

# Генерация высших гармоник пикосекундного излучения умеренной интенсивности в лазерной плазме

Г.С.Болтаев, Р.А.Ганеев, И.А.Кулагин, Н.Х.Сатликов, Т.Усманов

*Представлены результаты исследований генерации высших гармоник (вплоть до 21-го порядка) пикосекундного излучения Nd:YAG-лазера ( $\tau = 38$  пс) в плазме, созданной в процессе лазерной абляции поверхности металлов и углеродсодержащих материалов. Показана возможность генерации высших гармоник в вакуумном ультрафиолетовом диапазоне спектра (с длиной волны излучения менее 120 нм) в плазменных образованиях с эффективностью  $\sim 0.7 \times 10^{-4}$ . Получено семикратное превышение интенсивности 7-й гармоники над 5-й в углеродсодержащей плазме.*

**Ключевые слова:** генерация высших гармоник, пикосекундное излучение, лазерная плазма, металлы, углеродсодержащие материалы

## 1. Введение

Исследования в области генерации высших гармоник (ГВГ) лазерного излучения интенсивно проводятся в течение последних двух десятилетий. Техническим стимулом к проведению этих исследований стали разработка и создание источников мощного лазерного излучения фемтосекундной длительности [1, 2]. Высокая интенсивность излучения, достигаемая при сравнительно небольших размерах и простоте подобных лазерных источников, позволила кардинально увеличить максимальный порядок высших гармоник и дала возможность говорить о практическом применении когерентного коротковолнового излучения в диагностике плазмы, в биологии, микроскопии, фотолинтографии и т. п. Увеличение порядка генерируемых гармоник создало перспективный метод получения мягкого рентгеновского излучения [3, 4], альтернативный рентгеновским лазерам и лазерам на свободных электронах [5, 6]. В настоящее время существуют два основных способа ГВГ: в газообразных средах и от поверхности твердой мишени. Первый способ, в отличие от второго, не требует сверхвысоких интенсивностей световых полей, при этом интенсивность используемого лазерного излучения обычно не превышает  $10^{15}$  Вт/см<sup>2</sup>. ГВГ в инертных газах значительно расширила спектральный диапазон получаемого когерентного излучения до необходимого в биологических исследованиях окна прозрачности воды (2.3–4.6 нм и ниже) и служит основной для получения аттосекундных импульсов [7].

Однако, несмотря на разнообразие диапазонов используемой длительности и интенсивности лазерного излучения [8, 9], эффективность преобразования энергии в

излучение гармоник остается низкой ( $10^{-5}$ – $10^{-7}$ ). В рамках трехступенчатой модели в соответствии с известным законом для предельной энергии фотона генерируемого излучения [10]  $h\omega_b \approx I + 3U_p$  (здесь  $I$  – потенциал ионизации,  $U_p$  – пондеромоторная энергия электрона в лазерном поле) увеличение коротковолнового диапазона при одной и той же интенсивности лазерного излучения возможно в средах с более высоким потенциалом ионизации. Для этих целей были реализованы попытки использования частиц с таким потенциалом, в частности ионов плазмы [11–13]. Использование плазмы открывает гораздо более широкие возможности изменения параметров нелинейной среды, т. к. плазменные сред значительно больше, чем газовых. Однако в первоначальных экспериментах увеличения предельной энергии фотона гармоники и эффективности ГВГ достигнуто не было. Дальнейшие исследования показали, что в качестве нелинейной среды для ГВГ в вакуумном ультрафиолетовом и мягком рентгеновском диапазонах целесообразно применение низкотемпературной и слабозбужденной плазмы [14, 15]. Использование плазмы при реализации оптимальных условий позволило повысить как наивысший порядок генерируемой гармоники (до 101-й гармоники), так и эффективность ГВГ в условиях, близких к резонансным (в отдельных спектральных диапазонах – до  $\sim 10^{-4}$ ) [16, 17]. Тем не менее, несмотря на определенные успехи в области ГВГ, эффективность преобразования энергии в высшие гармоники остается на уровне, пригодном только для диагностических целей. В связи с этим не прекращаются попытки разработки новых методик и поиска новых сред для повышения интенсивности и энергии излучения высших гармоник [18–20].

Очевидно, что при одной и той же эффективности ГВГ плотность энергии гармоники при использовании пикосекундных импульсов выше по сравнению с фемтосекундным лазерным излучением в связи с большей энергией импульсов в первом случае. Кроме того, сравнительно низкая стоимость пикосекундных установок облегчает практическое применение подобных источников когерентного излучения в вакуумном УФ и мягком рентгеновском диапазонах.

Г.С.Болтаев, Р.А.Ганеев, И.А.Кулагин, Н.Х.Сатликов, Т.Усманов.  
Институт ионно-плазменных и лазерных технологий АН РУз,  
Узбекистан, 100125 Ташкент, Академгородок;  
e-mail: ilya\_kulagin@list.ru, rashid\_ganeev@mail.ru,  
timurbek\_usmanov@mail.ru

Поступила в редакцию 25 мая 2012 г, после доработки – 16 июля 2012 г.

В настоящей работе нами исследована эффективность генерации высших гармоник пикосекундного излучения Nd:YAG-лазера в плазме, созданной в процессе лазерной абляции поверхности целого ряда металлов и углеродсодержащих материалов. Проведена оптимизация параметров среды и лазерного излучения с целью получения излучения гармоник с более высокой плотностью энергии в диапазоне длин волн 50–220 нм, а также проанализированы возможности и механизмы повышения эффективности ГВГ в подобных средах.

## 2. Экспериментальная установка

В качестве источника излучения использовался Nd:YAG-лазер ( $\lambda = 1064$  нм) с пассивной синхронизацией мод, генерирующий цуг импульсов с длительностью отдельного импульса 38 пс и работающий с частотой следования 1.5 Гц (рис. 1). После выделения одиночного импульса и его усиления в двух усилителях излучение разделялось на две части. Первая часть излучения (энергия в импульсе  $\sim 5$  мДж) использовалась в качестве греющего импульса и направлялась через фокусирующую линзу на поверхность мишени, расположенной в вакуумной камере. Максимальная использовавшаяся интенсивность греющего импульса была равна  $\sim 10^{11}$  Вт/см<sup>2</sup>. Вторая часть лазерного импульса (зондирующий импульс с энергией 28 мДж) после определенной временной задержки фокусировалась параллельно поверхности мишени в область плазменного факела. Максимальная интенсивность зондирующего импульса составляла  $4 \times 10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup>. Для определения оптимальной временной задержки между импульсами в диапазоне 5–150 нс исследовалась эффективность ГВГ для разных задержек. Излучение зондирующего импульса и высших гармоник разделялось в вакуумном монохроматоре ВМР-2. Излучение гармоник в диапазоне 50–300 нм детектировалось с помощью сцинтиллятора (салицилат натрия, СН) и фотоэлектронного умножителя (ФЭУ).

