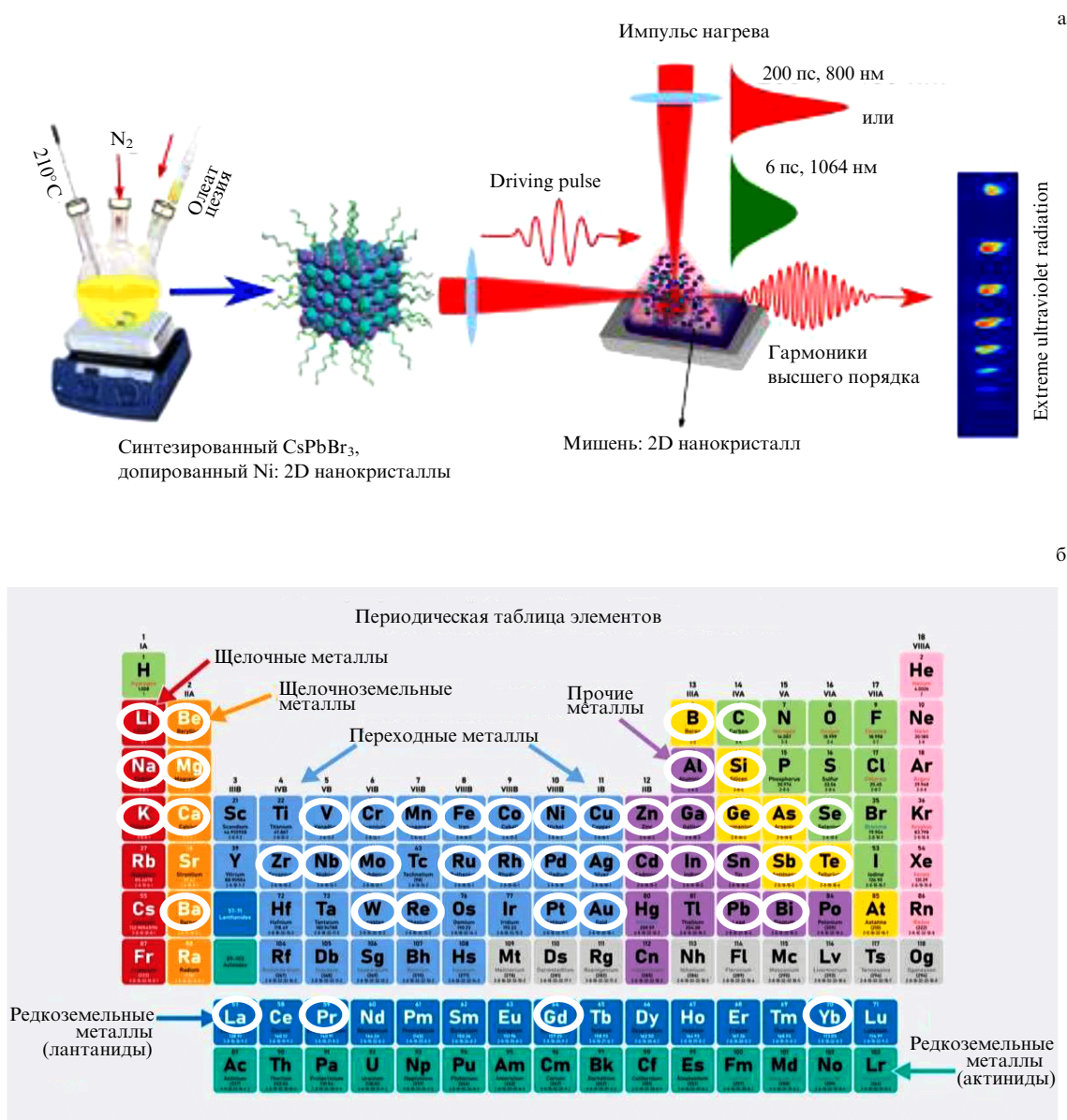


Рис. 5. (а) Синтез нанокристаллов CsPbBr₃, легированных никелем, и их абляция импульсами различной длительности для формирования плазмы и генерации гармоник [75]. Воспроизведено с разрешения American Chemical Society. (б) Элементы периодической таблицы Менделеева (белые кружки), использовавшиеся для генерации гармоник в плазме.

Отметим, что все дальнейшие исследования одиночных усиленных гармоник, наблюдавшихся в ряде других плазменных сред, показали сильную зависимость интенсивности этих гармоник от длины волны преобразуемого излучения, что подтвердило решающую роль ионных переходов в этом процессе. Начиная с первой демонстрации этого процесса в плазме индия и последующей разработки теорий, основанных на различных принципах, объясняющих этот процесс [89–97], была показана связь усиления гармоник и их расположения вблизи ионных переходов, обладающих большой gf . Этот процесс, вызванный резонансом между ионными переходами и длиной волны гармоники в ЭУФ диапазоне, наблюдался в хrome, сурьме, теллуре, марганце, олове, цинке, молибдене, литии, иттербии, германии, мышьяке и некоторых металлосодержащих структурах. Почти во всех этих экспериментальных исследованиях использо-

вались фемтосекундные лазеры с фиксированной длиной волны 800 нм. Отметим, что на первых этапах исследования резонансных гармоник фиксированная длина волны одноцветной накачки (ОЦН) плазмы не позволяла анализировать спектральную перестройку интенсивности этих гармоник вблизи сильных ионных переходов.

Ниже мы рассмотрим принципы усиления отдельных гармоник в плазме. Как отмечалось выше, существуют несколько моделей, описывающих механизм усиления одиночной гармоники, вызванного резонансом. Вскоре после первых экспериментальных наблюдений этого эффекта было разработано несколько подходов для объяснения экспериментально наблюдаемых особенностей резонансно усиленных гармоник. Они значительно улучшили понимание механизмов, управляющих этим процессом.

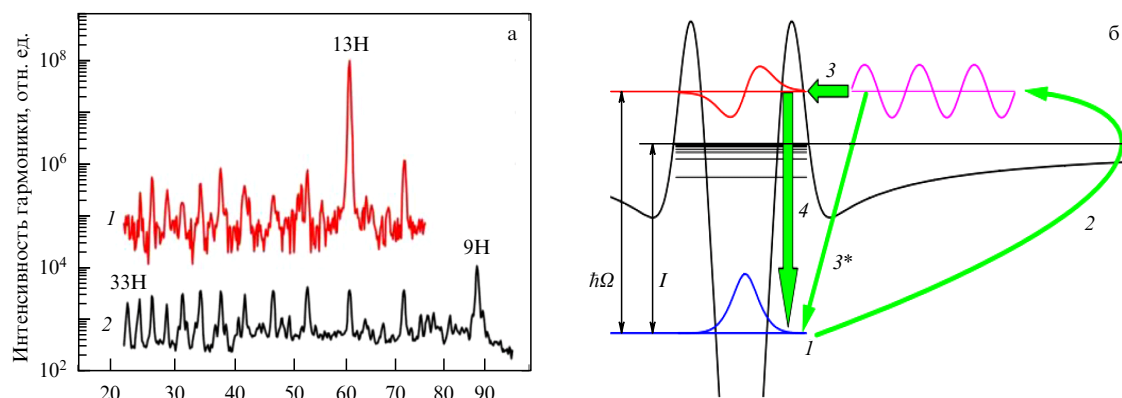


Рис. 6. (а) Спектры гармоник высшего порядка, генерируемых в (1) In и (2) Ag ЛИП [88]. Воспроизведено с разрешения © Optica Publishing Group. (б) Трёхступенчатая модель ГВГ, включающая ионизацию (1), свободное движение электронов в поле (2) и рекомбинацию (3*). В предлагаемой 4-ступенчатой модели третья стадия заменяется безызлучательным переходом в автоионизационное состояние (3) и релаксацией с когерентным излучением (4) [93]. Воспроизведено с разрешения American Physical Society.

В частности, в работе [93] была разработана четырёх-ступенчатая модель ГВГ, описывающая повышение эффективности генерации гармоник вблизи ионного резонанса при переходе между основным и автоионизационным состояниями иона. В работе была предложена модификация трёхступенчатой модели ГВГ для случая резонансно-усиленной гармоник с учётом перехода "основное состояние–автоионизационное состояние", как показано на рис. 6б. Вместо последнего этапа (радиационной рекомбинации из континуума в основное состояние) свободный электрон захватывается родительским ионом, так что система "родительский ион + электрон" переходит в состояние автоионизации (этап 3 на рис. 6б), а затем переходит в основное состояние, испуская ЭУФ фотон (этап 4). На первый взгляд, замена одиночной стадии рекомбинации 3*, используемой в трёхступенчатой модели, на две стадии уменьшила бы вероятность этого процесса. Однако большое поперечное сечение неупругого рассеяния (этап 3) и большая величина gf в случае некоторых переходов из основного в автоионизационное состояние у ряда ионов (этап 4) приводят к более высокой вероятности 4-ступенчатого процесса.

Следует обратить внимание, что описанная выше модель может быть применена для случая, когда резонансный уровень соответствует состоянию автоионизации, чего нельзя сказать о низколежащих состояниях некоторых ионов, предположительно участвующих в наблюдаемом усилении отдельных гармоник. В этом случае модель, разработанная в работе [98], может быть пригодна для некоторых из экспериментальных условий с привлечением низколежащих состояний ионов. Подобные низколежащие состояния с большой величиной gf характерны для многих атомных и ионных систем с потенциалами ионизации, существенно более низкими, чем у инертных газов. Расчёты показали, что резонансная ширина усиления может быть меньше спектральной ширины излучения лазерной накачки, что означает, что в данном случае наблюдается многофотонный процесс.

Отметим, что экспериментальные данные по усилению одиночной гармоник, вызванному резонансом с ионными переходами, были получены исключительно в случае исследований в плазменных факелах с низкой плотностью. Очевидно, что в случае ГВГ в газовых средах вероятность случайного совпадения длин волн ион-

ного перехода и гармоник чрезвычайно мала вследствие использования экспериментальных условий, когда атомы газов в момент генерации гармоник представлены в нейтральном состоянии. В то же время, большинство элементов периодической системы Менделеева находятся в твёрдом состоянии и, таким образом, могут быть подвергнуты абляции с образованием плазменного факела, содержащего различные ионные состояния этих элементов. Иными словами, процесс резонансного усиления одиночной гармоник, имеющий очень малую вероятность в нейтральных газах, может быть эффективно реализован в ионизированных средах, полученных в результате абляции твёрдых мишеней.

Резонансный механизм усиления гармоник в ЛИП был также проанализирован в работе [96], где было показано, что резонанс приводит к появлению специфической особенности в спектре гармоник. Частотно-временной анализ интенсивности и фазы гармоник подтвердил вышеописанную четырёхступенчатую модель резонансного усиления. Интересная особенность наблюдалась в случае ГВГ в плазме марганца с использованием ультракоротких импульсов с длиной волны 780 нм и длительностью, соответствующей нескольким циклам световой волны [59]. Теоретическое моделирование показало, что в этом случае резонансно усиленная гармоника представляет собой практически изолированный субфемтосекундный импульс. Характерная структура спектра гармоник, полученного с использованием 3,5 фс импульсов, указывает на участие резонансов Mn в области 50–51 эВ. То же самое можно сказать и о характеристиках фотоионизации или фотопоглощения плазмы Mn^+ , которые обусловлены "гигантскими" 3p–3d резонансами [99]. Результаты численного расчёта в рамках 1D-модели показали, что основной вклад в резонансный пик в спектре вносят ионы Mn^+ . Обратим внимание, что потенциал ионизации ионов Mn^{2+} (33,7 эВ) более чем в два раза превышает потенциал ионизации ионов Mn^+ (15,6 эВ). Уравнение Шредингера для случая Mn^+ было смоделировано с использованием потенциала, описывающего метастабильное состояние иона [96, 100]. Экспериментальные и теоретические исследования спектров ГВГ в случае плазмы марганца показали зависимость от фазы возбуждающих импульсов, длящихся несколько циклов световой волны. Выделение одиночной (33-й) гар-

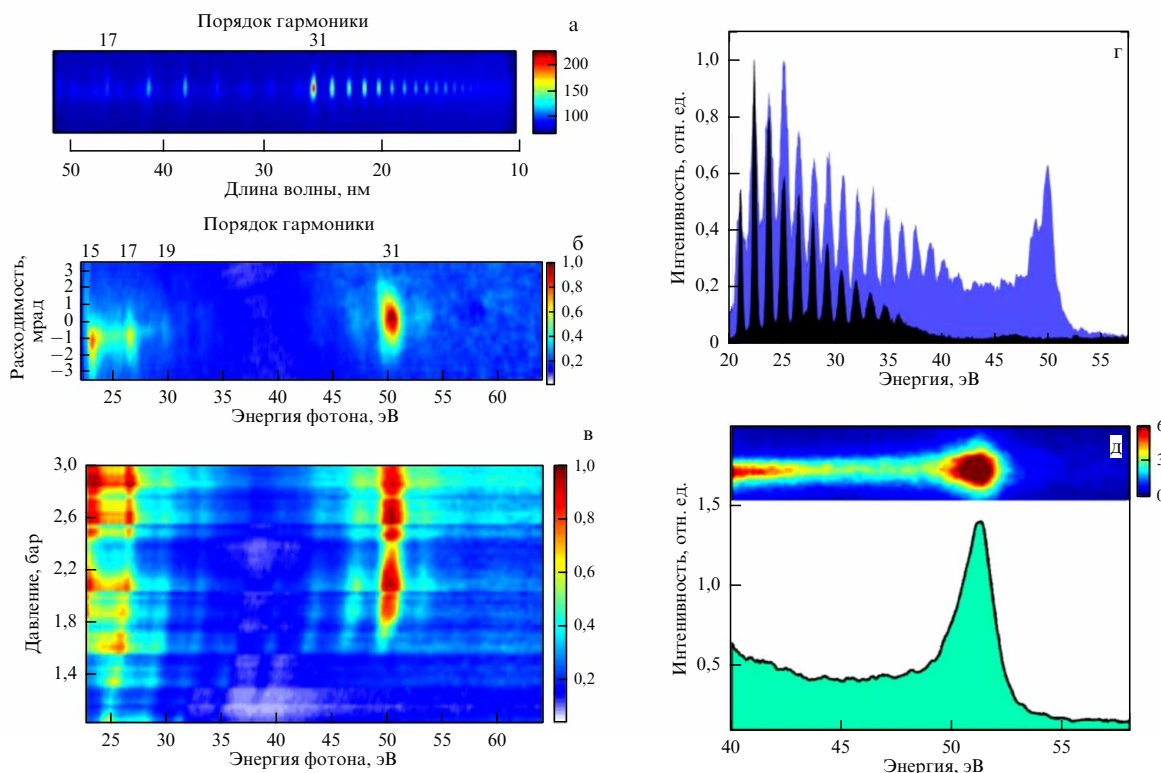


Рис. 7. Спектры гармоник, генерируемых в марганцевой плазме, в случае (а) 40 фс и (б) 3,5 фс импульсов с длиной волны 780 нм. (в) Вариация спектра гармоник при различном давлении неона в полном волокне, используемом для компрессии лазерных импульсов [59]. Воспроизведено с разрешения © Optica Publishing Group. (г) Спектры гармоник, наблюдаемые в марганцевой плазме при длительностях 30 фс (синие спектры) и 50 фс (чёрные спектры). (д) Спектр высших гармоник в случае ультракоротких импульсов, при котором наблюдался широкополосный ЭУФ континуум [69]. Воспроизведено с разрешения American Physical Society.

моники 780 нм излучения без какой-либо сепарации может найти применение для случаев, где требуются когерентные ультракороткие ЭУФ импульсы, полученные без потерь, вызываемых спектральной дисперсией или фильтрацией.

