

Управление динамикой фотоэлектронов для эффективной трансформации короткоимпульсного частотно-модулированного оптического излучения в рентгеновское

А.А.Силаев, О.В.Мешков, М.Ю.Емелин, Н.В.Введенский, М.Ю.Рябкин

Теоретически исследована генерация гармоник высокого порядка (ГГВП) при ионизации атомов короткими лазерными импульсами с нелинейной частотной модуляцией. Показано, что снижение мгновенного значения частоты лазерного импульса может приводить к существенному увеличению ширины плато в спектре ГГВП. Найдены оптимальные параметры частотной модуляции, при которых возможна эффективная генерация фотонов с энергиями порядка 1 кэВ при относительно небольшой интенсивности лазерного импульса. Высокая эффективность ГГВП при оптимальных параметрах объяснена особенностями динамики процессов ионизации атомов и ускорения фотоэлектронов частотно-модулированным лазерным полем.

Ключевые слова: частотно-модулированное излучение, фемтосекундные импульсы, атомы, ионизация, генерация высоких гармоник, рентгеновское излучение, аттосекундные импульсы, численное моделирование.

1. Введение

Одним из актуальных направлений исследований в фемтосекундной оптике является синтез ультракоротких оптических волновых форм с целью формирования импульсов с произвольной зависимостью электрического поля от времени [1, 2]. В частности достигнут значительный прогресс как в генерации импульсов с огибающими заданной формы, так и в управлении изменениями мгновенного значения электрического поля на масштабах, меньших одного периода его осцилляций (см., напр., [3] и цитируемую там литературу). Прогрессу в этой области способствует развитие техники генерации широкополосных импульсов [4], манипуляции относительными фазами и амплитудами различных спектральных компонент генерируемого излучения и их когерентного суммирования. Так, продемонстрированы генерация и измерение импульсов с контролируемыми субфемтосекундными изменениями электрического поля на основе синтеза волновых форм из спектрального континуума или квазиконтинуума, простирающегося на 1.5–2 октавы [2, 5, 6].

Технологии синтеза оптических волновых форм открывают возможности для полного контроля над микроскопической динамикой электронов и других заряженных частиц в процессе ионизации атомов и молекул лазерными импульсами. В частности успешно проведены первые эксперименты, демонстрирующие применения таких импульсов для управления процессом ионизации ато-

мов с субфемтосекундной точностью [6]. Это позволяет эффективно возбуждать излучающие электронные токи в создаваемой плазме на различных частотах, которые могут охватывать диапазон от терагерцевого [7–9] до вакуумного ультрафиолетового (ВУФ) и рентгеновского [10–14]. Исследования в этом направлении привлекают особое внимание в связи с возможностью управления генерацией аттосекундных импульсов, имеющих широкие перспективы использования в различных приложениях, в том числе для спектроскопии со сверхвысоким временным разрешением [11–13].

Возбуждение излучающих высокочастотных токов, ответственных за генерацию ВУФ и рентгеновского излучения в газах, происходит вследствие сверхбыстрого отрыва электронов от атомов, ускорения электронов и их возвратных соударений с родительскими ионами [14]. Спектр дипольного ускорения (пропорционального производной плотности электронного тока) содержит высокочастотное плато с резкой отсечкой вблизи некоторой частоты ω_c . В случае монохроматического лазерного поля [15]

$$\omega_c \approx (I_p + 3.17U_p)/\hbar, \quad (1)$$

где I_p – потенциал ионизации атома; U_p – ponderomotorная энергия электрона; \hbar – постоянная Планка; спектр дипольного ускорения состоит из нечётных гармоник частоты накачки. Таким образом, ширина плато в спектре генерации гармоник высокого порядка (ГГВП) определяется ponderomotorной энергией электрона в лазерном поле, которая пропорциональна произведению интенсивности лазерного излучения I на квадрат его длины волны λ :

$$U_p = e^2 E_0^2 / (4m\omega_{\text{las}}^2) \sim I\lambda^2, \quad (2)$$

где e и m – заряд и масса электрона; E_0 и ω_{las} – амплитуда и частота лазерного излучения. Видно, что для расширения плато можно увеличивать длину волны лазерного импульса или его интенсивность. Однако получение ин-

А.А.Силаев, М.Ю.Емелин, Н.В.Введенский, М.Ю.Рябкин. Институт прикладной физики РАН, Россия, 603950 Н.Новгород, ул. Ульянова, 46; Нижегородский государственный университет им. Н.И.Лобачевского, Россия, 603950 Н.Новгород, просп. Гагарина, 23; e-mail: emelin@ufp.appl.sci-nnov.ru, vved@appl.sci-nnov.ru, mike@ufp.appl.sci-nnov.ru