Мишени представляли собой пластины с размерами  $5 \times 5 \times 2$  мм. В качестве материалов мишени использовались различные металлы (медь, хром, цинк, молибден, титан, олово, свинец, тантал, марганец, золото, серебро, бор и алюминий), а также углеродсодержащие материалы (графит, стеклоуглерод, пирографит, карбид бора, карбид кремния, стержень карандаша). Для изменения положения мишени и соответственно области взаимодействия плазмы с зондирующим излучением относительно плоскости мишени использовался трехкоординатный манипулятор.

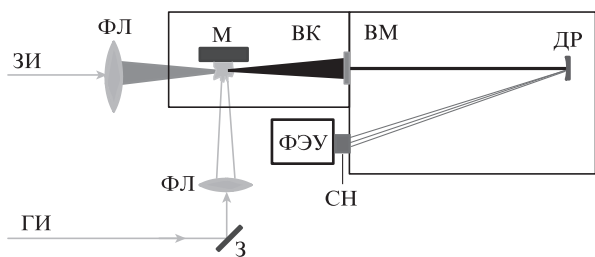


Рис.1. Схема экспериментальной установки: ЗИ – пикосекундное зондирующее излучение; ГИ – пикосекундное греющее излучение; З – зеркало; ФЛ – фокусирующие линзы; ВК – вакуумная камера; М – мишень; ВМ – вакуумный монохроматор; ДР – дифракционная решетка; СН – салицилат натрия; ФЭУ – фотоэлектронный умножитель.

## 3. Спектры свечения плазмы

Важную информацию о параметрах плазмы можно получить на основе анализа спектров ее свечения. Ниже анализируются усредненные по времени спектры свечения плазмы различных металлов и углеродсодержащих материалов, использовавшихся для ГВГ при распространении пикосекундного зондирующего излучения через плазменный факел. Эти исследования направлены на определение оптимальных условий создания плазменных образований для эффективной ГВГ. Анализ спектров свечения атомов и ионов лазерной плазмы проводился в видимом и УФ диапазонах (300–700 нм). Для регистрации спектров свечения плазмы использовался волоконный спектрометр HR4000.

На рис.2,а представлен спектр свечения плазмы, генерируемой на поверхности цинка, который соответствует условиям создания «оптимальной плазмы» (с точки зрения наилучшей эффективности ГВГ). Для этого в диапазоне 80–200 нм были получены максимальные эффективности гармоник и затем определены спектральные характеристики лазерной плазмы, созданной в данных условиях. Из рисунка видно, что зарегистрированные спектральные ли-

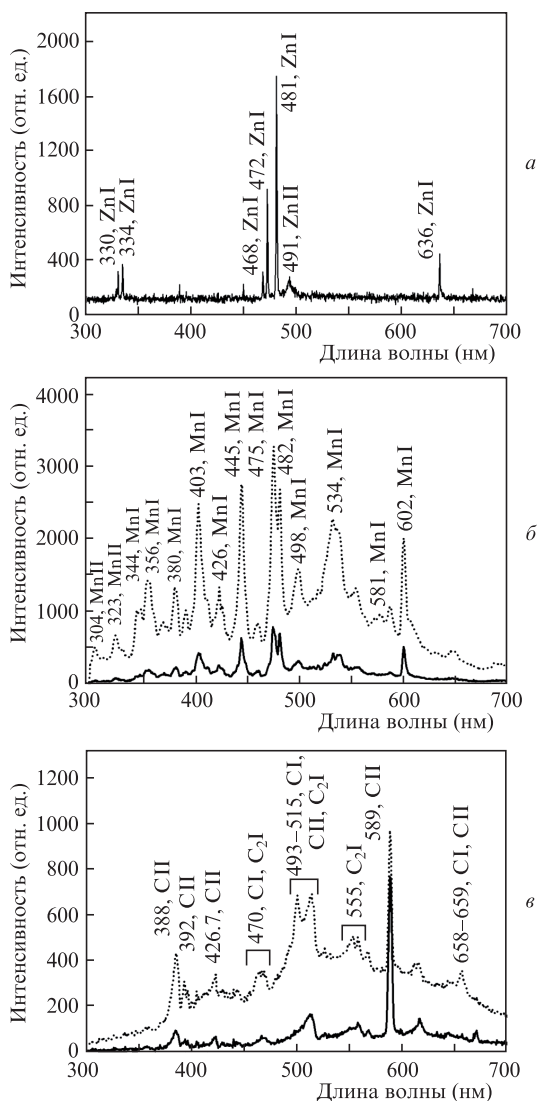


Рис.2. Спектр свечения плазмы цинка (а), марганца (б) и графита (в).

нии в основном обусловлены переходами между состояниями нейтральных атомов и однократно заряженных ионов.

При облучении металлов увеличение интенсивности греющего импульса свыше  $10^{11}$  Вт/см<sup>2</sup> приводило как к увеличению интенсивности свечения нейтральных атомов и однократно заряженных ионов и уширению спектров, так и к появлению новых спектральных линий, присущих ионам с большей кратностью ионизации. В результате изменения состава плазмы сразу же значительно снижалась эффективность ГВГ практически во всех исследованных плазменных образованиях. Спектры свечения плазмы при больших интенсивностях греющего импульса представлены на рис.2,б и в. Сплошные и точечные линии соответствуют слабой и сильному возбуждению мишеней. Видны также изменения структуры спектров и интенсивностей свечения плазмы, созданной на поверхностях мишеней из марганца и графита.