Подобно ГВГ в газах, преобразование длины волны лазерного излучения в плазме может приводить к генерации аттосекундных импульсов. Эта возможность была впервые проанализирована в работе [57]. Было показано, что в случае импульсов преобразуемого излучения длительностью 50 фс гармоника, генерируемая в плазме хрома, позволяющей генерировать резонансно-усиленную гармонику, имеют очень короткую длительность (300 ас). Соответственно, можно предположить, что очень короткий импульс, состоящий из нескольких циклов световой волны, сможет генерировать резонансно-усиленные гармоники с ещё меньшей длительностью импульса. Соответствующий спектр таких гармоник должен быть значительно шире по сравнению со случаем применения более длинных (40–70 фс) лазерных импульсов. Как уже упоминалось, данная возможность была продемонстрирована для случая марганцевой плазмы, когда для генерации гармоник использовались импульсы длительностью 3,5 фс [59]. Спектры гармоник от сравнительно длинных импульсов (40 фс) представляли собой набор низших и высших порядков, с усиленной 31-й гармоникой 780 нм излучения (рис. 7а), в то время как использование 3,5 фс импульсов приводило к генерации практически одиночной 31-й гармоник (рис. 7б и в). Хотя в описываемых исследованиях не проводились

измерения длительности гармоник, временные характеристики широкополосной 31-й гармоник не должны были превышать 1 фс.

О применении длинноволнового излучения ($\lambda = 1820$ нм) для ГВГ в плазме марганца сообщалось в работе [69]. Эти исследования показали, что высшие гармоники наблюдаются для случаев нейтральных атомов и однократно заряженных ионов Mn в случае относительно длинных лазерных импульсов (30 и 50 фс, рис. 7г). Эти исследования показали возможность использования длинноволновых источников лазерного излучения для ГВГ в плазме, что важно в плане продвижения исследований гармоник от нейтральных атомов с использованием фотонов с малой энергией. Данная работа показала возможность снижения требования к интенсивности лазерного излучения для исследования гармоник в элементах с малой энергией ионизации. Кроме того, как и в случаях, описанных выше, были продемонстрированы интенсивные и широкополосные высшие гармоники вблизи гигантского автоионизационного резонанса в области энергий 49–53 эВ (рис. 7д). Излучение интенсивных гармоник в этой энергетической области подтверждает прямое участие гигантского автоионизационного резонанса в ГВГ.

Фазовые искажения аттосекундных импульсов гармоник, генерируемых в результате резонансного усиления в плазме, были исследованы в работе [62]. Генерация ультракоротких импульсов в процессе ГВГ может быть реализована и в случае плазменных сред, не демонстрирующих резонансный процесс усиления гармоник. В ра-

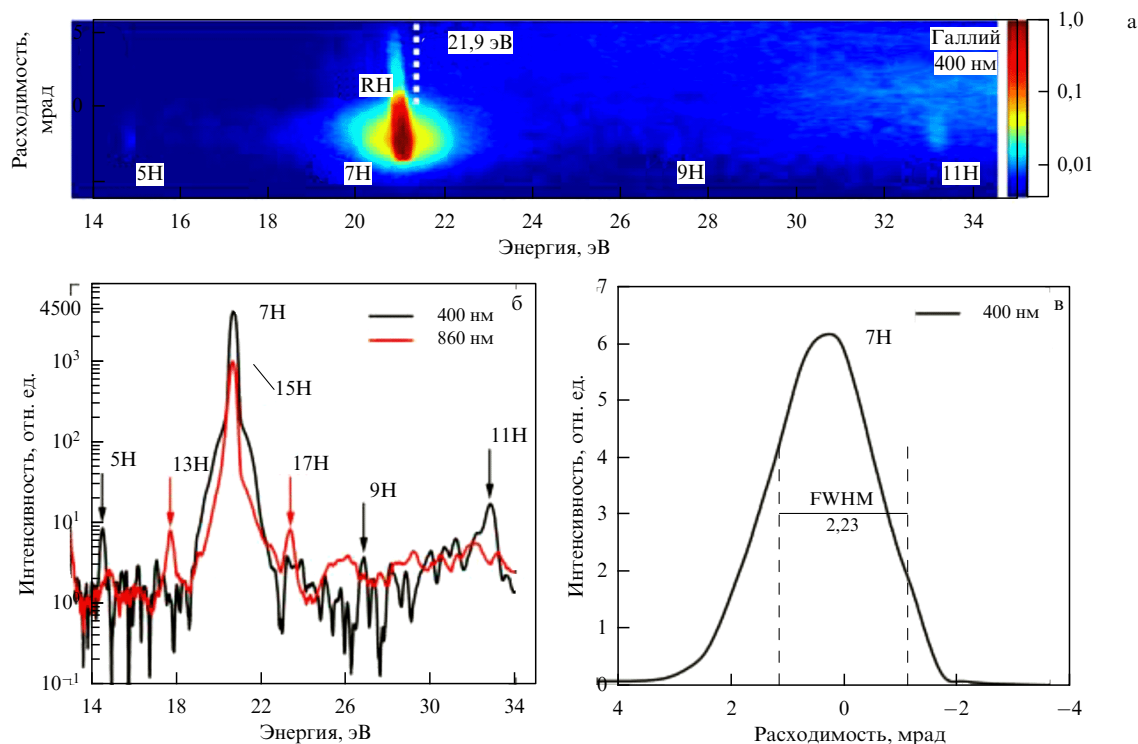


Рис. 8. (а) Спектр гармоник, полученный в Ga^+ плазме с использованием лазерного излучения с длиной волны 400 нм. (б) Спектры резонансной гармоник с использованием 400 нм и 860 нм излучения. (в) Расходимость резонансной гармоник (2,23 мрад), указывающая на когерентную природу этого излучения [74]. Воспроизведено с разрешения © Optica Publishing Group.

боте [58], исследовавшей углеродную плазму, была реализована генерация широкополосного спектра гармоник высшего порядка с использованием 8 фс импульсов. Такой вид спектра является характерной чертой генерации изолированных аттосекундных импульсов. Этот многообещающий метод генерации аттосекундных импульсов в лазерной плазме открывает широкую область применения подобного ЭУФ излучения.

Отметим, что использование коротковолнового лазерного излучения (400 нм) также приводит к получению интенсивной резонансной гармоник с высоким коэффициентом усиления [74]. Эти и вышеуказанные исследования позволяют проложить путь к поиску дальнейших методов полного подавления нерезонансных гармоник, которые обычно наблюдаются в виде длинного плато, и генерирования лишь одной резонансной гармоник, свободной от других гармоник. Так, галлиевая плазма в случае использования излучения преобразуемых импульсов с длиной волны 400 нм позволила продемонстрировать очень высокий коэффициент усиления ($\times 714$) одиночной (7-й) гармоник (рис. 8).

На рисунке 8а показана интенсивная гармоника, усиленная резонансом, и наблюдавшаяся при интенсивности лазерного излучения $1,6 \times 10^{14}$ Вт см⁻². Диаметр лазерного пятна в плазме составлял 135 мкм. Было показано, что энергетический уровень 21,9 эВ соответствует семи-фотонному резонансу с возбуждающим лазерным фотоном длиной волны 400 нм. На рисунке 8б представлены спектры резонансной гармоник с использованием возбуждающих импульсов с длиной волны 400 нм и 860 нм. Можно видеть, что коротковолновый возбуждающий импульс обеспечивает более сильное усиление вблизи резонансного перехода по сравнению с длинноволно-

вым излучением накачки. Чтобы определить источник этого излучения вблизи энергетического уровня 21,9 эВ была измерена расходимость усиленной гармоник. Расходимость резонансной гармоник оказалась заметно меньше, чем расходимость линий излучения плазмы. Малая величина расходимости (2,23 мрад, рис. 8в) указывает на природу этого излучения как когерентного излучения.

Учитывая, что в настоящее время доступны лазерные источники с энергией фемтосекундных импульсов $\sim 0,5$ Дж, хорошая монохроматичность, демонстрируемая ЭУФ источником на основе ЛИП с коэффициентом преобразования 10^{-4} , может позволить в будущем использовать подобные когерентные импульсы в ультракоротковолновом диапазоне с энергиями, превышающими несколько десятков микроджоулей.

Подход к объяснению резонансного усиления гармоник высшего порядка в плазменных средах, использованный в работах [90, 92], был обобщен на случай бихроматического лазерного поля с ортогонально поляризованными компонентами [101]. В этой модели захват в автоионизационное состояние заменялся возбуждением из основного состояния, а интенсивность гармоник состояла как из резонансной, так и из нерезонансной составляющих. Для теоретического описания усиленной резонансом гармоник была использована модель переходов $1s-2p$ в водородоподобном атоме. Эта модель не может точно описать ионы плазмы, используемые в экспериментах, но она может служить качественным объяснением процесса резонансного усиления гармоник. Этот подход позволил проанализировать наиболее важную особенность данного явления, а именно увеличение интенсивности определенных порядков гармоник в каж-

дой рассматриваемой плазменной среде при перестройке длины волны лазерных импульсов вблизи некоторых ионных переходов.

Чтобы подтвердить экспериментальные данные, полученные в ходе исследований резонансного усиления одиночной гармоники в Мо плазме [102], было проведено численное моделирование методом согласованного поля [103]. Этот метод использовался также и для анализа резонансно усиленной гармоники в плазме, состоящей из ионов Mn^+ [104].

Приведённый анализ разработанных теорий усиления гармоник в условиях резонанса с ионными состояниями среды показывает, что большинство из них качественно соответствует опубликованным экспериментальным данным. Между тем, ни одна из предложенных теоретических моделей, предсказывающих резонансный эффект в процессе ГВГ, не смогла представить оценки количественного сравнения с экспериментальными данными.

Как уже упоминалось, ионные переходы, которые могут быть ответственны за вызванное резонансом усиление близлежащих гармоник, ранее исследовались различными спектральными методами. В литературе встречаются исследования ионных переходов, которые могут влиять на нелинейно-оптический отклик этих сред. Соответствующие ионные переходы и их gf были определены в ранних исследованиях этих плазменных формирований [99, 105–112]. В частности, спектры фотопоглощения и фотоионизации хрома в ЭУФ диапазоне, проанализированные в работе [108], продемонстрировали наличие сильных переходов Cr^+ , которые могут быть ответственны за поглощение некоторых гармоник в области длин волн 29,5–31 нм. Кроме того, в работе [111] были проанализированы $3p \rightarrow 3d$ переходы Cr^+ (27,6–28,2 нм) и определены наиболее сильные ионные переходы, которые могли бы усилить нелинейно-оптический отклик этой плазмы. Экспериментальные исследования ГВГ в плазме хрома [113] продемонстрировали подавление 27-й гармоники ($\lambda = 29,9$ нм) и усиление 29-й гармоники ($\lambda = 27,8$ нм), что подтверждает вышеупомянутые предсказания, а также теоретический анализ ГВГ в плазме хрома, приведённый в работе [101].

Специфическая структура спектров гармоник, получаемых в марганцевой плазме, ясно указывает на участие ионных переходов Mn в области 50–51 эВ. То же самое можно сказать и о характеристиках фотоионизации или фотопоглощения плазмы Mn^+ , которые обусловлены влиянием "гигантских" $3p-3d$ резонансов [99, 107].

Обратим внимание, что спектрометры ЭУФ излучения не позволяли определять ионные переходы, ответственные за усиление гармоник, поскольку излучение плазмы, связанное с этими переходами, не наблюдалось даже во время сильной абляции мишеней. В то же время, многочисленные исследования ГВГ в различных ЛИП показали, что наличие сильного плазменного излучения вблизи длин волн гармоник не коррелирует с их усилением. Иными словами, сильное излучение этих ионных переходов не обязательно приводит к усилению близлежащих гармоник, поскольку эти переходы могут обладать умеренным значением gf .

Усиление какой-либо конкретной гармоники может быть также связано с изменением показателя преломления плазмы в области аномальной дисперсии ионных переходов, что может создавать определённые условия

для согласования фаз волн какой-то конкретной гармоники и лазерного импульса. Встречаются также и другие объяснения резонансного усиления гармоник, которые в основном основаны на анализе микропроцессов.

Исследования показывают, что параметр gf в случае ионных переходов больше, чем в случае переходов в нейтральных атомах. Соответственно, для увеличения вероятности резонансного усиления в плазме предпочтительнее использовать ионизированную плазму, содержащую однозарядные ионы. Как уже упоминалось, некоторую информацию о параметре gf для ряда переходов в ЭУФ области можно найти в литературе. Однако эти данные доступны лишь для ограниченного числа элементов. В случае же плазмы, содержащей нейтральные атомы, усиление, обусловленное резонансным эффектом, оказывается в основном незначительным. Увеличение плотности потока ГИ может увеличить концентрацию ионов. В то же время, эта плотность потока должна быть оптимизирована таким образом, чтобы рост концентрации свободных электронов в плазме, наблюдаемый при более интенсивной абляции мишеней, не вызывал существенного рассогласования фаз между взаимодействующими волнами гармоник и лазерного излучения, приводящего к подавлению резонансного усиления отдельных компонент, наряду с общим снижением эффективности генерации остальных гармоник.

Спектроскопия фотопоглощения элементов в диапазоне 20–40 нм представляет собой довольно сложную задачу. Анализ этого процесса сообщался лишь в нескольких исследованиях ограниченного числа ионов. Убедительные доказательства участия ионных переходов в усилении отдельных гармоник были получены в нескольких исследованиях с использованием перестраиваемого лазерного излучения, которые позволили наблюдать рост и затухание определенной гармоники во время подстройки длины волны этого излучения к тому или иному ионному переходу в ЭУФ области.

5. Двухцветная и трёхцветная накачка плазмы

Первоначальное применение двух волн, взаимодействующих в нелинейно-оптической среде для улучшения характеристик генерируемых гармоник лазерных импульсов, было реализовано при преобразовании длины волны излучения в газовых средах. Для этих целей использовались титан-сапфировые лазеры с длиной волны излучения 800 нм и вторая гармоника (H2) этого излучения. Наиболее часто использовалась схема, включающая генерацию 400 нм излучения в отдельном канале с последующим смешиванием с основным излучением ($\lambda = 800$ нм) в газах [114–121]. Усиление ГВГ в случае ДЦН нелинейной среды обуславливалось формированием квазилинейного поля, выбором короткой траектории ускоренного электрона и более высокой скоростью ионизации по сравнению с ОЦН. При соответствующем регулировании относительной фазы между основным излучением и излучением H2, последнее поле увеличивает вклад короткой траектории ускоренного электрона, уменьшая при этом вклад длинной траектории электронов, что приводит к генерации "чистого" спектра гармоник.

Нарушение центросимметричности среды (и, как следствие, возникновение чётных гармоник) в неодно-

цветных полях может быть связано с разными причинами. Добавление внешних полей может влиять на генерацию чётных гармоник. В случае гармоник низкого порядка это связано с нарушением пространственной симметрии атомного потенциала, а в случае высоких гармоник — с изменением симметрии временной формы ИК-поля, что влияет на условия интерференции сверхкоротких импульсов.

Этот подход был использован и для генерации гармоник в лазерной плазме. Первое наблюдение повышения эффективности преобразования гармоник в узких (длиной $\sim 0,3$ мм) плазменных формированиях при облучении их интенсивным двухцветным фемтосекундным лазерным лучом, в котором основное поле и его слабый компонент (Н2 при соотношении энергий 25:1) были ортогонально поляризованы относительно друг друга, сообщалось в работе [122]. Эти и последующие исследования показали преимущества ДЦН по сравнению с ОЦН при генерации гармоник в плазме.