О.В.Мешков. Нижегородский государственный университет им. Н.И.Лобачевского, Россия, 603950 Н.Новгород, просп. Гагарина, 23

тенсивных высокоэнергетичных гармоник за счёт использования длинноволновых лазерных источников серьёзно затруднено быстрым уменьшением высокочастотного атомарного отклика с ростом длины волны лазерного излучения [16–18]. В значительной мере это связано с расплыванием электронного волнового пакета на стадии свободного движения, а также с тем, что с ростом длины волны происходит более сильное опустошение атомарных уровней за период лазерного поля. Увеличение ширины плато в результате повышения интенсивности лазерной накачки также имеет ограничения, связанные с быстрым ростом скорости туннельной ионизации атомов при увеличении электрического поля лазерного импульса, вследствие чего резко снижается количество атомов, участвующих в процессе генерации гармоник [19, 20]. Согласно трёхступенчатой модели генерации высоких гармоник [14, 21], основную роль в этом процессе в режиме туннельной ионизации играют свободно-связанные переходы. Поэтому для эффективной ГГВП необходима достаточно высокая населённость как связанных, так и свободных состояний. В предельном случае, соответствующем очень малой населённости связанных состояний, эффективной ГГВП не происходит.

При использовании импульсов со специальным образом подобранной волновой формой можно обойти эти трудности и добиться значительного расширения плато в спектре электронного тока, а также увеличения спектральной интенсивности высших гармоник. В частности, в ряде работ рассматривалось использование для этих целей импульсов с нелинейной частотной модуляцией, которая соответствует уменьшению мгновенного значения частоты в области максимума огибающей лазерного импульса (см., напр., [22, 23]). Локальное уменьшение частоты приводит к увеличению кинетической энергии фотоэлектронов в момент их возврата к иону и, соответственно, к увеличению частоты отсечки ω_c . Заметим, что спектр дипольного ускорения является сплошным, в отличие от случая квазимонохроматических импульсов, однако по устойчивейшей терминологии возбуждение высокочастотного электронного тока при использовании chirпированных лазерных импульсов также называют генерацией высших гармоник.

Данная работа посвящена исследованию оптимальных режимов ГГВП при ионизации газа chirпированным лазерным импульсом. На основе численных расчётов в рамках одномерной квантовомеханической модели и аналитического рассмотрения с помощью модифицированной модели Левенштейна найдены оптимальные параметры лазерных импульсов, соответствующие максимальной эффективности ГГВП в высокочастотной области. Показано, что при использовании chirпированных лазерных импульсов эффективность преобразования в высшие гармоники может быть на порядок выше, чем в отсутствие частотной модуляции. На основе рассмотрения динамики населённости основного атомарного состояния и частотно-временного анализа высокочастотного отклика системы высокая эффективность нелинейного преобразования частот в найденном оптимальном режиме ГГВП объясняется особенностями динамики фотоотрыва и ускорения электронов в этом режиме. Дана оценка длительности аттосекундных импульсов, которые могут быть получены с использованием лазерных импульсов с сильной нелинейной частотной модуляцией, и показано, что эта длительность может достигать десяти аттосекунд.

2. Постановка задачи

В настоящей работе полагается, что электрическое поле chirпированного лазерного импульса линейно поляризовано вдоль оси z и параметризуется таким же образом, как и в работах [22–24]:

$$E(t) = E_0 \cos(\omega_{\text{las}} t + \delta(t) + \varphi) \exp\left(-2 \ln 2 \frac{t^2}{\tau_p^2}\right). \quad (3)$$

Здесь τ_p – длительность импульса; φ – постоянная добавка к фазе;

$$\delta(t) = -\Delta\omega \tau_{\text{ch}} \tanh\left(\frac{t-t_0}{\tau_{\text{ch}}}\right) \quad (4)$$

– добавка к фазе поля, которая задаёт частотную модуляцию импульса. Параметры $\Delta\omega$ и τ_{ch} в (4) задают амплитуду и временной масштаб частотной модуляции; t_0 – момент времени, в который мгновенная частота, определяемая как производная от фазы поля, отклоняется от центральной частоты на максимальное значение, равное $\Delta\omega$. Заметим, что для chirпированного лазерного импульса понятие интенсивности, вообще говоря, не имеет смысла, поскольку несущая частота импульса не постоянна. Тем не менее мы будем далее использовать понятие пиковой интенсивности, понимая под ней величину $I = cE_0^2/(8\pi)$, где c – скорость света.