Потенциалы ионизации атомов и однократно заряженных ионов углерода выше потенциалов ионизации металлов и равны 11.25 и 24.38 эВ соответственно. При оптимальной абляции графита плазма углерода практически полностью состоит из нейтральных атомов и однократно заряженных ионов, что подтверждается измерениями спектров свечения в видимом и УФ диапазонах (рис.2,в). На этом рисунке показаны спектральные линии, характерные для большинства использованных углеродсодержащих материалов, которые соответствуют переходам между состояниями С I и С II. В спектрах наблюдались также возбужденные состояния С<sub>2</sub>.

Последующие исследования показали, что для большинства плазменных образований чрезмерное возбуждение плазмы в процессе лазерной абляции ведет к радикальному снижению эффективности ГВГ, однако в отдельных случаях это может приводить к увеличению порядка предельной генерируемой гармоники.

#### 4. Оптимизация процесса ГВГ в плазме

В первой серии экспериментов было проанализировано влияние поляризации зондирующего излучения на эффективность ГВГ. На рис.3 представлены зависимости 5-й и 7-й гармоник от угла вращения четвертьволновой пластинки, которая изменяла поляризацию зондирующего излучения от линейной (при 0°) до круговой (при 45°). Небольшое отклонение от линейной поляризации приводило к существенному снижению интенсивности излучения гармоник. В случае излучения с круговой поляриза-

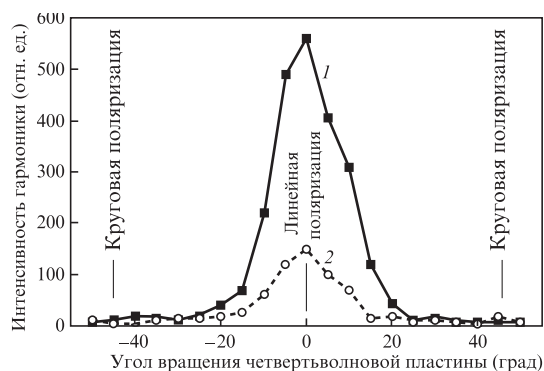


Рис.3. Зависимости интенсивностей 5-й (1) и 7-й (2) гармоник в плазме пирографита от угла вращения четвертьволновой пластинки.

цией гармоники исчезали, что соответствует теории генерации гармоник в изотропных средах [21].

Для оптимизации ГВГ был проанализирован ряд свойств гармоник в плазме, созданной в процессе лазерной абляции. Важным параметром оптимизации ГВГ является время задержки между греющим и зондирующим импульсами. Типичные зависимости интенсивности гармоники от времени задержки между этими импульсами для плазмы углерода, марганца и свинца представлены на рис.4. На начальной стадии формирования и разлета плазмы от поверхности мишени в зоне взаимодействия с зондирующим излучением концентрация частиц (нейтральных атомов и однократно заряженных ионов) была недостаточной, т.к. частицы плазмы не успевали достигнуть оси распространения зондирующего излучения, находящейся на расстоянии  $\sim 100$  мкм от поверхности мишени. Если время задержки было равно времени, необходимому для достижения частицами плазмы зоны взаимодействия, эффективность ГВГ возрастала. Дальнейшее увеличение времени задержки приводило к насыщению ГВГ и к последующему снижению эффективности при больших временах задержки.

Из анализа рис.4 следует, что для разных плазменных образований времена оптимальной задержки различны: для плазмы С, Mn и Pb они составляли 25, 30 и 90 нс соответственно. Изменение времени задержки связано с различием начальных скоростей частиц разных элементов. В соответствии с гидродинамической моделью испарения плазмы с газодинамическими граничными условиями [22] начальная скорость частиц определяется их массой, энергией связи в твердом теле, частотой Дебая и поглощенной плотностью мощности лазерного излучения. В рамках данной модели среди исследованных материалов при одинаковой поглощенной плотности мощности излучения начальная скорость атомных частиц свинца является наименьшей, и, таким образом, эффективная ГВГ должна наблюдаться при большей временной задержке между мишенями и зондирующим импульсами по сравнению с мишенями из материалов с меньшим атомным числом. Таким образом, оптимальное время задержки может уменьшаться при увеличении плотности мощности греющего импульса. Однако при этом возрастет степень возбуждения плазмы. В условиях сильного возбуждения в большинстве исследованных нами плазменных

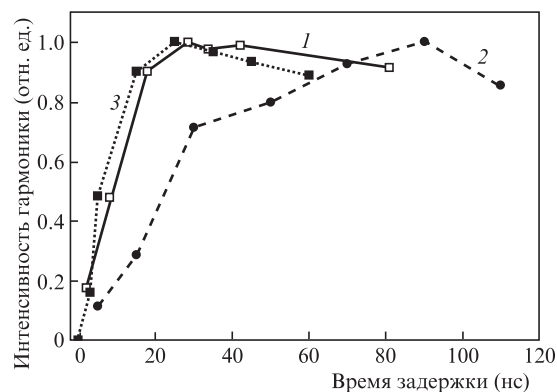


Рис.4. Зависимости интенсивностей гармоник от времени задержки между греющим и зондирующим импульсами в плазме марганца (1), свинца (2) и графита (3).

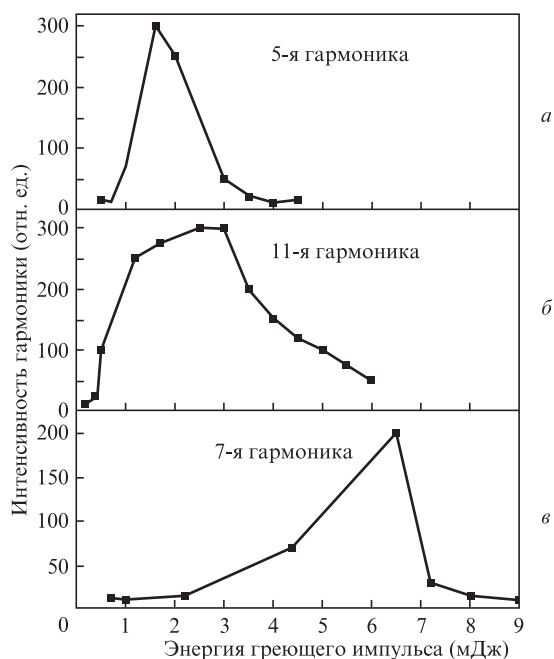


Рис.5. Оптимальная энергия греющего импульса в плазме марганца (а), свинца (б) и графита (в).

образований наблюдалось лишь ограниченное число гармоник с меньшими эффективностями преобразования.