Ниже мы обсудим мотивацию использования этого метода. ДЦН в газах с использованием относительно длинных импульсов изучалась как теоретически [123], так и экспериментально [124, 125]. Наиболее интересной особенностью этих исследований было появление гармоник чётного порядка в дополнение к обычным нечётным порядкам, что объяснялось нарушением пространственной симметрии при взаимодействии излучения с веществом. Генерация чётных и нечётных гармоник, а также значительное увеличение энергии гармоник, были продемонстрированы в целом ряде исследований ГВГ и в случае плазменных сред.

Как было показано в разделе 2, наиболее часто используемым методом формирования схемы ДЦН в плазме была установка нелинейного кристалла внутри вакуумной камеры между фокусирующей линзой и ЛИП. Простота установки кристалла ВВО на пути прохождения сфокусированных импульсов длиной волны 800 нм или 1300 нм для генерации Н2 имеет в то же время недостаток по сравнению со способом, когда два импульса (основное излучение и его вторая гармоника) объединяются друг с другом с использованием двух каналов схемы Майкельсона. Последняя схема обеспечивает точное наложение двух импульсов в нелинейной среде (газе или плазме). В случае же первой схемы, использовавшейся в большинстве опубликованных исследований генерации гармоник в плазме, точное совпадение максимумов распределений интенсивности двух импульсов не соблюдалось. Между тем, эти исследования показали, что точное перекрытие двух импульсов накачки не является строгим требованием для эффективной генерации чётных и нечётных гармоник, что позволяет применять гораздо более простую конфигурацию ДЦН в плазме. Толщина ВВО (0,4 мм) была выбрана с использованием расчётов, приведённых в [122]. Эти расчёты определили "оптимальную толщину" нелинейного кристалла, обеспечивающую максимальное перекрытие импульсов с длинами волн 400 нм и 800 нм в нелинейной среде.

Маленькая задержка между преобразуемым импульсом и его Н2 в случае ближнего инфракрасного (БИК) излучения позволяет генерировать нечётные и чётные гармоники примерно одинаковой интенсивности. В частности, задержка между максимумами двух преобразуемых импульсов (БИК и его второй гармоники) продолжительностью 70 фс, равная 44 фс, не влияла существенно

на эффективность ГВГ в этой схеме ДЦН. Относительно небольшая эффективность преобразования в случае сфокусированных БИК импульсов, проходящих через ВВО (до 10 %), также не препятствовала генерации нечётных и чётных гармоник одинаковой интенсивности. Таким образом, используемая схема ДЦН показала превосходные возможности в генерации равных по интенсивности нечётных и чётных гармоник.

В случае ДЦН (800 нм и 400 нм) сравнительно низкие чётные порядки гармоник, ассоциируемые с влиянием слабого (400 нм) поля, часто оказываются сильнее, чем нечётные порядки. Это означает, что импульсы с длиной волны 400 нм были достаточно сильными, чтобы генерировать свои нечётные гармоники, которые становились сильнее, чем $2n + 1$ (нечётные) гармоники (например, 17-я, 19-я, 21-я, 23-я, 25-я и т.д.), ассоциируемые с 800 нм излучением. Высокая интенсивность гармоник, генерируемых более слабой 400 нм накачкой, по сравнению с гармониками, генерируемыми более интенсивной ($\sim 16\times$) 800 нм накачкой, обусловлена сильной зависимостью интенсивности гармоник от длины волны преобразуемого излучения ($I_H \propto \lambda^{-5}$, [126]).

Здесь следует прояснить ситуацию, связанную с генерацией $4(n + 1)$ гармоник (Н4, Н8, Н12, Н16, ...). Они появляются в результате перекрытия импульсов 800 и 400 нм во времени и пространстве при прохождении через плазму. Перекрытие двух пучков в плазме обеспечивается установкой тонкого кристалла после фокусирующей линзы. При этом устраняется проблема пространственной отстройки пучка второй гармоники относительно пучка основного излучения. Временное перекрытие импульсов обеспечивается использованием тонкого нелинейного кристалла. При этом задний фронт второй гармоники частично перекрывается с передним фронтом 800 нм импульса.

Установка тонкого кристалла ВВО внутри вакуумной камеры на пути сфокусированного луча не приводит к пространственному расхождению двух пучков на длинах волн 800 нм и 400 нм, что позволяет им оптимально перекрываться в объёме плазмы. Между тем, перекрытие импульсов с длинами волн 800 нм и 400 нм во времени после прохождения ВВО сильно зависит от толщины этого нелинейного кристалла. Каждые 0,1 мм кристалла ВВО приводят к задержке максимума импульса с длиной волны 800 нм на 19 фс по отношению к максимуму импульса с длиной волны 400 нм из-за дисперсии групповой скорости в этом кристалле. В случае кристалла ВВО толщиной 0,4 мм задержка между лазерным излучением (800 нм) и его второй гармоникой составляет 76 фс. Таким образом, только часть переднего фронта импульса с длиной волны 800 нм перекрывается с задним фронтом импульса с длиной волны 400 нм, принимая во внимание длительность самих импульсов (65 фс) и небольшую эффективность преобразования во вторую гармонику ($\sim 6\%$). При этом эффективность генерации гармоник, возникающих в результате совместного взаимодействия этих двух волн в ЛИП, становится меньше по сравнению с эффективностью гармоник, возникающих при использовании лишь излучения с длиной волны 400 нм. Как уже упоминалось, меньшая дисперсия групповой скорости в ВВО в случае импульсов БИК области, в частности, на длине волны 1300 нм, приводит к значительно меньшей задержке между этим излучением и его второй гармоникой (11 фс на каждые 0,1 мм кри-

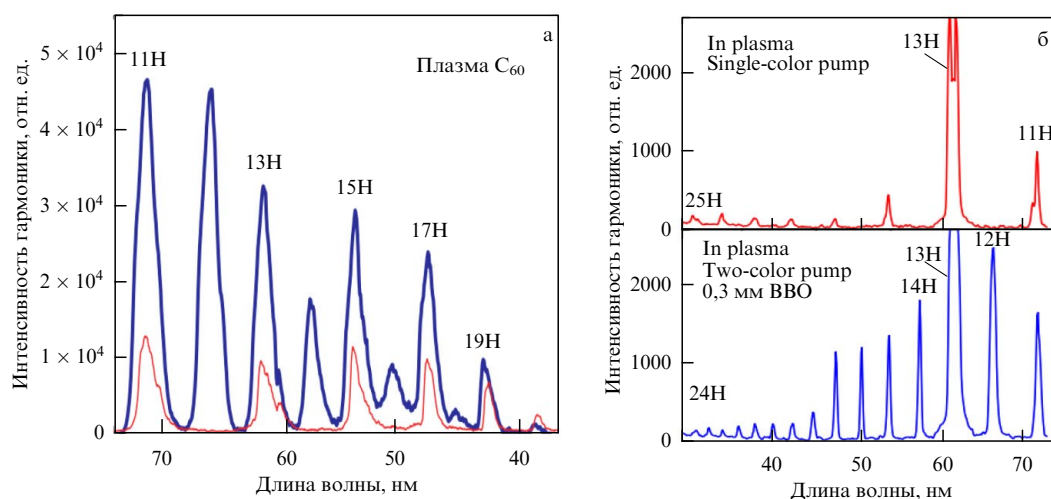


Рис. 9. (а) Спектры гармоник, генерируемых в плазме, содержащей фуллерены. Тонкими и толстыми линиями показаны спектры гармоник в случае ОЦН и ДЦН [127]. Воспроизведено с разрешения American Physical Society. (б) Спектры гармоник в In плазме, полученные с помощью ОЦН (верхняя панель) и ДЦН с использованием кристалла ВВО длиной 0,3 мм (нижняя панель) [128]. Воспроизведено с разрешения © Optica Publishing Group.

сталла). Эта меньшая задержка и большая эффективность преобразования во вторую гармонику обеспечивают достаточное перекрытие 1300 нм и 650 нм волн в плазме и сравнительное равенство интенсивностей нечётных и чётных гармоник.

Пример спектров гармоник в случае схем ОЦН и ДЦН плазмы, содержащей фуллерены, приведён на рис. 9а [127]. Во втором случае значительное (в два–три раза) усиление нечётных гармоник сопровождалось генерацией чётных гармоник. При добавлении дополнительного поля к основному полю результирующие спектры гармоник приобретают множество новых особенностей. Следует отметить, что, в случае плазмы, сравнительные эксперименты по ГВГ с использованием параллельных и ортогональных по поляризации волн основного излучения и второй гармоники сообщались в работе [122]. Было показано, что эффективности ГВГ в этих двух случаях сравнимы друг с другом. Данные конфигурации ДЦН использовались и в случае газовых сред. В частности, схемы с ортогонально и параллельно поляризованными волнами исследовались в работе [125].

Усиление одиночной гармоники в условиях резонанса с сильными ионными переходами в случае протяжённой плазмы в условиях ДЦН было продемонстрировано в случае In ЛИП. Как уже упоминалось в разделе 5, эта плазма позволяет генерировать чрезвычайно сильную 13-ю гармонику излучения титан-сапфирового лазера, о чем сообщалось в ряде исследований, проведенных в различных лабораториях с использованием 0,3–0,5 мм ЛИП. В исследовании с использованием протяжённой индиевой плазмы [128] сильная 13-я гармоника также наблюдалась во время экспериментов с ОЦН (рис. 9б, верхняя панель). Сравнительно равные по интенсивности нечётные и чётные гармоники, генерируемые в плазме индия (за исключением 13-го порядка), стали характерной чертой этого процесса, как только для генерации второй гармоники был использован кристалл ВВО длиной 0,3 мм (рис. 9б, нижняя панель).

Обратим внимание, что в большинстве ранее обсуждавшихся схем ДЦН использовались так называемые со-

размерные (commensurate) волны (т.е. излучения, длины волн которых представляли собой некоторые целые числа по отношению друг к другу, например, волны 800 нм и 400 нм). Между тем, применение несоизмеримых (incommensurate) волн для ГВГ в газах также показало преимущества в достижении большей интенсивности преобразованного излучения по сравнению с ОЦН, и наряду с этим позволило продемонстрировать генерацию отдельных аттосекундных импульсов от преобразуемых импульсов со сравнительно большой длительностью [129–131]. Привлекательность этого подхода была связана с (а) наличием подобных лазерных источников с длительностями импульсов порядка 40 фс во многих лабораториях и (б) попытками преодолеть ограничения в генерации одиночных аттосекундных импульсов с использованием лишь исключительно импульсов продолжительностью в несколько циклов световых колебаний. В частности, было показано, что ДЦН, использующая излучение в инфракрасной области и излучение титан-сапфирового лазера, значительно снижает требования к лазерам, применяемым для генерации наиболее коротких аттосекундных импульсов в процессе ГВГ [132].

Применение несоизмеримых двухцветных источников для ГВГ также имеет другое преимущество. Этот способ позволяет значительно увеличить количество параметрических компонентов преобразованного излучения, т.е. суммарных и разностных составляющих взаимодействующих волн, что, в свою очередь, может привести к наблюдению усиления отдельных составляющих этих многочастотных источников ЭУФ излучения вследствие резонансов с ионными переходами. Этот процесс связан с совпадением длины волны какой-то суммарной или разностной волны с ионными переходами различных материалов, обладающими большими значениями gf . С этой точки зрения, использование ДЦН, включающего БИК излучение ПУС и излучение с длиной волны 800 нм, распространяющиеся через ЛИП, могут дать определённые преимущества по сравнению с классической схемой ДЦН, использующей излучение ПУС и его второй гармоники.

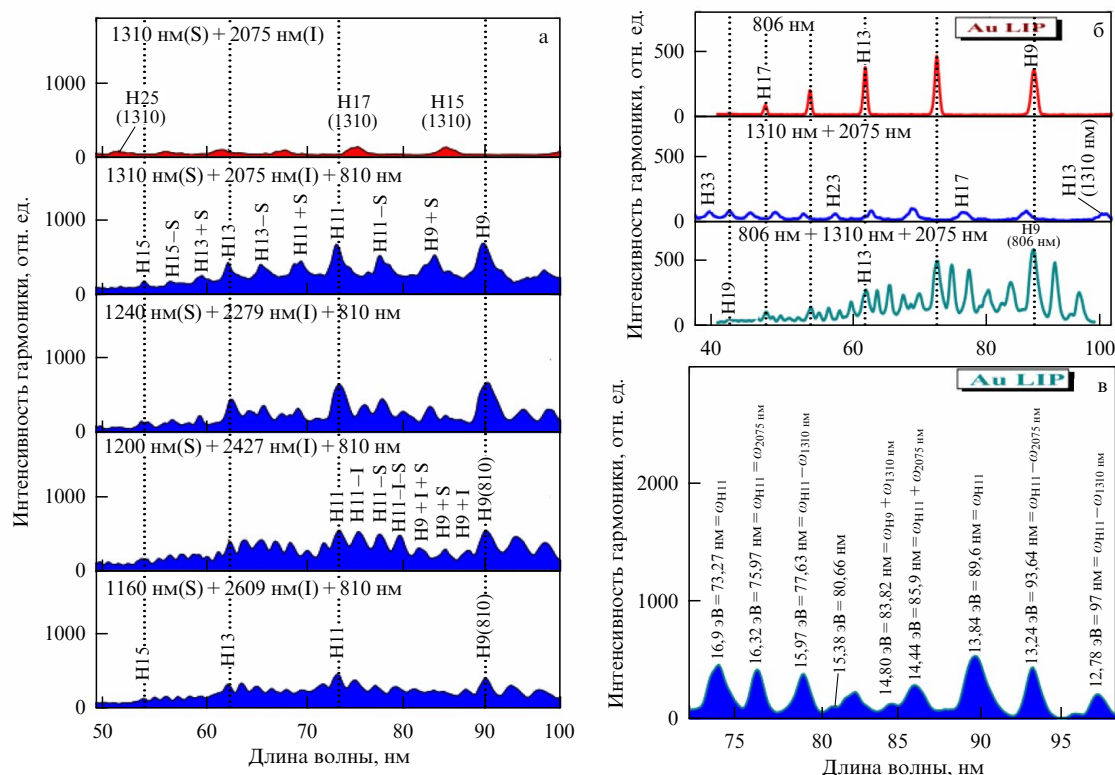


Рис. 10. Двухцветная и трёхцветная накачки углеродной плазмы. (а) Спектры гармоник углеродной плазмы в случаях импульсов сигнальной волны (S, 1310 нм) и холостой волны (I, 2075 нм, верхняя панель), импульсов с длинами волн 1310, 2075 и 810 нм в условиях совпадения импульсов волн 1310 и 810 нм накачек (вторая панель), а также импульсов 810 нм накачки и спектрально перестраиваемых импульсов сигнальной и холостой волн (три нижние панели). Пунктирные линии соответствуют нечётным гармоникам (H9–H15) 810 нм накачки. На четвёртой панели отмечены суммарная и разностная составляющие генерируемых частот в ЭУФ области между 9-й и 11-й гармониками 810 нм излучения [133]. Воспроизведено с разрешения © Optica Publishing Group. (б) Спектры гармоник, генерируемых в плазме золота в случае ОЦН (806 нм, верхняя панель), ДЦН (1310 нм + 2075 нм, средняя панель) и трёхцветной накачки (806 нм + 1310 нм + 2075 нм, нижняя панель). Пунктирными линиями отмечены нечётные гармоники накачки с длиной волны 806 нм. (в) Определение суммарных и разностных частот, генерируемых в процессе трёхцветной накачки и представленных на нижней панели рис. 10б в диапазоне 70–100 нм [134]. Воспроизведено с разрешения © Optica Publishing Group.