Были измерены зависимости эффективности ГВГ от энергии греющего импульса при одних и тех же размерах перетяжки данного пучка на поверхности мишени (~500 мкм) (рис.5). В частности было обнаружено уменьшение сигнала 5-й гармоники, генерируемой в плазме Mn, при энергии греющего импульса свыше 1.5 мДж (рис.5,а). В плазме свинца наблюдалось снижение сигнала 11-й гармоники при энергии более 3 мДж, что соответствует плотности мощности  $10^{11}$  Вт/см<sup>2</sup> (рис.5,б). В плазме, генерируемой на поверхности пирографита, сигнал 7-й гармоники уменьшался при энергии греющего импульса свыше 6.5 мДж (рис.5,в). Общей особенностью представленных зависимостей являлось резкое снижение интенсивности гармоник при облучении поверхности греющим импульсом с энергией, превышающей определенный уровень. Причина этого снижения – перевозбуждение плазмы, которое ведет к появлению свободных электронов и многократно заряженных ионов и к соответствующему нарушению условий фазового согласования между волнами зондирующего излучения и гармоник. Этот эффект более существен для генерации гармоник низкого порядка. Отметим, что снижение эффективности преобразования частоты лазерного излучения в высоковозбужденной плазме наблюдалось ранее и для гармоник гораздо более высокого порядка [23], хотя снижение эффективности преобразования было меньше, чем в настоящих исследованиях.

## 5. Распределение высших гармоник

Общей чертой практически всех спектральных зависимостей гармоник, генерируемых в перевозбужденной плазме металлов, было характерное снижение эффективности преобразования – резкое для гармоник низкого порядка и постепенное для гармоник более высокого порядка (выше 9-го), вплоть до коротковолновой границы области регистрации монохроматора (~50 нм, 21-я гармо-

ника). На рис.6 представлены характерные спектры ГВГ, полученные в плазме Sn, Cr, Al и C. Эффективность ГВГ в плазме Sn и Cr являлась соответственно самой высокой и самой низкой во всем спектральном диапазоне распределения гармоник (рис.6,а и б) по сравнению с другими материалами. Отметим, что, несмотря на существенное различие материалов, большинство исследованных плазменных образований обладало сравнимыми значениями эффективности.

Хотя большинство плазменных образований и продемонстрировали близкие свойства в процессе ГВГ, в отдельных материалах наблюдались нетривиальные спектральные распределения гармоник. В частности в ряде случаев в пределах границ регистрации отсутствовала генерация для гармоник выше 9-й. Например, такое поведение продемонстрировала плазма, созданная на поверхности алюминия (рис.6,в).

Измерение абсолютной эффективности преобразования осуществлялось по следующей методике. На первом этапе с помощью системы регистрации монохроматор + салицилат натрия + ФЭУ измерялся сигнал 4-й гармоники (длина волны 266 нм) с известной энергией, генерируемой в нелинейных кристаллах. Это позволило откалибровать систему регистрации гармоник в данном спектральном диапазоне. Так как квантовая эффективность люминесценции салицилата натрия постоянна в широком спектральном диапазоне (30 – 350 нм), калибровка системы регистрации в области 266 нм дала возможность рассчитать абсолютные эффективности преобразования для гармоник более высокого порядка. Эффективности преобразования для плазменных образований, генерируемых на поверхности металлов, представлены в табл.1.

На рис.6,г представлено типичное для исследованных углеродсодержащих материалов распределение гармоник в

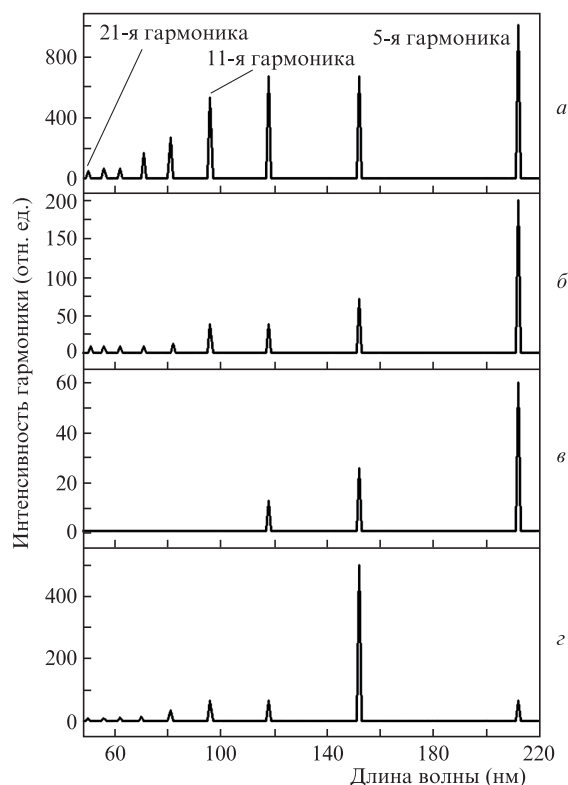


Рис.6. Спектральное распределение высших гармоник в плазме олова (а), хрома (б), алюминия (в) и графита (г).

Табл. 1. Эффективности преобразования в плазме металлов ( $\times 10^{-6}$ ).

Номер гармоники	Длина волны (нм)	Sn	Zn	Mn	Ti	Cu	W	Au	B	Ta	Ag	Cr	Mo	Si	Al
5	213	100	80	80	70	46	46	40	40	26	20	20	4.2	3.83	6
7	152	66	66	20	20	33	40	33	13	10	16	7.1	3.8	1.75	2.59
9	118	66	53	10	12	15	38	26	3	3	10	3.8	2.5	1.75	1.33
11	97	53	40	6.6	6.6	13	33	20	1.3	1.8	6.6	3.8	2.1	0.91	
13	82	26	4	2.1	4.6	2.5	7	1.8	1	0.9	2.6	1.3	0.9	0.91	
15	71	16	4	1.75	3.3	0.9	5	1.3		0.9	1.3	0.9			
17	63	6	1.7	1.3	2.1	0.9		1.3		0.9	1	0.9			
19	56	6	1.7	1.3	2.1	0.83		0.9		0.75	1	0.9			
21	51	4	1	1.3	2.1	0.75		0.9		0.75	1	0.9			