Помимо ДЦН, возможно использование и трёхцветной накачки плазмы, которая также может значительно увеличить количество генерируемых компонентов в ЭУФ области [133, 134]. На верхней панели рис. 10а приведён спектр гармоник, генерируемый в случае ОЦН графитовой плазмы с использованием сигнальной волны ПУС (S; длина волны 1310 нм, энергия импульса 1,2 мДж) [133]. Слабая холостая волна ПУС (I; длина волны 2075 нм, энергия импульса 0,3 мДж) также была представлена в ЛИП. Однако её влияние было незначительным из-за меньшей энергии импульса и вышеупомянутого правила зависимости эффективности преобразования в гармоники от длины волны преобразуемого излучения. Вследствие этого, гармоники, а также суммарные и разностные частоты, соответствующие этому слабому излучению в использованных условиях, не были представлены в ЭУФ спектре. Добавление второго поля (810 нм, 3 мДж), согласованного по времени с сигнальной волной (1310 нм), привело к значительному увеличению общего количества гармоник и появлению многочисленных суммарных и разностных частотных составляющих (вторая панель сверху). Пунктирными линиями на этом и других графиках показаны гармоники, соответствующие нечётным гармоникам от излучения с длиной волны 810 нм (от H9 до H15). При этом можно видеть появление двух частотных составляющих между каждой

парой соседних нечётных гармоник накачки на 810 нм $[H(810 \text{ нм}) \pm S]$.

Как только излучение ПУС было перестроено с 1310 нм в коротковолновую область (~ 1200 нм), то наблюдалось заметное отклонение от приведённого выше описания генерируемых частот. В этих условиях стало возможным генерировать набор кратных суммарных и разностных волн. На трёх нижних панелях рис. 10а приведены спектры, полученные с использованием сигнальных импульсов с длинами волн 1160, 1200 и 1240 нм, смешанных с 810 нм импульсами. Так, в случае ДЦН с длинами волн 1200 нм и 810 нм между каждой нечётной гармоникой излучения титан-сапфирового лазера наблюдалось появление нескольких дополнительных промежуточных частот. Разница энергий между этими компонентами составляла $\sim 0,5$ эВ, что приблизительно соответствовало энергии слабого фотона холостой волны ($\lambda = 2427$ нм), также присутствующего в плазме наряду с сигнальной волной и излучением с длиной волны 810 нм. Эта слабая волна может быть ответственна за появление наблюдавшихся дополнительных компонентов с учётом частичного перекрытия импульсов 810 нм накачки и двух инфракрасных импульсов (1200 нм и 2427 нм). Появляющиеся частотные составляющие между H9 и H11 гармониками 810 нм излучения отмечены на четвёртой панели рис. 10а. Эти исследования выявили участие трёх волн в

параметрической генерации когерентного ЭУФ излучения. Следует отметить значительную разницу в энергиях использовавшихся волн накачек, помимо неоптимального перекрытия этих импульсов в ЛИП. Тем не менее, даже в таких условиях были достигнуты сопоставимые по энергиям компоненты генерируемых волн в ЭУФ области (две нижние панели на рис. 10а).

Другой пример трёхцветной накачки ЛИП показан на рис. 10б и в, где представлены спектры гармоник, а также суммарных и разностных частот, генерируемых в золотой плазме в диапазоне 40–100 нм [134]. На верхней панели рис. 10б показан спектр нечётных гармоник, когда в качестве преобразуемого излучения использовалось лишь излучение с длиной волны 806 нм. Спектральное распределение в этом случае характеризовалось обычным снижением интенсивности гармоник с ростом их порядка от одиннадцатой (Н11) до девятнадцатой (Н19) гармоники. Использование ДЦН с использованием сигнальных и холостых несозмеренных волн от ПУС (1310 нм и 2075 нм) позволило генерировать только нечётные гармоники излучения с длиной волны 1310 нм, поскольку интенсивность этого излучения была в несколько раз выше, чем у импульсов с длиной волны 2075 нм (средняя панель на рис. 10б).

Одновременное применение трёх волн (806, 1310 и 2075 нм) значительно изменило характер генерируемого излучения (рис. 10б, нижняя кривая). Нечётные гармоники излучения с длиной волны 806 нм по-прежнему доминировали в этом спектре из-за более высокой интенсивности и меньшей длины волны этих импульсов. Между тем, нечётные гармоники излучения с длиной волны 1310 нм исчезли из этого спектра. В то же время, между нечётными гармониками излучения с длиной волны 806 нм генерировались несколько дополнительных спектральных составляющих. При этом также наблюдался небольшой рост интенсивности и самих нечётных гармоник от 806 нм накачки в длинноволновой ЭУФ области (рис. 10б, нижняя кривая) по сравнению со случаем ОЦН (рис. 10б, верхняя кривая).

Подробный анализ частот этих эмиссионных линий представлен на рис. 10в, где показан детальный спектр нижней кривой, представленной на рис. 10б в диапазоне от 70 до 100 нм. Линии излучения вблизи Н9 представляют собой разностные частоты ($\omega_{Н9} - \omega_{2075 \text{ нм}}$ и $\omega_{Н9} - \omega_{1310 \text{ нм}}$) и суммарные частоты ($\omega_{Н9} + \omega_{2075 \text{ нм}}$ и $\omega_{Н9} + \omega_{1310 \text{ нм}}$). Здесь $\omega_{Н9}$, $\omega_{2075 \text{ нм}}$ и $\omega_{1310 \text{ нм}}$ соответствуют частотам трёх источников накачки золотой плазмы. Аналогичная группа частот появилась вблизи каждой нечётной гармоники. В частности, на этом графике показаны разностные частоты ($\omega_{Н11} - \omega_{2075 \text{ нм}}$ и $\omega_{Н11} - \omega_{1310 \text{ нм}}$) по отношению к одиннадцатой гармонике. Тут следует добавить, что наблюдавшиеся в этих исследованиях суммарные и разностные компоненты, содержащие частоты 2075 нм излучения, не наблюдались в случае углеродной плазмы (рис. 10а, вторая панель сверху). Это, по всей видимости, было обусловлено более сильным нелинейно-оптическим откликом золотой плазмы, а также лучшим перекрыванием трёх волн в ЛИП.

Стрелка на рис. 10в показывает излучение, связанное со слабым трёхфотонным взаимодействием. Это излучение ($\lambda = 80,66 \text{ нм}$) может соответствовать двум процессам — генерации суммарной частоты ($\omega_{Н9} + \omega_{1310 \text{ нм}} + \omega_{2075 \text{ нм}}$) и генерации разностной частоты ($\omega_{Н11} - \omega_{1310 \text{ нм}} - \omega_{2075 \text{ нм}}$), которые практически совпадают друг с дру-

гом. Отметим, что эта длина волны ($\lambda = 80,66 \text{ нм}$) совпадает с четной (10-й) гармоникой излучения с длиной волны 806 нм.

6. Квазифазовое согласование нескольких гармоник в различных спектральных диапазонах

Как уже упоминалось, рост концентрации свободных электронов в плазме препятствует эффективной генерации гармоник из-за самомодуляции фазы фемтосекундного импульса и несовпадения фаз взаимодействующих волн накачки и гармоник при прохождении определённого расстояния внутри ЛИП. Эти ограничения имеют первостепенное значение для гармоник высших порядков, которые исчезают из спектров генерации даже при относительно небольших концентрациях свободных электронов. Соответственно, все представленные выше эксперименты проводились в условиях плазмы низкой плотности ($\sim 2 \times 10^{17} \text{ см}^{-3}$). Плотность энергии ГИ, использовавшихся в этих исследованиях, была ограничена с целью создания ЛИП, содержащей $\sim 10\%$ свободных электронов от концентрации в плазме (т.е. $\sim 2 \times 10^{16} \text{ см}^{-3}$). Эта концентрация свободных электронов не оказывает существенного влияния на условия фазового согласования в ЛИП. В то же время концентрация атомов и однозарядных ионов является достаточной для достижения относительно высоких значений эффективности преобразования в ЭУФ излучение и генерации как можно более высокого порядка гармоник в различных плазменных формированиях.

Большинство исследований гармоник в ЛИП проводилось с использованием узких плазменных струй ($\leq 0,4 \text{ мм}$). В то же время можно было бы ожидать, что применение протяжённой плазмы позволит ещё больше повысить эффективность преобразования в гармоники вследствие квадратичной зависимости нелинейно-оптического отклика среды от её длины [67]. Для создания протяжённой зоны абляции на поверхности мишени необходимо тщательно выбирать условия формирования плазмы. Поглощение ЭУФ излучения в протяжённой плазме может препятствовать увеличению эффективности ГВГ. Свободные электроны в протяжённых плазменных формированиях могут привести к росту рассогласования между преобразуемой волной и преобразованными волнами при прохождении лазерного импульса через подобную среду по сравнению со случаем узкого плазменного факела. Одним из способов преодоления этого препятствия является разделение протяжённой плазмы на группу небольших струй с помощью многоцелевой маски для создания условий квазифазового согласования взаимодействующих волн.

Ряд исследований показал, что в условиях КФС можно добиться усиления гармоник, если использовать многоструйную плазму, помещая ММ перед аблируемой поверхностью [135]. Заметим, что формирование условий КФС в лазерной плазме является более сложной задачей по сравнению с газовыми средами из-за проблем, связанных с точным контролем концентрации ионов и электронов в зоне взаимодействия.

Новаторское исследование КФС в плазме [135] выявило материалы для эффективного усиления различных групп гармоник высокого порядка. Помимо серебра, такие материалы, как индий и хром, позволили реализо-

вать КФС в плазме этих металлов. Данные материалы характеризуются возможностью генерации гармоник достаточно высокого порядка. Отметим, что даже генерация слабых гармоник более высокого порядка в этих средах является достаточным условием для наблюдения их усиления в условиях КФС, когда выполняется согласование групповых скоростей возбуждающей и преобразованных волн.

Схема КФС описана в разделе 2 (рис. 1г). Важной особенностью этих исследований является выбор количества создаваемых плазменных струй на поверхности мишеней, позволяющих наблюдать эффект КФС. Очевидно, что существует определённый оптимум в использовании различного количества таких струй для ГВГ. Небольшое количество струй не позволяет продемонстрировать значительное усиление группы гармоник в связи с недостаточно оптимальным созданием условий фазового синхронизма. Большое количество плазменных струй, отделённых друг от друга на определённом расстоянии, может привести к обратному эффекту — уменьшению коэффициента усиления из-за увеличивающегося фазового рассогласования, возникающего из-за различных дополнительных факторов, влияющих на этот процесс. Подробный анализ интенсивности усиленных гармоник в зависимости от количества плазменных струй сообщался в работах [136, 137].

Суть реализации КФС может быть представлена следующим образом. Распространение преобразуемого импульса через протяжённую среду приводит к условиям, при которых фазовый сдвиг между волнами становится близким к π на определенном расстоянии от начала среды, определяемом как длина когерентности ($L_{\text{coh}} = \pi/\Delta k$). Здесь Δk — это разница между волновыми векторами возбуждающего поля и некоторым порядком гармоник. С этого расстояния, вновь генерируемые ЭУФ фотоны, находящиеся в противофазе с ранее генерированными фотонами, компенсируют их, приводя к падению эффективности ГВГ.

Чтобы уменьшить этот ограничивающий фактор, необходимо изменить разницу между фазами взаимодействующих волн таким образом, чтобы модификация среды привела к созданию условий, при которых процессы обратной перекачки энергии гармоник в энергию преобразуемого излучения были минимизированы. Одним из таких способов является разделение протяжённой среды на отдельные части. КФС для q -й гармоники при этих условиях может быть реализовано при фиксированном произведении $q \times N_e$ (поскольку $L_{\text{coh}} \propto (q \times N_e)^{-1}$ [138], здесь N_e — концентрация свободных электронов в плазме). Фазовое рассогласование, вызванное электронами плазмы, значительно больше (порядка $\sim 100 \text{ см}^{-1}$ для тридцатых гармоник) по сравнению с тремя другими компонентами, которые вносят вклад в общее фазовое рассогласование между возбуждающей волной и волнами гармоник. К ним относятся атомная и ионная дисперсия, фазовый сдвиг Гуи и динамический фазовый сдвиг, зависящий от интенсивности.

Очевидно, что при сильной абляции можно получить большее количество атомов и ионов в плазме и, соответственно, увеличить количество эмиттеров гармоник, что должно привести к росту эффективности ГВГ. Чтобы при этом преодолеть влияние свободных электронов, в избытке появляющихся при подобных неоптимальных

условиях формирования ЛИП, в случае формирования протяжённой плазмы можно использовать принцип КФС. Применительно к описываемой ситуации, тут может быть использован принцип разделения протяжённой и сравнительно плотной плазмы, содержащей достаточно большие концентрации атомов и ионов (порядка 10^{18} см^{-3}) и электронов (порядка $5 \times 10^{17} \text{ см}^{-3}$), на группу узких плазменных струй. Поскольку в этом случае длина когерентности для определённой гармоники станет сопоставимой с длиной каждого из этих узких плазменных факелов, данная конфигурация подобного плазменного формирования позволит достичь эффективного усиления этой и близлежащих гармоник путём накопления количества преобразованных ЭУФ фотонов при прохождении лазерного импульса через каждую из разделённых струй.

Ниже мы приведём несколько примеров КФС в плазме, реализованных на практике. На рисунке 11а показаны два спектра гармоник с использованием ДЦН ($1310 \text{ нм} + 655 \text{ нм}$) в случае серебряной плазмы, полученной при достаточно большой плотности энергии ГИ равной $F = 1,0 \text{ Дж см}^{-2}$ [139]. Толстой красной кривой показан спектр гармоник, полученный в протяжённой плазме длиной 5 мм. Подобная картина спектра постепенно уменьшающихся гармоник, начиная с 15-го по 46-й порядок, характерна для обычного платообразного распределения генерируемого излучения. Следует отметить, что максимальный порядок гармоник (Н46) в условиях подобной плотной плазмы, возникающей при указанной плотности энергии ГИ, значительно уступает аналогичному параметру для случая "оптимальной" ЛИП (Н59), содержащей меньшее количество частиц, как атомов и ионов, так и электронов.

После того, как эта протяжённая плазма была разделена с помощью введения ММ между цилиндрической линзой и мишенью на группу из 8 струй, разделённых друг от друга расстоянием в 0,3 мм, спектр гармоник претерпевал значительное изменение (тонкая синяя кривая). Группа гармоник, сосредоточенных вблизи Н39, была существенно усилена по сравнению с более низкими порядками. Коэффициент усиления составлял от 10 до 30 для максимально усиленных гармоник по сравнению с теми же гармониками, полученными в протяжённой плазме. Отметим, что данный эффект чрезвычайного изменения процесса преобразования в гармоники наблюдался путём простого введения многослойной маски перед мишенью без каких-либо иных изменений параметров эксперимента.

Определение максимально усиленной гармоники основывается на расчёте её длины когерентности. Фазовое рассогласование q -й гармоники, вызванное дисперсией групповых скоростей взаимодействующих волн, определяется соотношением $\Delta k_{\text{disp}} = qN_e e^2 \lambda / 4\pi m_e \epsilon_0 c^2$, где λ — длина волны возбуждающего излучения, m_e и e — масса и заряд электрона, c — скорость света и ϵ_0 — диэлектрическая проницаемость вакуума. Длина когерентности этой гармоники без учёта других процессов, ведущих к фазовой расстройке, равна $L_{\text{coh}} = \pi/\Delta k \approx \pi/\Delta k_{\text{disp}} = 4\pi^2 m_e \epsilon_0 c^2 / qN_e e^2 \lambda$. Исходя из этого соотношения длина когерентности (в мм) для гармоники, максимально усиленной за счёт КФС (q_{qpm}), в условиях использования лазера с длиной волны 1300 нм может быть представлена как $L_{\text{coh}} \approx 1,1 \times 10^{18} / N_e \times q_{\text{qpm}}$. Эта простая формула позволяет определить плотность электро-

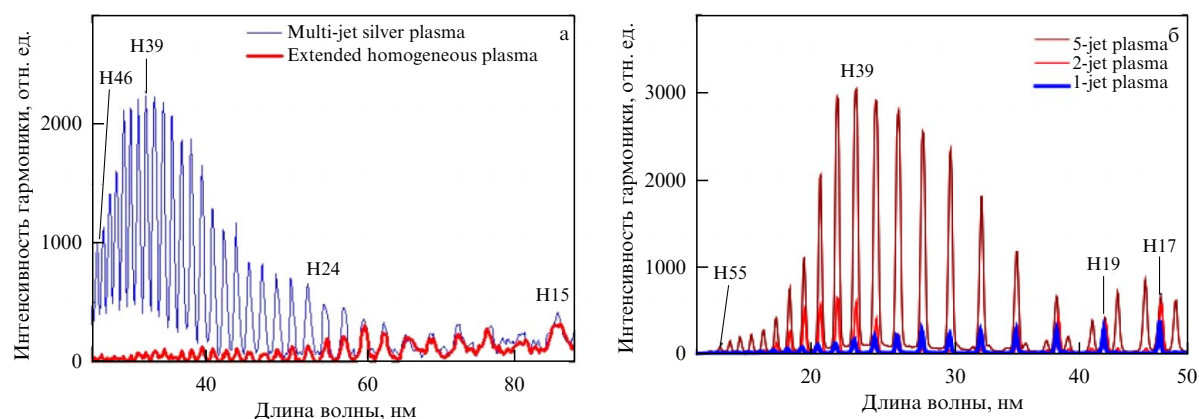


Рис. 11. (а) Спектры гармоник протяжённой однородной Ag плазмы (толстая красная кривая) и многоструйной Ag плазмы (тонкая синяя кривая), полученные с помощью ДЦН (1310 нм + 655 нм) [139]. Воспроизведено с разрешения © Optica Publishing Group. (б) Спектры гармоник фемтосекундного излучения с длиной волны 806 нм, полученные в серебряных плазменных структурах, содержащих различное количество струй. Линии вблизи H17 и H19 соответствуют дифракциям второго порядка усиленных гармоник [140]. Воспроизведено с разрешения © Optica Publishing Group.

нов, зная длину когерентности, которая фактически является размером одиночной плазменной струи (l_{jet}) в условиях КФС в многоструйной структуре, и максимально усиленный порядок гармоник. Уменьшение плотности энергии ГИ на поверхности мишени должно приводить к уменьшению N_e из-за меньшего количества электронов, индуцированных абляцией и туннелированием, что приводит к перестройке q_{qpm} в область более коротких длин волн. Аналогичным образом можно ожидать, что для плазменных струй различных размеров максимально усиленные гармоники также будут распределены по ЭУФ спектру. Соответствующее соотношение ($q_{\text{qpm}} \approx 1,1 \times 10^{18} / l_{\text{jet}} \times N_e$), подтверждающее данную зависимость взято из приведённой выше формулы, предполагающей равенство длины одиночной струи и длины когерентности соответствующей гармоники, демонстрирующей наибольшее усиление, вызванное КФС.

Чтобы показать роль КФС в наблюдаемых особенностях спектров гармоник, была исследована вариация интенсивности гармоник в зависимости от количества плазменных струй. Подобный эксперимент позволяет подтвердить роль когерентного накопления фотонов гармоник при прохождении всей длины перфорированной нелинейно-оптической среды, поскольку характерной особенностью КФС является квадратичный рост интенсивности гармоник с увеличением числа (n) когерентных зон, вносящих вклад в общую интенсивность того или иного порядка гармоник. С этой целью количество зон абляции на поверхности мишени последовательно экранировалось для создания разного количества плазменных струй.

На рисунке 11б показаны три спектра генерируемых гармоник в случае 1-, 2- и 5-струйной серебряной плазмы с использованием 806 нм импульсов и аналогичных условий нагревающего излучения [140]. Ожидаемая платообразная форма распределения гармоник от одиночной плазменной струи длиной 0,3 мм была аналогична той, которая наблюдалась в случае протяжённой плазмы длиной 5 мм. С добавлением каждой следующей струи спектральная огибающая заметно изменялась: интенсивность 35-й гармоники в случае пятиструйной конфигурации становилась почти в 20 раз сильнее по сравнению со случаем одноструйной плазмы. Отметим, что при этом

можно было бы ожидать увеличения интенсивности этой гармоники в n^2 раз для конфигурации с плазмой, состоящей из n струй, по сравнению с одиночной струей при условии, когда рассогласование фаз взаимодействующих волн будет полностью устранено. Эта оценка даёт ожидаемый коэффициент усиления 25 в случае пятиструйной среды по сравнению с одноструйной плазмой длиной 0,3 мм, что было близко к экспериментально измеренному коэффициенту усиления ($20\times$). При этом максимальный коэффициент усиления гармоники может уменьшаться по сравнению с идеальным соотношением $I_h \propto n^2$ в условиях, когда определённую роль начинают играть процессы поглощения ЭУФ излучения, либо в случае неоднородных струй, которые могут формироваться из-за неоднородного процесса абляции вдоль протяжённой мишени [136].

7. Эффективная генерация гармоник ультракороткими лазерными импульсами в плазменных факелах, содержащих наночастицы и квантовые точки

Эксперименты по преобразованию лазерного излучения в ЭУФ диапазон в газовых кластерах и НЧ, находящихся в ЛИП продемонстрировали рост эффективности этого процесса по отношению к атомным или ионным частицам той же элементной консистенции. Как отмечалось в разделе 3, качественным объяснением этого эффекта является увеличение поперечного сечения рекомбинации ускоренного электрона в случае более крупных частиц. Другим механизмом является вызванный квантовым ограничением рост локального поля в подобных частицах, которое эффективно взаимодействует с лазерным полем. Квантовое ограничение оказывает значительное влияние на электронно-зонную структуру и оптические свойства наноразмерных материалов. Квантовое ограничение относится к явлению, при котором движение носителей заряда, таких как электроны или дырки, ограничено областью пространства, которая меньше их длины волны. Подобное ограничение возникает в наноразмерных структурах, таких как полупроводниковые или металлические НЧ или КТ, где размеры структуры сравнимы с длиной волны де Бройля носителей заряда

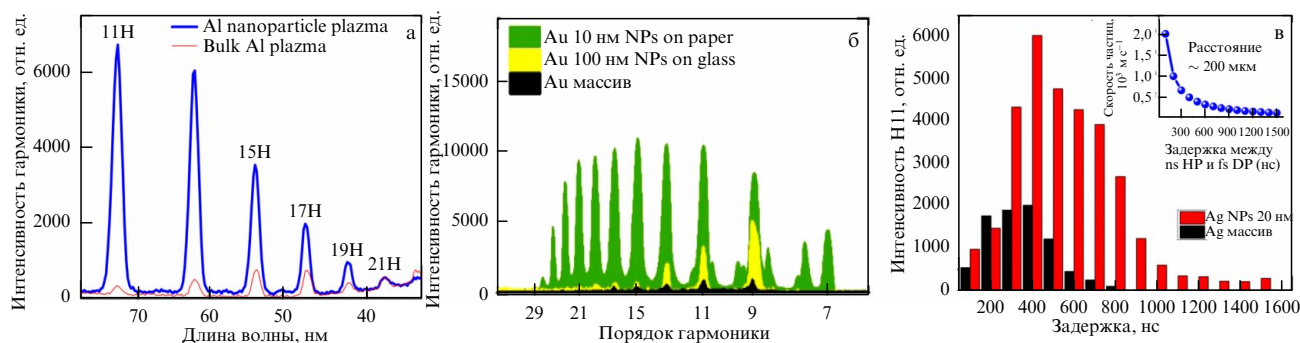


Рис. 12. (а) Спектры гармоник, полученные в плазме образованной на алюминиевой мишени (тонкая красная кривая) и мишени, содержащей НЧ алюминия (толстая синяя кривая) [141]. Воспроизведено с разрешения SPRINGER-VERLAG BERLIN/HEIDELBERG. (б) Сравнительные спектры гармоник для различных задержек между ГИ и преобразуемыми импульсами (Δt) в случаях абляции Au мишени ($\Delta t = 200$ нс), 100 нм НЧ золота, помещённых на поверхность стеклянной подложки ($\Delta t = 200$ нс) и 10 нм НЧ золота, помещённых на поверхность бумаги ($\Delta t = 350$ нс) [142]. Воспроизведено с разрешения MDPI. (в) Зависимость H11 от задержки между ГИ и преобразуемым импульсом в случае абляции серебра (чёрный столбец) и 20 нм наночастиц серебра (красный столбец) [76]. Воспроизведено с разрешения AIP Publishing.

или меньше её. В связи с этим, КТ с размерами 2–6 нм, которые относятся к промежуточному диапазону между кластерами (0,2–1 нм) и НЧ (15–100 нм), могут рассматриваться как достаточно эффективные излучатели гармоник среди этих трёх групп малоразмерных агрегатов. В случае НЧ только поверхностные атомы активно участвуют в ГВГ, поскольку внутренние атомы вряд ли можно рассматривать в качестве эффективных излучателей гармоник из-за эффектов поглощения и экранирования. Что касается кластеров, содержащих до 1000 атомов, то их количество заметно меньше, чем количество излучателей в случае КТ (10^5 – 10^6).

На рисунке 12а представлены спектры гармоник в 35–80 нм диапазоне, генерируемые в плазме, полученной в результате абляции Al мишени и мишени, содержащей НЧ алюминия [141]. Условия абляции (энергии и интенсивности ГИ), а также характеристики преобразуемого импульса были идентичными для этих двух типов мишеней. То же самое справедливо и для других параметров эксперимента, таких как расстояние между поверхностью мишени и преобразуемым пучком (~ 200 мкм), длительность ГИ (12 пс) и задержка между ГИ и преобразуемыми импульсами ($\Delta t = 30$ нс). Отметим, что последний параметр (задержка между импульсами) был далёк от оптимального в случае абляции наноструктурированной мишени. На рисунке 12а показаны гармоник, генерируемые в спектральном диапазоне от 35 до 80 нм для случаев НЧ (толстая синяя линия) и объёмной (тонкая красная линия) алюминиевых мишеней. Для двух низших порядков (11-го и 13-го) гармоник отношение их интенсивностей $I_{\text{nano}}/I_{\text{bulk}}$ было примерно равно 30 и 15, таким образом, демонстрируя более чем десятикратное увеличение эффективности преобразования в эти гармоники в случае среды, содержащей НЧ.

Как отмечалось выше, эффективность ГВГ в НЧ в случае малых задержек между импульсами не является максимальной, поскольку эти структуры удаляются от поверхности мишени с меньшей скоростью, чем атомы и ионы, образованные в результате абляции металлических мишеней. Это приводит к тому, что указанное выше отношение интенсивностей сильно уменьшается для высших порядков гармоник. В частности, 23-я гармоника в случае НЧ имеет интенсивность, составляющую всего 5 % от интенсивности 11-й гармоники, и становится в три раза меньше по сравнению с соответствующей гармоникой,

генерируемой в ЛИП, образованной на объёмном алюминии. Между тем, гармоник от объёмной алюминиевой мишени демонстрируют снижение интенсивности примерно на 40 % во всём указанном диапазоне генерации гармоник. Это наблюдение является наглядным экспериментальным доказательством низкой степени ионизации плазмы, полученной в результате абляции НЧ.

Гармоники, генерируемые в плазме, содержащей НЧ, демонстрировали большую расходимость по сравнению с гармониками, генерируемыми в ЛИП, состоящей из атомов и ионов. В частности, в случае 13-й гармоники соответствующие расходимости были равны 680 и 410 мкрад. Эта разница в расходимостях могла быть обусловлена более сильным влиянием длинных траекторий ускоренных электронов в случае НЧ. Подобное предположение можно связать с увеличением поперечного сечения рекомбинации в случае НЧ, когда электроны, движущиеся по длинной траектории, имеют высокую вероятность рекомбинации с более крупными частицами. В целом, генерация интенсивных гармоник низшего порядка в плазме, содержащей Al НЧ, может быть связана с процессом ГВГ, который в этом случае происходит с привлечением нейтральных атомов. Кроме того, потенциал ионизации Al кластеров, содержащих более 15 атомов, становится ниже потенциала ионизации нейтрального атома Al (5,98 эВ) и далее уменьшается с увеличением числа атомов в кластере. Это также может привести к снижению максимального порядка генерируемых гармоник в случае НЧ.

Увеличение эффективности ГВГ было также продемонстрировано и в случае сравнительных экспериментов с атомами и НЧ золота [142]. На рисунке 12б показаны сравнительные спектры гармоник, полученных от атомов и ионов золота, 100 нм НЧ золота, нанесённых на стекло, и 10 нм НЧ золота, нанесённых на поверхность бумаги, при оптимальных задержках между греющим и преобразуемым импульсами для каждой исследуемой мишени. При задержке $\Delta t = 200$ нс интенсивность гармоник, генерируемых в 10 нм НЧ, была примерно в 3 и 14 раз выше по сравнению с 100 нм НЧ и атомами золота. Между тем, при задержке $\Delta t = 500$ нс это же соотношение увеличивалось до 5 и 40.

ГВГ позволяет использовать усиление локального поля, индуцируемого плазмонами внутри металлической наноструктуры, состоящей из золотых элементов в

форме бабочки на сапфировой подложке, для роста эффективности процесса преобразования длины волны лазерного поля в газах [143]. Также исследовался процесс ГВГ в случае облучения плазменных наноструктур длинноволновыми лазерными импульсами [144]. Было продемонстрировано, что как квантовое ограничение движения электронов, так и неоднородный характер электрического поля лазера играют важную роль при преобразовании лазерного излучения в коротковолновую область, а также приводят к росту максимального порядка генерируемой гармоники.

Эффективность преобразования в гармоники в исследуемых плазменных структурах может быть оценена с помощью сравнения с известными результатами, полученными для других плазменных формирований. Эффективность преобразования, полученная в процессе предыдущих измерений генерации гармоник в плазме, полученной на поверхности объёмной мишени, составляла 8×10^{-6} [145]. Соответствующий анализ условий двух экспериментов позволил оценить эффективность преобразования в гармоники (3×10^{-5}) в случае абляции НЧ золота.

Сравнение ГВГ в атомах и НЧ одного и того же элемента показало решающее влияние задержки между ГИ и преобразуемым импульсом на этот процесс. Исследования интенсивности Н11 в зависимости от задержки для объёмной Ag мишени и мишени из НЧ Ag были опубликованы в работе [76]. На рисунке 12в показано, что эффективность ГВГ в НЧ не только выше по сравнению с атомарной плазмой, но и остаётся достаточно высокой вплоть до значительных задержек (1500 нс). ГВГ при больших задержках указывает на присутствие в плазме значительного количества НЧ, обладающих различными скоростями. Рассчитанные скорости частиц, участвующих в ГВГ, при различных временах задержки для фиксированного расстояния 0,2 мкм от мишеней показаны на вставке к рис. 12в. Как известно, ЛИП в случае абляции металлов содержит не только изолированные атомы и ионы (мономер), но и некоторое количество кластеров атомов или НЧ. Однако, по сравнению с мономерами, излучение гармоник от НЧ обычно происходит позже. Следовательно, гармоники, генерируемые в условиях более длительной задержки между импульсами (несколько сотен наносекунд или более), должны быть в основном связаны с присутствием НЧ в ЛИП.