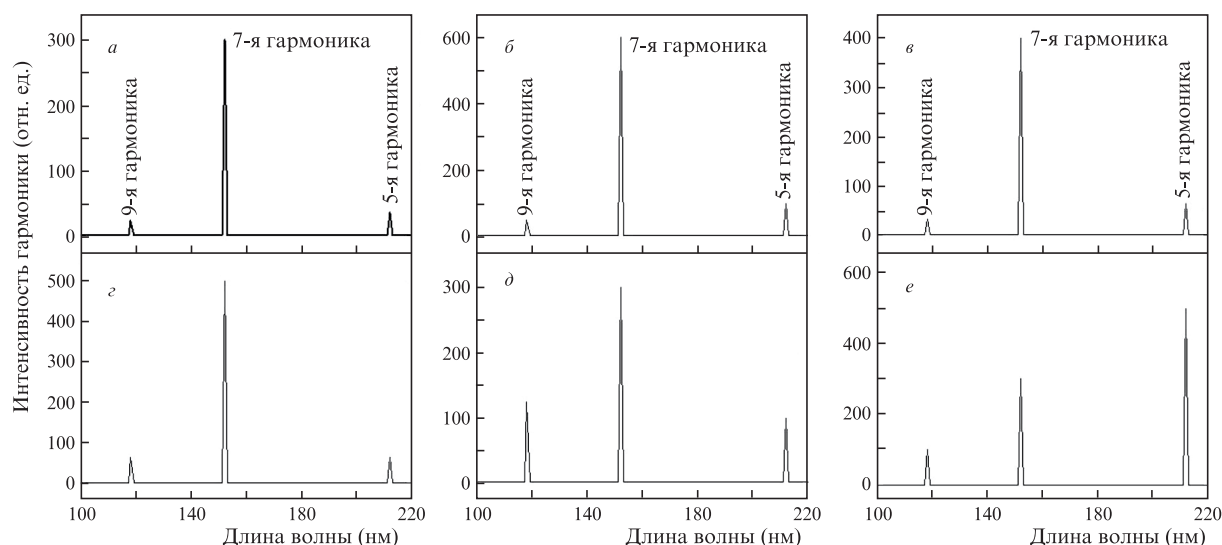


Рис. 7. Распределения интенсивностей 5-й, 7-й и 9-й гармоник в плазме углеродсодержащих материалов – графита (а), стеклоуглерода (б), пирографита (в), стержня карандаша (г), карбида кремния (д) и карбида бора (е).

плазме, генерируемой на поверхности графита. Интересной особенностью данных наблюдений является сравнительно высокая эффективность генерации 7-й гармоники, которая доминирует над остальными. Эта эффективность значительно (в четыре-восемь раз) превышает эффективность генерации более низкой, 5-й, гармоники, начиная с минимальной ( $7 \times 10^{12}$  Вт/см<sup>2</sup>) интенсивности зондирующего излучения, при которой уверенно регистрировался сигнал гармоник, и заканчивая максимальной интенсивностью ( $4 \times 10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup>). В частности в плазме пирографита при интенсивностях зондирующего излучения  $1.2$ ,  $2.5$  и  $3.7 \times 10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup> отношение сигналов 7-й и 5-й гармоник составило 5.5, 4.5 и 8.3 соответственно. При этом в исследованном диапазоне плотности мощности зависимость сигнала 7-й гармоники от интенсивности зондирующего излучения была близка к степенной зависимости второго порядка. Начиная с  $10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup>, показатель степени данной зависимости уменьшался до единицы, однако в области от  $2.5$  до  $3 \times 10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup> он возрастал, а с дальнейшим увеличением интенсивности зондирующего излучения снова уменьшался. Зависимость сигнала 5-й гармоники от интенсивности зондирующего излучения также была близка к степенной зависимости второго порядка, показатель степени которой снижался при интенсивности зондирующего излучения свыше  $2 \times 10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup>. Таким образом, зависимости интенсивностей 5-й и 7-й гармоник от интенсивности зондирующего излучения насыщались, что существенно отличало их от тради-

ционных степенных зависимостей пятого и седьмого порядков.

В соответствии с обычной теорией возмущений, справедливой при интенсивности поля меньшей внутриатомной, интенсивность каждой следующей по порядку гармоники должна быть ниже интенсивности предыдущей гармоники [21]. Тем не менее увеличение сигнала 7-й гармоники относительно 5-й наблюдалось практически во всех углеродсодержащих материалах (рис. 7). Исключение составила плазма, генерируемая на поверхности карбида бора (рис. 7, д). Другой особенностью ГВГ в плазме углеродсодержащих материалов является относительно низкий сигнал 5-й гармоники по сравнению с 9-й. Возможные причины такого поведения обсуждаются ниже. Эффективности ГВГ в плазме, созданной на поверхности углеродсодержащих материалов, приведены в табл. 2.

## 6. Обсуждение результатов

Наши исследования продемонстрировали высокие эффективности преобразования излучения в гармоники низших порядков, что создает предпосылки для создания эффективного источника когерентного излучения в диапазоне спектра 100–200 нм. Такие металлы как Sn, Zn, Mn и Ti лучше подходят для получения более высоких эффективностей преобразования пикосекундного излучения. Измеренные эффективности генерации 7-й гармоники (152 нм) в ряде материалов достигали  $\sim 10^{-4}$ . В плазме Sn эффективность преобразования в 11-ю гармонику (97 нм)

Табл.2. Эффективности преобразования в плазме углеродсодержащих материалов ( $\times 10^{-6}$ ).

Номер гармоники	Длина волны (нм)	Пирографит	Стержень карандаша	Стеклоуглерод	Графит	Карбид кремния	Карбид бора
5	213	6.6	6.6	10	3.6	6.6	2.85
7	152	50	40	60	30	20	2.14
9	118	6.6	3.3	5	2.33	8.3	1.42
11	97	6.6	2.6	2.6	2	1.6	1.42
13	82	3.3	1.2	0.91	0.79	0.83	
15	71	1.3	0.75	0.79	0.75	0.6	
17	63	1.12	0.7	0.7	0.7		
19	56	0.91	0.7	0.7	0.7		
21	51	0.91	0.7	0.7	0.7		

была всего в два раза меньше и составляла  $\sim 0.5 \times 10^{-4}$ . Отметим, что и в остальных материалах эффективность преобразования между 13-й и 21-й гармониками была равна  $10^{-5} - 10^{-6}$ .

Эффективность преобразования излучения в плазме углеродсодержащих материалах была примерно на порядок ниже, чем в плазме, образованной на поверхности металлов. Исключение составила 7-я гармоника, эффективность генерации которой была сравнима с эффективностью для той же гармоники в плазме металлов. Относительное увеличение сигнала 7-й гармоники и снижение сигнала 5-й может быть обусловлено поглощением последней. Однако предыдущий анализ продемонстрировал отсутствие поглощения в углеороде на длине волны 5-й гармоники ( $\lambda = 213$  нм) [24], что должно препятствовать относительному снижению ее сигнала. Отметим, что зависимость сигнала гармоник от интенсивности зондирующего излучения насыщалась и не соответствовала степенной зависимости с показателем степени порядка номера гармоники.

Изменение нелинейного отклика на определенных частотах излучения возможно благодаря резонансным переходам в атомах и ионах. Атомы и ионы углерода имеют ряд переходов с длиной волны, близкой к длине волны 7-й гармоники излучения Nd:YAG-лазера ( $\lambda = 152$  нм). Среди них:  $2s^2 2p^2 1D - 2s^2 2p 3d^1 D^0$  (CI,  $\lambda = 148.2$  нм),  $2s^2 2p^2 3P - 2s 2p^3 3D^0$  (CI,  $\lambda = 156.0$  нм) и  $1s^2 2s^1 2S - 1s^2 2p^2 P^0$  (CIV,  $\lambda = 154.8$  нм) [24]. На ранних этапах работ по ГВГ на низших нелинейностях интенсивно исследовалось использование атомных резонансов для повышения эффективности преобразования лазерного излучения (см. напр., [21] и ссылки в ней). В частности было показано, что относительное превышение в гелии сигнала 5-й гармоники над 3-й излучения с длиной волны 266 нм (4-я гармоника Nd:YAG-лазера) обусловлено увеличением нелинейности пятого порядка вблизи резонанса [25]. Теоретический анализ возможности реализации резонансных условий для ГВГ в области плато в газовых средах, осуществляемый в последнее десятилетие, выявил перспективность этой методики повышения эффективности генерации гармоник [26–30]. Между тем экспериментальные исследования по реализации резонансного усиления гармоник в газовых средах не подтвердили такой возможности.

Гораздо более богатый (по сравнению с газами) выбор плазменных образований делает плазменные среды более перспективными. Первые же исследования в средах с различным набором соответствующих мишеней, выполненные при оптимальном возбуждении, обнаружили рост эффективности генерации отдельных гармоник вблизи резонансных переходов этих материалов [31–33]. В частности в плазме индия наблюдалось значительное (200-крат-

ное) повышение сигнала 13-й гармоники ( $\lambda = 61$  нм) фемтосекундного излучения титан-сапфирового лазера ( $\lambda = 790$  нм), обусловленное влиянием сильного перехода в автоионизационное состояние [31]. Для подтверждения влияния резонансных переходов использовалась перестройка длины волны широкополосного лазерного излучения или изменение chirpa импульса. Однако в случае узкополосного излучения Nd:YAG-лазера эта методика неприменима.

Предпринятые недавно попытки теоретического объяснения наблюдаемых экспериментальных результатов повышения интенсивности одиночной гармоники в резонансных условиях [34–40] показали, что вблизи резонанса эффективность ГВГ единственным атомом или ионом существенно повышается в рамках трехступенчатой и четырехступенчатой моделей, а также модели суперпозиции резонансных состояний. Полученное повышение эффективности отдельных гармоник было близко к экспериментальным данным. В [35] показано, что влияние автоионизационных состояний на фазовое согласование может приводить к эффективному усилению 21-й гармоники в плазме кальция с эффективностью  $\sim 10^{-3}$ . Таким образом, рост эффективности в резонансных условиях наряду с изменением отклика отдельной частицы также кардинально зависит от нелинейного взаимодействия волн в процессе их распространения.

Ниже приведены оценки влияния вклада процессов резонансного повышения нелинейной восприимчивости и нелинейного взаимодействия волн в рамках теории возмущений (в нашем случае максимальная амплитуда лазерного поля была в  $\sim 30$  раз меньше внутриатомного поля атома углерода). Выше отмечалось, что нелинейная среда в основном состоит из нейтральных атомов и однократно заряженных ионов углерода. Присутствие свободных электронов также увеличивает степень варьирования параметров плазменной среды. Атомы углерода могут находиться в синглетных и триплетных состояниях. Согласно оценкам, проведенным на основе анализа переходов из начального основного состояния атомов углерода, отношение ответственных за генерацию гармоник абсолютных значений нелинейностей 7-го и 5-го порядков  $r = |\chi^{(7)} / \chi^{(5)}|$  не превышает  $7 \times 10^{-12}$  ед. СГСЭ. В расчетах нелинейностей, основанных на известных выражениях (см., напр., [21]), использовались значения частот переходов и сил осцилляторов из таблиц [24] и, во избежание неопределенности знака соответствующего матричного элемента оператора дипольного момента, учитывались только четные комбинации переходов между атомными и ионными состояниями. Оценки показали, что из-за близости к резонансным условиям (для атомов углерода отстройка от семифотонного резонанса как для триплетного, так и

для синглетного состояния составляла  $\sim 1690 \text{ см}^{-1}$ ) резонансная нелинейность седьмого порядка превышала нерезонансную нелинейность в  $\sim 10$  раз. В соответствии с приведенным отношением нелинейностей  $r$  оценки изменения интенсивности гармоник на основе соотношений [14, 21] в условиях, когда дифракционная длина зондирующего пучка больше длины плазменного образования, показали, что в пренебрежении влиянием фазового расогласования и максимальной интенсивности зондирующего излучения  $I = 7 \times 10^{12} \text{ Вт/см}^2$  отношение интенсивностей 7-й и 5-й гармоник  $\gamma = I_7/I_5$  не превышало  $3 \times 10^{-2}$ . Таким образом, согласно оценкам для одиночного атома углерода интенсивность 5-й гармоники в исследованном интервале интенсивностей накачки должна была быть выше интенсивности 7-й гармоники.