В работе [146] была проанализирована разница в эффективности преобразования излучения с длиной волны 800 нм в гармоники в случае плазменных формирований, содержащих сферические НЧ и несферические НЧ, образующихся при лазерной абляции различных металлов в воде. Несферические НЧ различных форм (треугольные, кубические, прямоугольные, в виде бабочки, стержней и т.д.) были синтезированы в процессе старения некоторых сферических наночастиц (In и Al), полученных при абляции объёмных мишеней в воде. Затем эти НЧ высушивались на стеклянной подложке и использовались для абляции в вакууме и ГВГ. Было показано, что генерация гармоник во всех синтезированных несферических НЧ была менее эффективной, чем в исходных сферических НЧ. Тем не менее, во всех случаях эффективность преобразования в гармоники в сферических и несферических НЧ была заметно выше по сравнению с атомами и ионами одинаковой элементной консистенции.

Эксперименты по генерации гармоник были проведены с использованием сферических и несферических НЧ, полученных при лазерной абляции In и Al в воде, а также ЛИП, содержащей атомы и ионы этих металлов [146]. На верхней панели рис. 13а показан спектр гармоник от сферических наночастиц индия. Затухающие гармоники между 11-м и 21-м порядками сравнимы с теми же спектрами, которые были получены в случае других сферических наночастиц (в частности, Mn и Ag). Между тем, применение плёнки, содержащей несферические НЧ индия для абляции и генерации гармоник, привело к заметному (шестикратному) снижению эффективности преобразования (рис. 13а, средняя панель) по сравнению с использованием плазмы, содержащей сферические НЧ. В этом случае плазма содержала преимущественно крупные прямоугольные НЧ, такие как кубы и стержни (см. вставку на средней панели рис. 13а). В обоих случаях предельный порядок гармоник был близок к 19. В ходе этих экспериментов предполагалось участие нейтральных атомов индия в ГВГ.

Между тем, использование ЛИП, созданной на поверхности объёмного индия для генерации гармоник, привело к резким изменениям в распределении гармоник по сравнению с обычной платообразной формой (рис. 13а, нижняя панель). Предельный порядок генерируемых гармоник достигал 39-й гармоники. Наиболее важной особенностью в этом случае было значительное усиление 13-й гармоники по сравнению с другими соседними гармониками. Н13 была примерно в 12 раз сильнее, чем 11-я и 15-я гармоники. Об этом усилении одиночной гармоники в индиевой плазме вблизи 62 нм ($E_{ph} \approx 20$ эВ) сообщалось и в предыдущих исследованиях с использованием различных возбуждающих импульсов, начиная с первого наблюдения этого резонансного процесса ([88], см. также раздел 5).

Эта особенность резонансно-усиленной гармоники наблюдалась только в ионизированной плазме. Применение нейтральной плазмы или плазмы, содержащей молекулы индия с различными компонентами, не приводило к генерации сильной одиночной гармоники в области около 62 нм. Эти исследования позволяют сделать вывод, что специфический спектр излучения гармоник в диапазоне 25–75 нм (нижняя панель на рис. 13а) обусловлен преимущественно однозарядными ионами индия. Плазма индия, содержащая наночастицы, представляющие собой сферические или прямоугольные агрегаты, обуславливала генерацию гармоник от нейтральных атомов, расположенных на поверхности этих структур. Соответственно, в этих случаях резонансный эффект роста одиночной гармоники не наблюдался. Некоторые признаки резонансного усиления Н13 в плазме, содержащей НЧ, проявлялись только в случае достаточно высоких концентраций таких частиц при абляции плёнок, содержащих НЧ с использованием достаточно высоких плотностей энергии ГИ (3 Дж см^{-2}). В этих условиях НЧ распадались на кластеры и атомы. Последние при этом частично ионизировались, что приводило к взаимодействию преобразуемых фемтосекундных импульсов с ионами индия и генерации усиленной 13-й гармоники. Однако этот процесс также сопровождался генерацией достаточно сильного некогерентного излучения от самой плазмы, которое в значительной степени превышало по интенсивности излучение гармоник.

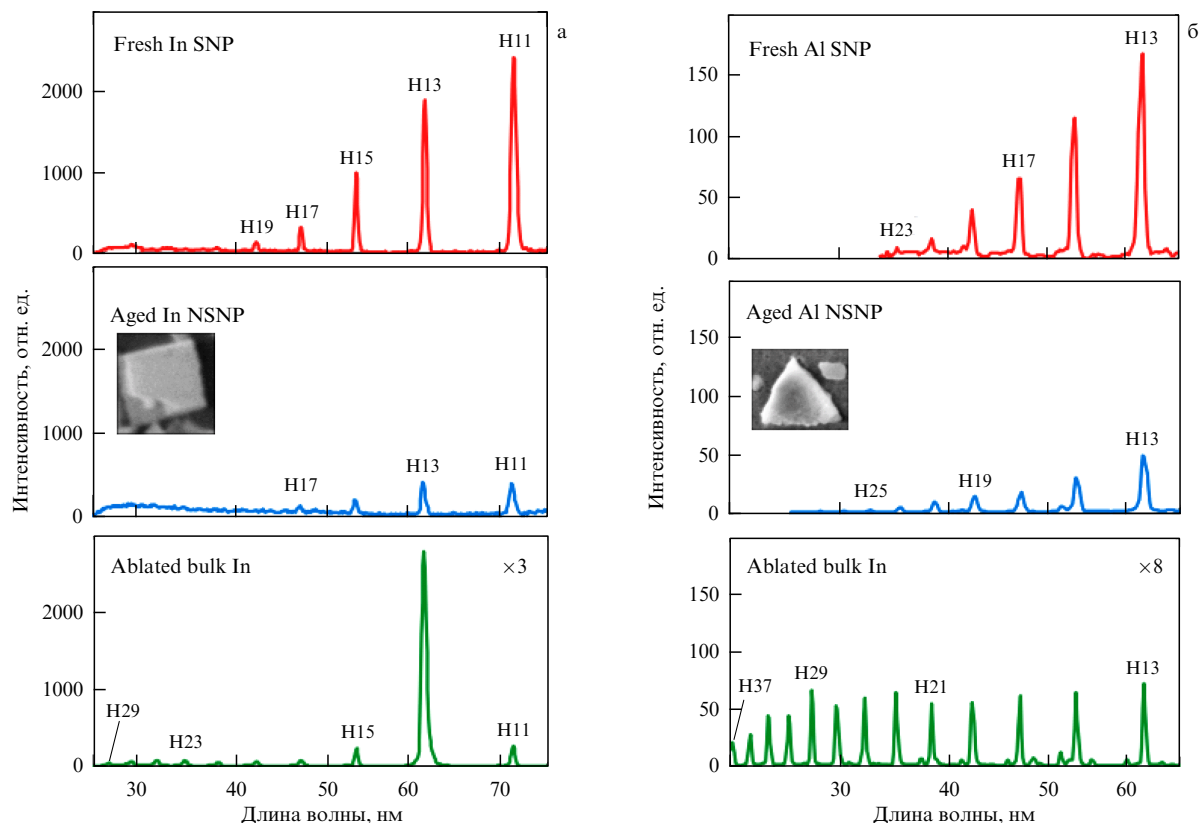


Рис. 13. Спектры гармоник в случае плазменных формирований, содержащих In и Al. (а) Верхняя панель: ЛИП, содержащая сферические НЧ индия, нанесенные на стеклянную подложку через 1 день после абляции индия в водной среде. Средняя панель: ЛИП, содержащая несферические НЧ индия, нанесенные на стеклянную подложку через 30 дней после абляции индия в водной среде. На вставке приведено изображение прямоугольной НЧ индия. Нижняя панель: Спектр гармоник в случае абляции объемной In мишени в вакуумной камере. Нижняя кривая увеличена в 3 раза, чтобы показать гармоники более высокого порядка. (б) Верхняя панель: ЛИП, содержащая сферические НЧ алюминия, нанесенные на стеклянную подложку через 1 день после абляции алюминия в водной среде. Средняя панель: ЛИП, содержащая несферические НЧ алюминия, нанесенные на стеклянную подложку через 30 дней после абляции алюминия в водной среде. На вставке приведено изображение треугольной алюминиевой НЧ. Нижняя панель: Спектр гармоник в случае абляции объемной Al мишени в вакуумной камере. Нижняя кривая увеличена в 8 раз, чтобы показать гармоники более высокого порядка [146]. Воспроизведено с разрешения MDPI.

Спектр гармоник, показанный на нижней панели рис. 13а, был увеличен в три раза по сравнению с двумя верхними панелями, чтобы проанализировать и качественно сравнить излучения гармоник от атомной/ионной плазмы и плазмы, содержащей НЧ. Можно видеть, что все гармоники низшего порядка, за исключением H13, в случае атомно-ионной плазмы (нижняя панель) были от 25 (в случае H11) до 6 (в случае H19) раз слабее по сравнению с гармониками, генерируемыми в плазме, содержащей НЧ (верхняя панель). Единственной гармоникой, которая в этом случае имела более сильную интенсивность по сравнению с аналогичными гармониками из плазмы, состоящей из НЧ, была H13. Таким образом, можно сделать вывод, что усиленный резонансом процесс генерации одиночной гармоники сравним с процессом усиления гармоник с привлечением НЧ в некоторых плазменных формированиях.

Исследование оптических нелинейностей несферических (треугольных) наночастиц путём ГВГ проводилось также и в алюминиевой ЛИП. Эти исследования продемонстрировали свойства гармоник (рис. 13б, средняя панель), аналогичные случаю плазмы, содержащей прямоугольные НЧ индия (рис. 13а, средняя панель). На вставке к рис. 13б показана форма треугольных НЧ для ГВГ. В обоих случаях со сферическими и треугольными НЧ максимальные порядки генерируемых гармоник при-

мерно совпадали друг с другом (соответственно, H23 и H25, верхняя и средняя панели рис. 13б). В то же время, как и в случае с НЧ индия, эффективность ГВГ в алюминиевой плазме, содержавшей несферические НЧ, в случае низших порядков гармоник была в 5 раз ниже по сравнению со случаем сферических Al НЧ.

В отличие от абляции НЧ, плазма, содержащая атомы и ионы Al, позволила генерировать гораздо более высокие порядки гармоник (до H47). Платообразная форма распределения гармоник по всему диапазону генерируемого излучения указывала на генерацию гармоник в результате взаимодействия фемтосекундных импульсов с ионными частицами (рис. 13б, нижняя панель). Соотношение H13, генерируемой в плазме, содержащей сферические НЧ, к той же гармонике, генерировавшей в атомарно-ионной плазме, было равно 18, в то время как в случае Al НЧ несферической формы это соотношение снижалось до 5. Аналогичные особенности наблюдались в случае медных сферических НЧ, несферических НЧ и в атомно-ионных плазменных формированиях.

Ниже мы рассмотрим использование КТ для ГВГ. Большие оптические нелинейности низшего порядка этих структур делают их привлекательными для различных областей оптики. Одним из таких применений КТ является генерация гармоник высшего порядка в случае прохождения ультракоротких лазерных импульсов через

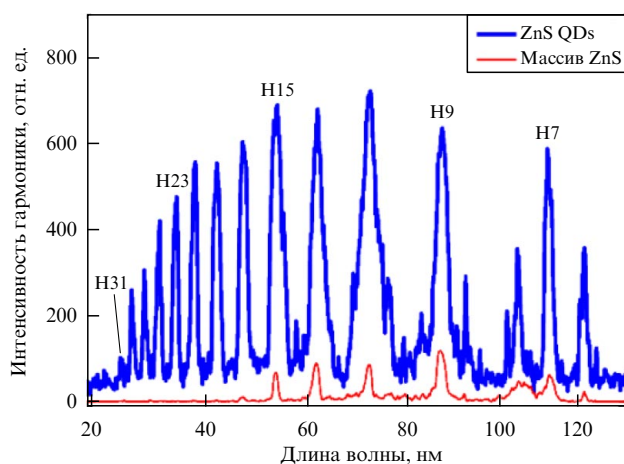


Рис. 14. Распределение гармоник при распространении фемтосекундных импульсов через плазму, образованную на объемной мишени ZnS (красная кривая) и на мишени, содержащей КТ ZnS (синяя кривая) [148]. Воспроизведено с разрешения © Optica Publishing Group.

ЛИП, содержащую подобные частицы. Использование КТ позволяет оптимизировать ГВГ при распространении лазерных импульсов через подобную плазму [147]. В этих исследованиях синтезированные КТ сульфидов серебра, цинка и кадмия в стабилизированных полимерах образовывали твердые частицы. После помещения в вакуумную камеру и абляции греющими пикосекундными импульсами эти КТ появлялись в плазменных формированиях. Сравнение эффективностей генерации гармоник в случаях абляции объемных ZnS мишеней и мишеней, содержащих КТ ZnS, показано на рис. 14 [148]. Аналогичные условия проведения экспериментов показали значительную разницу в интенсивностях генерируемых гармоник в этих двух случаях. Следует отметить, что в случае плазмы, содержащей КТ, наряду с более сильными гармониками наблюдался и рост максимального порядка генерируемых гармоник (H31, $\lambda = 25$ нм).

Большинство исследований ГВГ в ЛИП, содержащих КТ, были проведены с использованием сульфидов металлов. Наряду с этим было показано, что сульфиды металлов обладают большим нелинейным поглощением и нелинейным преломлением в исследуемом диапазоне длин волн и длительностей импульсов по сравнению с другими КТ. Они также продемонстрировали относительно высокую эффективность преобразования в третью гармонику. Существует эмпирическое предположение, что частицы, обладающие большим значением нелинейно-оптической восприимчивости третьего порядка, могут демонстрировать высокую эффективность преобразования в гармоники высшего порядка. По этой причине для экспериментов по преобразованию длины волны лазерного излучения в ЭУФ область были выбраны КТ сульфидов металлов. Данные КТ были синтезированы и проанализированы до проведения экспериментов по ГВГ. Дополнительным преимуществом использования этих частиц является узкое распределение размеров КТ сульфидов металлов.

Взаимодействие многоатомных частиц с сильным лазерным полем было впервые проанализировано в кластерах, состоящих из нескольких тысяч атомов благородных газов. Теоретические концепции, описываю-

щие модели взаимодействия таких структур, обладающих специфическими свойствами, с лазерным излучением, были проанализированы в работах [149–151]. В случае газовых кластеров взаимодействие лазера с веществом включало в себя задействование различных каналов генерации гармоник, в частности ионизацию и рекомбинацию с одним и тем же ионом кластера, с соседними ионами и со всем кластером. Два последних канала ГВГ отличаются от случая генерации гармоник с использованием атомов и могут либо усиливать, либо уменьшать нелинейно-оптический отклик среды в зависимости от размеров использовавшихся частиц, состоящих из различного количества атомов. Между тем, как уже упоминалось, увеличенное поперечное сечение рекомбинации ускоренного электрона и исходной частицы может естественным образом привести к росту эффективности преобразования в гармоники. Иными словами, в случае значительно более крупных частиц, содержащих от десятков тысяч до миллионов атомов, большие размеры подобных структур увеличивают вероятность их взаимодействия с ускоренным электроном, который возвращается к ним в течение второй половины цикла световой волны. Однако у этой концепции есть некоторые ограничения, которые указывают на существование оптимального размера мультичастиц, связанного с максимальным выходом фотонов коротковолнового излучения за пределы таких частиц.

Теоретическое обоснование использования плазменных полей в некоторых многочастичных системах для генерации эффективного когерентного ЭУФ излучения было приведено в работе [152]. Эффективность ГВГ в присутствии таких структур может быть объяснена плазмонными свойствами КТ и в ряде случаев сравнительно больших НЧ, приводящими к вовлечению локальных полей в усиление нелинейно-оптического отклика среды. В частности, в работе [153] сообщалось о ГВГ, усиленной плазмонами кремния. Авторы предположили, что локальное поле может стать достаточно сильным для преобразования основной частоты лазера в гармоники высшего порядка за счёт чрезвычайно сильного нелинейного взаимодействия с атомами газа, занимающими наноскопический объём. Можно предположить, что аналогичный процесс может играть важную роль в случае КТ сульфидов металлов, которые при определённых условиях возбуждения могут демонстрировать квантовый эффект, когда локальные поля вблизи этих структур позволяют усиливать нелинейно-оптический отклик среды. Таким образом, сравнение ГВГ с использованием КТ либо НЧ одинаковой элементарной консистенции является простым способом оценить роль квантового эффекта в каждой из этих структур.