Отметим, что для относительного превышения сигнала 7-й гармоники над 5-й при  $I = 0.7 \times 10^{13} \text{ Вт/см}^2$  необходимо, чтобы отношение  $r$  было на порядок больше, и, как следует из сравнения расчетных и экспериментальных значений нелинейностей высокого порядка, это возможно. Однако в этом случае с ростом в эксперименте интенсивности зондирующего излучения до максимального значения ( $I = 4 \times 10^{13} \text{ Вт/см}^2$ ) отношение интенсивностей  $\gamma$  должно увеличиться в  $\sim 35$  раз, чего в эксперименте не наблюдалось. С ростом интенсивности зондирующего излучения сигналы как 5-й, так и 7-й гармоник насыщались.

Рассмотрим процессы, которые могут привести к изменению и насыщению эффективности генерации гармоник при нелинейном взаимодействии волн. Значения фазовой расстройки  $\Delta k_q = k_q - k_1$  (здесь  $k_q$  – волновое число  $q$ -й гармоники) 5-й и 7-й гармоник положительны для ионов углерода и атомов углерода, находящихся в основном синглетном состоянии. Фазовая расстройка для электронного газа также положительна. Следовательно, в этом случае общая фазовая расстройка для плазменного образования должна быть положительной. Фазовая расстройка для 7-й гармоники атомов углерода, находящихся в начальном основном триплетном состоянии, отрицательна. Добавление 5% электронного газа и ионов углерода способно привести к фазовому согласованию 7-й гармоники и основного излучения в такой среде. В то же время для 5-й гармоники фазовая расстройка  $\Delta k_5$  растет. При больших фазовых расстройках зависимости интенсивности гармоник от длины среды приобретают осциллирующий характер, и возможно подавление сигнала 5-й гармоники и его снижение ниже сигнала 7-й. Расчеты показывают, что при длине плазменного образования 0.5 мм подобная ситуация происходит при концентрации атомов углерода, находящихся в основном триплетном состоянии,  $1.2 \times 10^{19} \text{ см}^{-3}$ , что на порядок выше оценочной концентрации плазмы.

Влияние линейной фазовой расстройки  $\Delta k_q$  не изменяет степенной зависимости сигнала гармоники от интенсивности зондирующего излучения. В условиях резонанса к ее насыщению может привести штарковский сдвиг резонансного уровня или насыщение резонансного перехода. Однако при отстройке от резонанса  $1690 \text{ см}^{-1}$  эти факторы не должны играть значительной роли. В нерезонансных условиях насыщение и последующие осцилляции могут быть обусловлены влиянием керровских нелинейностей, т. е. зависящим от интенсивности изменением показателей преломления среды на основной частоте и частоте гармоники. Оценки керровских нелинейностей, проведенные на основе данных работ [21, 41], показыва-

ют, что для атомов углерода, находящихся в основном синглетном состоянии, нелинейные фазовые расстройки для 7-й и 5-й гармоник имеют один и тот же знак, тогда как для триплетного состояния они противоположны по знаку и несколько меньше по абсолютному значению. В последнем случае нелинейная расстройка для 7-й гармоники компенсирует линейную расстройку, обусловленную влиянием свободных электронов. В связи с этим вблизи значений использовавшейся концентрации плазмы ( $(1-2) \times 10^{18} \text{ см}^{-3}$ ) и отношения концентрации атомов в триплетном состоянии к концентрации атомов в синглетном состоянии, а также к концентрации однократно заряженных ионов (и свободных электронов) порядка 0.3 существует сравнительно широкий диапазон изменения параметров среды, в котором интенсивность 7-й гармоники превышает интенсивность 5-й. При этом нелинейный фазовый сдвиг приводит к насыщению сигнала обеих гармоник.

Отметим, что нелинейная фазовая расстройка 9-й гармоники отрицательна для атома углерода, находящегося в основных синглетном и триплетном состояниях, что позволяет компенсировать фазовую расстройку, обусловленную влиянием свободных электронов, и увеличить сигнал 9-й гармоники относительно 5-й.

Проведенные оценки также подтвердили наблюдаемую картину ГВГ в плазме, созданной на поверхности карбида бора. По сравнению с углеродом атом бора имеет гораздо большие нелинейности, ответственные как за генерацию гармоник, так и за изменение показателя преломления. А с учетом того, что энергия связи атомов карбида бора выше, а следовательно, ниже плотность лазерной плазмы, в которой атомов и ионов бора должно быть в четыре раза больше, чем углерода, это полностью изменяет характер нелинейного взаимодействия и эффективность ГВГ.

Напомним, что одно из первых наблюдений ГВГ (вплоть до 21-го порядка) в газах, которое стимулировало интерес к данной области нелинейной оптики, было проведено также с помощью излучения Nd:YAG-лазера с интенсивностью  $3 \times 10^{13} \text{ Вт/см}^2$  [1]. Наши исследования показали, что применение в качестве нелинейной среды плазменных образований, генерируемых на поверхности различных мишеней, может усовершенствовать методику получения когерентного излучения в области вакуумного ультрафиолета, в частности за счет большей энергии зондирующего пикосекундного излучения по сравнению с фемтосекундными лазерами и большего выбора материалов мишени.

## 7. Заключение

В настоящей работе приведены экспериментальные данные по ГВГ сравнительно длинных (относительно использованных ранее) импульсов лазерного излучения с умеренной интенсивностью в плазме, созданной при довольно несложном процессе лазерной абляции поверхности металлов и углеродсодержащих материалов. Было продемонстрировано эффективное преобразование частоты пикосекундного излучения Nd:YAG-лазера в высшие гармоники в плазме металлов с большой энергией импульса в спектральном диапазоне 50–220 нм. В частности эффективность преобразования в 11-ю гармонику ( $\lambda = 97 \text{ нм}$ ) в плазме олова составила  $\sim 0.5 \times 10^{-4}$ . Эффективность преобразования между 13-й и 21-й гармониками для большинства плазменных образований была равна  $\sim 10^{-5}$

–  $10^{-6}$ . Интересной особенностью этих исследований явилось наблюдение превышения интенсивности 7-й гармоники ( $\lambda = 152$  нм) над 5-й в плазме углеродсодержащих материалов. Показано, что в плазме углерода нелинейное фазовое рассогласование приводит к насыщению сигналов гармоник и превышению 7-й гармоники над 5-й в широком диапазоне интенсивностей лазерного излучения, концентрации и состава плазмы.

Работа выполнена при частичной поддержке Академии Наук развивающихся стран (TWAS), грант № 09-113 RG/PHYS/AS\_G.

- Ferray M., L'Huillier A., Li X.F., Lompre L.A., Mainfray G., Manus C. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **21**, L31 (1988).
- McPherson A., Gibson G., Jara H., Johann U., Luk T.S., McIntyre I., Boyer K., Rhodes C.K. *J. Opt. Soc. Am. B*, **4**, 595 (1987).
- Norreys P.A., Zepf M., Moustazis S., Fews A.P., Zhang J., Lee P., Bakarezos M., Danson C.N., Dyson A., Gibbon P., Loukakos P., Neely D., Walsh F.N., Wark J.S., Dangor A.E. *Phys. Rev. Lett.*, **76**, 1832 (1996).
- Vozzi C., Calegari F., Frassetto F., Negro M., Poletto L., Sansone G., Villorosi P., Nisoli M., De Silvestri S., Stagira S. *Laser Phys.*, **20**, 1019 (2010).
- Desai T., Daido H., Suzuki M., Sakaya N., Guerreiro A.P., Mima K. *Laser Part. Beams*, **19**, 241 (2001).
- Kur E., Dunning D.J., McNeil B.W.J., Wurtele J., Zholents A.A. *New J. Phys.*, **13**, 063012 (2011).
- Paul P.M., Toma E.S., Breger P., Mullot G., Auge F., Balcou P., Muller H.G., Agostini P. *Science*, **292**, 1689 (2001).
- Faldon M.E., Hutchinson M.H.R., Marangos J.P., Muffett J.E., Smith R.A., Tisch J.W.G., Wahlström C.-G. *J. Opt. Soc. Am. B*, **9**, 2094 (1992).
- L'Huillier A., Balcou P. *Laser Phys.*, **3**, 654 (1993).
- Krause J.L., Schafer K.J., Kulander K.C. *Phys. Rev. Lett.*, **68**, 3535 (1992).
- Akiyama Y., Midorikawa K., Matsunawa Y., Nagata Y., Obara M., Tashiro H., Toyoda K. *Phys. Rev. Lett.*, **69**, 2176 (1992).
- Theobald W., Wülker C., Schäfer F.P., Chichkov B.N. *Opt. Commun.*, **120**, 177 (1995).
- Wahlström C.-G., Borgström S., Larsson J., Pettersson S.-G. *Phys. Rev. A*, **51**, 585 (1995).
- Ganeev R.A., Kulagin I.A., Suzuki M., Baba M., Kuroda H. *Opt. Commun.*, **249**, 569 (2005).
- Ganeev R.A., Singhal H., Naik P.A., Kulagin I.A., Redkin P.V., Chakera J.A., Taaub M., Khan R.A., Gupta P.D. *Phys. Rev. A*, **80**, 033845 (2009).
- Ganeev R.A., Singhal H., Naik P.A., Arora V., Chakravarty U., Chakera J.A., Khan R.A., Kulagin I.A., Redkin P.V., Raghuramaiah M., Gupta P.D. *Phys. Rev. A*, **74**, 063824 (2006).
- Ganeev R.A., Elouga Bom L.B., Kieffer J.-C., Suzuki M., Kuroda H., Ozaki T. *Phys. Rev. A*, **76**, 023831 (2007).
- Gaudiosi D.M., Reagan B., Popmintchev T., Grisham M., Berrill M., Cohen O., Walker B.C., Murnane M.M., Kapteyn H.C., Rocca J.J. *Phys. Rev. Lett.*, **96**, 203001 (2006).
- Heckl O.H., Baer C.R.E., Kränkel C., Marchese S.V., Schapper F., Holler M., Südmeyer T., Robinson J.S., Tisch J.W.G., Couny F., Light P., Benabid F., Keller U. *Appl. Phys. B*, **97**, 369 (2009).
- Haessler S., Elouga Bom L.B., Gobert O., Hergott J.-F., Lepetit F., Perdrix M., Carre B., Ozaki T., Salieres P. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **45**, 074012 (2012).
- Райнтжес Дж. *Нелинейные оптические параметрические процессы в жидкостях и газах* (М.: Мир, 1987).
- Анисимов С.И., Имас Я.А., Романов Г.С., Ходыко Ю.В. *Действие излучения большой мощности на металлы* (М.: Наука, 1970).
- Ganeev R.A. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **40**, R213 (2007).
- <http://physics.nist.gov/asd>
- Reintjes J., She C.Y. *Opt. Commun.*, **27**, 469 (1978).
- Taieb R., Veniard V., Wassaf J., Maquet A. *Phys. Rev. A*, **68**, 033403 (2003).
- Gaarde M.B., Schafer K.J. *Phys. Rev. A*, **64**, 013820 (2001).
- Toma E.S., Antoine P., de Bohan A., Muller H.G. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **32**, 5843 (1999).
- Zeng Z., Li R., Cheng Y., Yu W., Xu Z. *Phys. Scripta*, **66**, 321 (2002).
- Bartels R., Backus S., Zeek E., Misoguti L., Vdovin G., Christov I.P., Murnane M.M., Kapteyn H.C. *Nature*, **406**, 164 (2000).
- Ganeev R.A., Suzuki M., Baba M., Kuroda H., Ozaki T. *Opt. Lett.*, **31**, 1699 (2006).
- Ganeev R.A., Naik P.A., Singhal H., Chakera J.A., Gupta P.D. *Opt. Lett.*, **32**, 65 (2007).
- Ganeev R.A. *Open Spectrosc. J.*, **3**, 1 (2009).
- Milošević D.B. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **40**, 3367 (2007).
- Kulagin I.A., Usmanov T. *Opt. Lett.*, **34**, 2616 (2009).
- Strelkov V. *Phys. Rev. Lett.*, **104**, 123901 (2010).
- Milošević D.B. *Phys. Rev. A*, **81**, 023802 (2010).
- Frolov M.V., Manakov N.L., Starace A.F. *Phys. Rev. A*, **82**, 023424 (2010).
- Redkin P.V., Danailov M., Ganeev R.A. *Phys. Rev. A*, **84**, 013407 (2011).
- Tudorovskaya M., Lein M. *Phys. Rev. A*, **84**, 013430 (2011).
- Кулагин И.А., Усманов Т. *Квантовая электроника*, **30**, 520 (2000).