8. Перспективы генерации высших гармоник в лазерной плазме

Данный обзор в основном представляет анализ экспериментальных результатов, сообщавшихся за последние 20 лет развития методики ГВГ в лазерной плазме. Тем не менее, различные аспекты теории ГВГ в плазме, такие как резонансное усиление одиночной гармоники, нашли своё отражение в ряде работ [90–97]. В четвёртой главе обзора достаточно подробно рассмотрены некоторые теоретические принципы, разработанные различными исследователями. Отметим, что значительный ряд

работ по резонансному усилению гармоник был выполнен после опубликования в 2013 г. наиболее полного обзора по ГВГ в плазме [47].

Теоретические основы ряда других процессов в лазерной плазме, исследованных после 2013 г., таких как КФС, изложены в работах [64, 67, 137, 139, 140]. Такие методы усиления как двухцветная накачка плазмы и использование наноструктур были ранее теоретически проанализированы в случае ГВГ в газовых средах. Следует также отметить теоретико-экспериментальные работы, опубликованные по тематикам двухцветной накачки плазмы, КФС и резонансному усилению гармоник [154–156].

Полученные результаты по ГВГ в ЛИП привлекли внимание к спектроскопии с использованием генерации гармоник в материалах, представленных в плазменном состоянии. Внедрение новых передовых методов плазменной спектроскопии с использованием разнообразных подходов, таких как применение протяжённой плазмы, использование лазерных источников в ближней ИК-области, а также внешней двухцветной накачки, схем газ + плазма, твердотельных наноструктур, кластеров и квантовых точек с высокими значениями оптических нелинейностей низшего порядка и т.д., позволит глубже понять физические и оптические свойства материалов. Эти знания также чрезвычайно важны для дальнейшего повышения эффективности преобразования в гармоники и создания эффективных источников когерентного ЭУФ излучения для практических нужд. В то же время проведение исследований в различных комбинациях нелинейных сред (газов, плазмы и твёрдых тел), ранее использовавшихся отдельно для ГВГ, позволит найти наиболее эффективные подходы в решении задачи создания наиболее эффективного коротковолнового источника. В связи с вышесказанным будет интересно проанализировать применение излучения в среднем ИК диапазоне (1500–5000 нм) для изучения динамики нелинейно-оптического отклика молекулярных структур, находящихся в плазменном состоянии, по сравнению с широко используемыми для ГВГ титан-сапфировыми лазерами (800 нм).

С точки зрения разнообразия исследовательских тем, реализованных в ходе разработки этого подхода для создания ЭУФ источника, ГВГ в плазме можно рассматривать как многоплановую методику, включающую взаимодействие лазера с веществом, атомную спектроскопию, синтез и применение наноматериалов, лазерную физику, исследования плазмы низкой плотности, квантовую и нелинейную оптику. Как следует из данного подхода, он направлен на изучение материалов за счёт синергии вышеперечисленных направлений. Объектами этих исследований уже стали практически все нерадиоактивные твердотельные элементы периодической таблицы Менделеева (рис. 5б). Отметим, что наиболее часто используемый метод ГВГ в газах ограничен несколькими, обычно благородными, газами. Кроме того, эффективность преобразования в низшие гармоники в случае некоторых плазменных формирований, например в углеродной ЛИП выше, чем в газах. Потенциал высокочастотной спектроскопии плазмы предполагает её применение к тысячам твёрдых тел (металлам, металлоидам, полупроводникам, диэлектрикам, сложным структурам, таким как крупные органические молекулы и сплавы, наноструктурированным частицам, таким как кластеры, КТ, НЧ, нанокристаллиты и т.д.). Таким об-

разом, этот метод значительно расширяет области исследования материалов с использованием ГВГ в плазме.

Использование протяжённых плазменных формирований, резонансов в атомных или ионных системах, кластеров, квантовых точек и наночастиц в плазменных образованиях, двух- и трёхцветной накачки ЛИП, создание оптимальных условий для фазово-сопряжённой передачи энергии в пространственно-модулированных плазменных структурах и другие технические и фундаментальные преимущества этого подхода позволяют ожидать со временем достижения высокой эффективности преобразования в ЭУФ (до $\sim 10^{-4}$ для фотонов с энергией 20 эВ и выше), что может привести к практическому применению подобных источников когерентного излучения.

В дополнение к потенциальным применениям коротковолновых источников, значительный интерес представляет возможность генерации аттосекундных импульсов в процессе ГВГ с использованием специально сформированных плазменных сред. Подобно ГВГ в газах, гармоники, генерируемые в лазерной плазме, могут проявлять уникальные характеристики в аттосекундной временной области, что позволяет генерировать подобные ультракороткие импульсы и одновременно диагностировать различные процессы, связанные с излучателями гармоник. Обратим внимание, что исследования временных характеристик подобных гармоник в аттосекундной шкале времени ещё не получили достаточного развития, хотя в ряде публикаций представлены примеры того, что длительность подобных импульсов оказывается значительно короче длительности импульсов преобразуемого излучения и даже достигает значения 300 ас (см. раздел 5 и работу [57]). Можно предположить, что анализ и использование подобных импульсов могут быть в ряду потенциальных задач обсуждаемого подхода к генерации гармоник.

Несмотря на то, что исследования ГВГ в плазме были начаты в первой половине девяностых годов, оригинальность применения этого метода в материаловедении основана на прогрессе в области генерации гармоник, основанном на результатах, продемонстрированных в течение последних двадцати лет. Дальнейшие шаги в развитии уникальных исследований в области нелинейной ЭУФ спектроскопии различных аблированных материалов предполагают комбинацию ряда принципиально новых подходов и усовершенствованных методов, которые уже были ранее разработаны, что позволит повысить эффективность ГВГ в плазменных средах и использовать их при анализе спектроскопических свойств недавно разработанных материалов, таких как перовскиты, нанокристаллиты, сложные наноструктуры, органические молекулы и т.д. Основные усилия тут могут быть направлены на поиск дальнейших путей эффективного преобразования лазерного излучения, распространяющегося через плазму, в ЭУФ диапазон, с учётом коллективных макропроцессов в плазме, таких как согласование фаз взаимодействующих волн в пространственно-модулированных структурах, в сочетании с микропроцессами, такими как резонансное усиление отдельных гармоник, использование многоатомных структур и т.д. Этот подход можно рассматривать как спектроскопию аблированных материалов с использованием ГВГ.

Поскольку предложенный метод нелинейной ЭУФ спектроскопии является оригинальным, лишь немногие из опубликованных работ в настоящее время могут быть

отнесены к этому направлению. Среди них, в частности, можно отметить анализ специфического распределения гармоник при абляции нержавеющей стали, позволивший определить наличие незначительной концентрации хрома, легированного в этот материал, исходя из наблюдения резонансного усиления одиночной гармоники. Другим примером является демонстрация спектрально-го сдвига ионных переходов, обладающих высоким значением gf , приводящего к значительному снижению усиления одиночной гармоники вблизи этих переходов [147].

Как уже отмечалось в начале этого обзора, основной проблемой, связанной с созданием источников когерентного ЭУФ излучения, остается довольно низкая эффективность генерации гармоник, в то время как для многих потенциальных приложений требуется значительно более высокая интенсивность подобных источников. Следующие шаги по развитию нелинейной ЭУФ спектроскопии и созданию эффективных источников сверхбыстрых импульсов в этом диапазоне требуют дальнейших систематических исследований влияния различных параметров плазмы на процесс ГВГ, а также использования новых подходов в этом направлении. Поиск плазменных сред, которые будут способствовать усилению высших гармоник, позволит ещё больше повысить эффективность этого процесса.

Сочетание фундаментальных исследований в этой области и новых подходов к ГВГ в плазме позволит сделать следующие шаги в создании практических когерентных ЭУФ источников, которые будут использованы для нелинейной спектроскопии материалов и нанолитографии. В частности, повысить эффективность генерации гармоник в подобной среде можно будет за счёт двойного возбуждения лазерной плазмы, оптимизации схем генерации гармоник в лазерном факеле, использования многокомпонентных плазменных факелов, оптимизации абляции наноструктурированных мишеней, формирования условий КФС в перфорированной плазме, обеспечения режима распространения волноводной накачки через плазменную среду, использования импульсов среднего ИК-диапазона для ГВГ, стабилизации плазменных характеристик при высокой частоте следования ГИ за счёт использования вращающихся и перемещающихся мишеней, исследования временных характеристик гармоник в аттосекундном диапазоне, использования метода поляризационной модуляции преобразуемого излучения для сокращения длительности импульсов гармоник и т.д.

Совместное применение новых и старых подходов (например, усиление гармоник, вызванное резонансом, применение кластеров с контролируемыми и переменными размерами, усиление чётных и нечётных гармоник, вызванное двухцветной накачкой, поиск влияния многоэлектронной динамики сложных кластеров, таких как фуллерены и нанотрубки, на индуцированный плазменным резонансом рост нескольких гармоник в ультрафиолетовом диапазоне и т.д.) позволит и в дальнейшем развивать этот метод материаловедения. Разработка усовершенствованных схем КФС для случая многоструйных плазменных формирований, изучение зависящей от времени динамики агрегации и распада кластеров посредством их нелинейно-оптического отклика, сравнительный анализ ГВГ в случае газов и плазмы, использование двух протяжённых плазменных шлейфов для генерации и т.д. также входят в число будущих целей этого направления. В частности, применение пространственно-моду-

лированных ГИ или перфорированных мишеней могло бы стать альтернативой формированию плазменных струй на поверхностях микролитографических мишеней для КФС.

Будущие разработки могут также включать (а) анализ плазменных свойств кластеров, образующихся при лазерной абляции в условиях вызванного резонансом усиления гармоник, (б) применение графеновых и кольцеобразных структур, многокомпонентных молекул и нановолокон для ГВГ в ЛИП и (в) исследования косвенного участия кластеров в генерации гармоник, когда они непосредственно не участвуют в качестве излучателей, а скорее усиливают локальное поле, аналогично экспериментам и расчётам с использованием золотых наноструктур, повышающих эффективность ГВГ в газах. Обратим внимание, что разработанный метод ГВГ уже позволил анализировать структурные свойства сложных систем, таких как компоненты ДНК (тимин и урацил). Некоторые из этих идей были частично заимствованы из ранее сообщавшихся исследований ГВГ в газах. Принципиальных ограничений в применении принципов генерации гармоник в газах для генерации гармоник в плазме не существует. Отметим, что некоторые особенности плазменных сред могут продемонстрировать преимущества в использовании таких источников.

Спектр гармоник в ЭУФ диапазоне может содержать определённую информацию об электронной структуре ионизированной атомной или молекулярной среды. Применение ультракоротких преобразуемых импульсов позволило генерировать необычные спектральные распределения гармоник. В частности, как отмечалось выше, в марганцевой плазме генерируется широкополосная 33-я гармоника. Соответственно, анализ гармоник плазмы будет способствовать пониманию фундаментальных законов в атомных и молекулярных системах. Плазменные гармоники позволяют анализировать молекулы, от простых двухатомных до более сложных образцов (ароматические соединения, пептиды, компоненты ДНК и т.д.), изучать их ионизацию, диссоциацию и фрагментацию под действием коротковолнового поля.

Развитие нелинейной спектроскопии, основанной на генерации гармоник в плазме, идеально подходит для материаловедения. Анализ когерентного ЭУФ излучения от различных аблированных частиц может быть использован в физических, химических и биологических исследованиях. В дополнение к вышеупомянутым областям применения, они включают фемтосекундную когерентную дифракционную визуализацию с временным разрешением, фотоиндуцированные процессы на поверхностях и наночастицах, литографию, диагностику плазмы и ряд других. Таким образом, генерация гармоник в плазме показывает, что это не только альтернативный подход к созданию когерентного ЭУФ излучения, но также и инструмент для различных спектроскопических и аналитических применений.

В заключение следует отметить, что генерация высших гармоник в различных средах (газах, плазме и твёрдых телах) очень активно развивается в связи с рядом интересных потенциальных применений подобных источников дальнего ультрафиолетового излучения. Это, во-первых, возможность генерации ультракоротких импульсов (сотни и даже десятки аттосекунд), которые уже нашли применение в исследовании фундаментальных свойств материи. Как известно в случае ГВГ в газах, по-

лученные результаты ознаменовались присвоением Нобелевской премии за 2023 г. в области развития принципов аттосекундной физики, что уже само по себе говорит о важности подобных исследований. Что касается генерации субфемтосекундных импульсов при ГВГ в лазерной плазме, то уже и тут достигнуты определённые успехи, продемонстрированные в различных научных центрах. И поэтому консолидация усилий в этом направлении на основе недавно разработанных методов усиления гармоник в плазме, освещённых в настоящем обзоре, может привести к прорыву в этом направлении. В частности, разрабатываемые концепции ГВГ в плазменных факелах в плане продвижения исследований в аттосекундную область позволяют надеяться, что количество лабораторий, в которых этот процесс будет реализован, будет только расти. Доказательством тому может служить создание десятка центров и групп в ведущих университетах, заинтересованных в подобного рода исследованиях.

Во-вторых, очень важный аспект в развитии этой тематики — практическое использование подобных источников в нанолитографии. Известна ситуация, сложившаяся вокруг технологии использования некогерентного 13 нм излучения для создания микроципов. В настоящее время активно рассматривается методика использования для этих целей высших гармоник, генерируемых в газах. Малая интенсивность гармоник, генерируемых в газах, в области 10 нм заставляет искать альтернативы по усилению подобного излучения. И один из вариантов видится в использовании разработанных подходов в усилении гармоник, генерируемых в ЛИП.

Можно много говорить и о других привлекательных особенностях этого нелинейно-оптического процесса, реализуемого в плазме. Очевидно, что интерес к этой тематике неуклонно растёт во многих ведущих странах.

Благодарности. Автор выражает глубокую благодарность многочисленным коллегам, с которыми он исследовал генерацию гармоник в плазме. Особую благодарность автор выражает Х. Куроде (H. Kuroda), П.Д. Гупте (P.D. Gupta), П.А. Наику (P.A. Naik), Т. Озаки (T. Ozaki), Дж.П. Марангосу (J.P. Marangos), Дж.В.Г. Тишу (J.W.G. Tisch), Х. Захариасу (H. Zacharias), Д.Б. Милошевичу (D.B. Milošević), Ч. Гуо (C. Guo), А.С. Алнасеру (A.S. Alnaser), О.В. Овчинникову, М. Сузуки (M. Suzuki), В.В. Стрелкову, Х. Сингалу (H. Singhal), Л.Б. Элоуга Бому (L.B. Elouga Bom), Дж.А. Чакепе (J.A. Chakera), К. Хатчисону (C. Hutchison), Г.С. Болтаеву, И.А. Шуклову, В.В. Киму, С.Р. Конде (S.R. Konda), С.Ю. Стремоухову, П.В. Редькину, А.И. Звягину, М. Венкатешу (M. Venkatesh) и М. Вёстманну (M. Wöstmann) за сотрудничество и плодотворное обсуждение различных аспектов генерации гармоник высшего порядка в лазерно-индуцированной плазме.

Список литературы

- Baier V N, Milstein A I *Phys. Lett. A* **65** 319 (1978)
- Kondratenko A M, Saldin E L *Part. Accel.* **10** 207 (1980)
- Patterson B D, Abela R *Phys. Chem. Chem. Phys.* **12** 5647 (2010)
- Kur E et al. *New J. Phys.* **13** 063012 (2011)
- Desai T et al. *Laser Part. Beams* **19** 241 (2001)
- Ozaki T et al. *Phys. Rev. Lett.* **89** 253902 (2002)
- Suckewer S, Jaeglé P *Laser Phys. Lett.* **6** 411 (2009)
- Golosio B et al. *Appl. Phys. Lett.* **100** 164104 (2012)
- Elder F R et al. *Phys. Rev.* **71** 829 (1947)
- Quéré F et al. *Phys. Rev. Lett.* **96** 125004 (2006)
- Thaury C et al. *Nature Phys.* **3** 424 (2007)
- Nomura Y et al. *Nature Phys.* **5** 124 (2009)
- Wheeler J A et al. *Nature Photon.* **6** 829 (2012)
- Bulanov S V, Naumova N M, Pegoraro F *Phys. Plasmas* **1** 745 (1994)
- Lichters R, Meyer-ter-Vehn J, Pukhov A *Phys. Plasmas* **3** 3425 (1996)
- Baeva T, Gordienko S, Pukhov A *Phys. Rev. E* **74** 046404 (2006)
- Dromey B et al. *Nature Phys.* **2** 456 (2006)
- An der Brügge D, Pukhov A *Phys. Plasmas* **17** 033110 (2010)
- Dromey B et al. *Nature Phys.* **8** 804 (2012)
- Burnett N H et al. *Appl. Phys. Lett.* **31** 172 (1977)
- McLean E A et al. *Appl. Phys. Lett.* **31** 825 (1977)
- Carman R L, Rhodes C K, Benjamin R F *Phys. Rev. A* **24** 2649 (1981)
- Ferray M et al. *J. Phys. B* **21** L31 (1988)
- McPherson A et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **4** 595 (1987)
- Krause J L, Schafer K J, Kulander K C *Phys. Rev. Lett.* **68** 3535 (1992)
- Corkum P B *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994 (1993)
- Akiyama Y et al. *Phys. Rev. Lett.* **69** 2176 (1992)
- Wahlström C-G et al. *Phys. Rev. A* **51** 585 (1995)
- Ghimire S et al. *Nature Phys.* **7** 138 (2011)
- Schubert O et al. *Nature Photon.* **8** 119 (2014)
- Kim H et al. *ACS Photonics* **4** 1627 (2017)
- Ndabashimiye G et al. *Nature* **534** 520 (2016)
- You Y S, Reis D A, Ghimire S *Nature Phys.* **13** 345 (2017)
- Ghimire S, Reis D A *Nature Phys.* **15** 10 (2019)
- Luu T T et al. *Nature* **521** 498 (2015)
- You Y S et al. *Opt. Lett.* **42** 1816 (2017)
- Korobenko A et al. *Opt. Express* **29** 24161 (2021)
- Boukhaoui D et al. *APL Photon.* **10** 026106 (2025)
- Corkum P B, Krausz F *Nature Phys.* **3** 381 (2007)
- Krausz F *Phys. Scr.* **91** 063011 (2016)
- Львов К В, Стремоухов С Ю *УФН* **196** 333 (2026); Lvov K V, Stremoukhov S Yu *Phys. Usp.* **69** 311 (2026)
- Рябкин М Ю, Емелин М Ю, Стрелков В В *УФН* **193** 382 (2023); Ryabikin M Yu, Emelin M Yu, Strelkov V V *Phys. Usp.* **66** 360 (2023)
- Стрелков В В и др. *УФН* **186** 449 (2016); Strelkov V V et al. *Phys. Usp.* **59** 425 (2016)
- Метельский И И, Ковалев В Ф, Быченков В Ю *УФН* **194** 457 (2024); Metelskii I I, Kovalev V F, Bychenkov V Yu *Phys. Usp.* **67** 429 (2024)
- Миронов С Ю, Хазанов Е А *УФН* **194** 106 (2024); Mironov S Yu, Khazanov E A *Phys. Usp.* **67** 99 (2024)
- Попруженко С В, Федотов А М *УФН* **193** 491 (2023); Popruzhenko S V, Fedotov A M *Phys. Usp.* **66** 460 (2023)
- Ганеев Р А *УФН* **183** 815 (2013); Ganeev R A *Phys. Usp.* **58** 772 (2013)
- Kubodera S et al. *Phys. Rev. A* **48** 4576 (1993)
- Theobald W et al. *Opt. Commun.* **120** 177 (1995)
- Krushelnick K, Tighe W, Suckewer S J. *Opt. Soc. Am. B* **14** 1687 (1997)
- Ganeev R et al. *Opt. Lett.* **30** 768 (2005)
- Elouga-Bom L-B et al. *J. Phys. B* **41** 215401 (2008)
- Singhal H et al. *Phys. Rev. A* **79** 023807 (2009)
- Pertot Y et al. *Appl. Phys. Lett.* **98** 101104 (2011)
- Elouga Bom L B et al. *Opt. Express* **19** 3077 (2011)
- Sheinfux A H et al. *Appl. Phys. Lett.* **98** 141110 (2011)
- Elouga Bom L B et al. *Opt. Express* **19** 3677 (2011)
- Pertot Y et al. *J. Phys. B* **45** 074017 (2012)
- Ganeev R A et al. *Opt. Express* **20** 25239 (2012)
- Haessler S et al. *J. Phys. B* **45** 074012 (2012)
- Kumar M et al. *J. Appl. Phys.* **114** 033112 (2013)
- Haessler S et al. *New J. Phys.* **15** 013051 (2013)
- Singhal H et al. *J. Appl. Phys.* **115** 033104 (2014)
- Rosenthal N, Marcus G *Phys. Rev. Lett.* **115** 133901 (2015)
- Fareed M A et al. *Appl. Phys. Lett.* **108** 124104 (2016)
- Fareed M A et al. *Nature Commun.* **8** 16061 (2017)
- Wöstmann M, Splitthoff L, Zacharias H *Opt. Express* **26** 14524 (2018)
- Abdelrahman Z et al. *Opt. Express* **26** 15745 (2018)

69. Fareed M A et al. *Phys. Rev. Lett.* **121** 023201 (2018)
70. Singh M et al. *Appl. Phys. Lett.* **115** 231105 (2019)
71. Liang J et al. *Phys. Rev. A* **102** 053117 (2020)
72. Lai Y H et al. *Opt. Lett.* **46** 2372 (2021)
73. Liang J et al. *Opt. Express* **29** 23421 (2021)
74. Singh M et al. *Optica* **8** 1122 (2021)
75. Konda S R et al. *ACS Appl. Nano Mater.* **4** 8292 (2021)
76. Konda S R, Lai Y H, Li W J. *Appl. Phys.* **130** 013101 (2021)
77. Fu W et al. *Opt. Express* **30** 23090 (2022)
78. Fu W, Lai Y H, Li W J. *Opt. Express* **30** 47315 (2022)
79. Fu W et al. *Opt. Express* **31** 15553 (2023)
80. Ozaki T et al. *Laser Part. Beams* **25** 321 (2007)
81. Mathijssen J et al. *Appl. Phys. B* **129** 91 (2023)
82. Fu W et al. *ACS Photonics* **11** 53 (2024)
83. Mathijssen J et al. *Opt. Express* **32** 30824 (2024)
84. Hernández-García C et al. *Optica* **4** 520 (2017)
85. Ganeev R A, Boltsev G S, Alnaser A S. *Optik* **318** 172091 (2024)
86. Jin C, Lin C D. *Phys. Rev. A* **85** 033423 (2012)
87. Kumar M, Singhal H, Chakera J A. *J. Appl. Phys.* **125** 155902 (2019)
88. Ganeev R A et al. *Opt. Lett.* **31** 1699 (2006)
89. Singh M et al. *Phys. Rev. Lett.* **130** 073201 (2023)
90. Milošević D B. *J. Phys. B* **40** 3367 (2007)
91. Kulagin I A, Usmanov T. *Opt. Lett.* **34** 2616 (2009)
92. Milošević D B. *Phys. Rev. A* **81** 023802 (2010)
93. Strelkov V. *Phys. Rev. Lett.* **104** 123901 (2010)
94. Redkin P V, Ganeev R A. *Phys. Rev. A* **81** 063825 (2010)
95. Frolov M V, Manakov N L, Starace A F. *Phys. Rev. A* **82** 023424 (2010)
96. Tudorovskaya M, Lein M. *Phys. Rev. A* **84** 013430 (2011)
97. Redkin P V, Kodirov M K, Ganeev R A. *J. Opt. Soc. Am. B* **28** 165 (2011)
98. Gaarde M B, Schafer K J. *Phys. Rev. A* **64** 013820 (2001)
99. Kjeldsen H et al. *J. Phys. B* **37** 1321 (2004)
100. Feit M D, Fleck J A (Jr.), Steiger A J. *Comput. Phys.* **47** 412 (1982)
101. Ganeev R A et al. *Laser Phys.* **26** 075401 (2016)
102. Kim V V et al. *J. Phys. B* **53** 195401 (2020)
103. Sato T, Ishikawa K L. *Phys. Rev. A* **88** 023402 (2013)
104. Wahyutama I S, Sato T, Ishikawa K L. *Phys. Rev. A* **99** 063420 (2019)
105. Crooker A M, Dick K A. *Can. J. Phys.* **46** 1241 (1968)
106. Dick K A. *Can. J. Phys.* **46** 1291 (1968)
107. Dolmatov V K J. *J. Phys. B* **29** L687 (1996)
108. McGuinness C et al. *J. Phys. B* **32** L583 (1999)
109. D'Arcy R et al. *J. Phys. B* **32** 4859 (1999)
110. Duffy G, Dunne P J. *J. Phys. B* **34** L173 (2001)
111. West J B et al. *J. Phys. B* **36** L327 (2003)
112. Kilbane D et al. *J. Phys. B* **38** L1 (2005)
113. Ganeev R A et al. *Appl. Phys. Lett.* **86** 131116 (2005)
114. Kim I J et al. *Appl. Phys. Lett.* **92** 021125 (2008)
115. Cormier E, Lewenstein M. *Eur. Phys. J. D* **12** 227 (2000)
116. Liu T T et al. *Phys. Rev. A* **73** 063823 (2006)
117. Mauritsson J et al. *Phys. Rev. Lett.* **97** 013001 (2006)
118. Pfeifer T et al. *Opt. Lett.* **31** 975 (2006)
119. Yu Y et al. *Opt. Express* **16** 686 (2008)
120. Liu X, Li N J. *J. Phys. B* **41** 015602 (2008)
121. Charalambidis D et al. *New J. Phys.* **10** 025018 (2008)
122. Ganeev R A et al. *Phys. Rev. A* **80** 033845 (2009)
123. Eichmann H et al. *Phys. Rev. A* **51** R3414 (1995)
124. Watanabe S et al. *Phys. Rev. Lett.* **73** 2692 (1994)
125. Kim I J et al. *Phys. Rev. Lett.* **94** 243901 (2005)
126. Yavuz I, Altun Z, Topcu T. *Phys. Rev. A* **86** 043836 (2012)
127. Ganeev R A et al. *Phys. Rev. A* **82** 053831 (2010)
128. Ganeev R A, Suzuki M, Kuroda H J. *Opt. Soc. Am. B* **31** 911 (2014)
129. Lan P, Takahashi E J, Midorikawa K. *Phys. Rev. A* **82** 053413 (2010)
130. Takahashi E J et al. *Phys. Rev. Lett.* **104** 233901 (2010)
131. Takahashi E J et al. *Nature Commun.* **4** 2691 (2013)
132. Pfeifer T et al. *Phys. Rev. Lett.* **97** 163901 (2006)
133. Ganeev R A. *J. Opt. Soc. Am. B* **33** E93 (2016)
134. Ganeev R A. *Opt. Lett.* **48** 2038 (2023)
135. Ganeev R A. *Opt. Express* **31** 43748 (2023)
136. Ganeev R A, Suzuki M, Kuroda H. *Phys. Rev. A* **89** 033821 (2014)
137. Ganeev R A et al. *Phys. Rev. A* **91** 043823 (2015)
138. Zheng L et al. *Opt. Express* **15** 17985 (2007)
139. Ganeev R A et al. *Opt. Express* **24** 3414 (2016)
140. Strelkov V V, Ganeev R A. *Opt. Express* **25** 21068 (2017)
141. Wöstmann M et al. *Appl. Phys. B* **120** 17 (2015) DOI:10.1007/s00340-015-6043-y
142. Venkatesh M et al. *Nanomaterials* **10** 234 (2020)
143. Kim S et al. *Nature* **453** 757 (2008)
144. Ciappina M F et al. *Opt. Express* **20** 26261 (2012)
145. Ganeev R A et al. *Phys. Lett. A* **339** 103 (2005)
146. Ganeev R A, Atvars A. *Nanomaterials* **14** 1010 (2024)
147. Ganeev R A et al. *J. Appl. Phys.* **129** 043103 (2021)
148. Ganeev R A et al. *Opt. Express* **26** 35013 (2018)
149. Vázquez de Aldana J R, Roso L J. *Opt. Soc. Am. B* **18** 325 (2001)
150. Vénier V, Taïeb R, Maquet A. *Phys. Rev. A* **65** 013202 (2001)
151. Tisch J W G. *Phys. Rev. A* **62** 041802 (2000)
152. Yang Y-Y et al. *Opt. Express* **21** 2195 (2013)
153. Vampa G et al. *Nature Phys.* **13** 659 (2017)
154. Ganeev R A et al. *Appl. Sci.* **9** 1701 (2019)
155. Ganeev R A et al. *Eur. Phys. J. D* **74** 199 (2020)
156. Ganeev R A et al. *Opt. Continuum* **1** 1098 (2022)

Generation of higher harmonics in laser-induced plasma

R.A. Ganeev

Institute for Advanced Studies, New Uzbekistan University, ul. Mustakillik 54, 100007 Tashkent, Uzbekistan

E-mail: r.ganeev@newuu.uz

Coherent sources of the short-wavelength (2–120 nm) radiation range are increasingly being used both in fundamental research and for practical purposes. One of the most effective methods of generating such extreme ultraviolet radiation is the generation of high-order harmonics of ultrashort laser pulses. This review presents studies of the generation of high-order harmonics of femtosecond pulses in laser-induced plasma, starting with the first demonstration of this process under optimal conditions of plasma plume formation (*Optics Letters* **30** 768 (2005)) and up to the most recent studies. The achievements of this method of converting the wavelength of intense laser sources into the extreme ultraviolet range of the spectrum are analyzed. Special attention is paid to new techniques to increase the efficiency of harmonic conversion. In particular, successes are demonstrated in such areas as (i) resonant amplification of single harmonics, (ii) amplification of harmonic groups caused by quasi-phase matching of interacting waves in various spectral ranges, (iii) two- and three-color plasma pumping to generate odd and even harmonics and parametric waves, (iv) the use of quantum dots and nanoparticles for amplification of harmonics of lower orders and other results. The prospects and potential applications of this method of generating coherent shortwave radiation in the extreme ultraviolet region of the spectrum are discussed. It also compares with another methods of harmonics generation.

Keywords: generation of high-order harmonics; laser plasma; extreme ultraviolet radiation; resonant harmonic amplification; quasi-phase matching; two-color pump of plasma; nanoparticles; conversion efficiency

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

Bibliography — 156 references

Uspekhi Fizicheskikh Nauk **196** (9) 938–964 (2026)

DOI: <https://doi.org/10.3367/UFNr.2026.04.040135>

Received 22 January 2026, revised 30 April 2026

Physics – Uspekhi **69** (9) (2026)

DOI: <https://doi.org/10.3367/UFNe.2026.04.040135>