Зависящее от времени и направленное вдоль оси z дипольное ускорение $a(t)$, которое в результате воздействия электрического поля приобретает атомарный электрон, вычисляется с использованием теоремы Эренфеста [25]:

$$a(t) = \frac{e}{m} E(t) - \frac{1}{m} \left\langle \psi \left| \frac{\partial V}{\partial z} \right| \psi \right\rangle, \quad (5)$$

где ψ – волновая функция атомарного электрона; $V(\mathbf{r})$ – кулоновский потенциал, создаваемый родительским ионом; \mathbf{r} – радиус-вектор, определяющий положение электрона относительно кулоновского центра. Квадрат модуля коэффициента фурье-разложения дипольного ускорения (спектр ГГВП)

$$a_\omega = \int_{-\infty}^{\infty} a(t) \exp(-i\omega t) dt \quad (6)$$

определяет спектральную интенсивность генерируемого высокочастотного излучения. Для нахождения оптимальных параметров частотной модуляции рассчитывается так называемая мощность ГГВП, равная интегралу от $|a_\omega|^2$ по частотам в некотором спектральном интервале:

$$W = \int_{\omega_{\text{min}}}^{\omega_{\text{max}}} |a_\omega|^2 d\omega. \quad (7)$$

Положения границ ω_{min} и ω_{max} рассматриваемого спектрального интервала будут конкретизированы при изложении результатов расчётов в разд. 3 и 4.

3. Численные расчёты

3.1. Методы расчётов

На первом этапе данного исследования для ускорения расчётов при поиске оптимальных параметров chirпиро-

ванных лазерных импульсов использовалась одномерная квантовомеханическая модель атома водорода, предложенная в работе [10]. Использование этой модели подразумевает решение одномерного нестационарного уравнения Шрёдингера (УШ)

$$i\hbar \frac{\partial \psi}{\partial t} = -\frac{\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2 \psi}{\partial z^2} + V_{ID}(z)\psi - ezE(t)\psi, \quad (8)$$

где

$$V_{ID}(z) = -\frac{e^2}{(|z|^{1/2} + 0.6r_B)^2} \quad (9)$$

– модельный (так называемый supersolid-core) потенциал; $r_B = 5.29 \times 10^{-9}$ см – боровский радиус. Энергия основного состояния в этом потенциале по модулю равна потенциалу ионизации атома водорода ($I_p = 13.6$ эВ), а сам потенциал асимптотически близок к кулоновскому потенциалу вдали от иона. Использование такого потенциала обеспечивает высокую точность в описании стадии ионизации атома, что является существенным для исследования, проводимого в данной работе.

В ряде случаев результаты, полученные при одномерных модельных расчётах, а также при аналитическом рассмотрении (разд.4), сравнивались с результатами трёхмерных численных расчётов. С учётом аксиальной симметрии задачи трёхмерное нестационарное УШ численно интегрировалось в цилиндрической системе координат (ρ, θ, z) , в которой оно записывается как

$$i\hbar \frac{\partial \psi}{\partial t} = -\frac{\hbar^2}{2m} \left[\frac{\partial^2 \psi}{\partial \rho^2} + \frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right] \psi + [V(\rho, z) - ezE(t)]\psi, \quad (10)$$

где $V(\rho, z)$ – кулоновский потенциал иона.

Численное интегрирование нестационарного УШ как в одномерном, так и в трёхмерном случаях проводилось с помощью псевдоспектрального метода [26]. Для преобразования волновой функции из координатного представления в импульсное и обратно в одномерной задаче используется быстрое преобразование Фурье, в трёхмерной – быстрое преобразование Фурье вдоль z и дискретное преобразование Фурье–Бесселя вдоль ρ . Вычисления проводились в областях $z_{\min} \leq z \leq z_{\max}$ (одномерная задача) и $z_{\min} \leq z \leq z_{\max}$, $0 \leq \rho \leq 64r_B$ (трёхмерная задача). Для подавления отражения волновой функции от границ вычислительной области и возникающих волновых пакетов на противоположном краю сетки используется поглощение волновой функции на периферии расчётной области. Значения z_{\min} и z_{\max} определялись исходя из решения классических уравнений движения электрона таким образом, чтобы электроны, рождаемые в произвольные моменты времени и возвращающиеся назад к иону, не попадали в поглощающий слой в процессе движения. При решении одномерного УШ шаг по координате Δz выбирался равным $0.15r_B$. При решении трёхмерного нестационарного УШ использовалась эквидистантная сетка по z с шагом $\Delta z = 0.23r_B$, тогда как узлы сетки по ρ располагались неэквидистантно: они сгущались с приближением к $\rho = 0$, и их полное число N_ρ было равно 420. Интегрирование по времени проводилось в области $-t_{\max} \leq t \leq t_{\max}$, где $t_{\max} = 3.5\tau_p$, с шагом $\Delta t = 0.015t_a$, где $t_a = 2.42 \times 10^{-17}$ с – атомная единица времени.

3.2. Результаты расчётов

Здесь мы рассматриваем задачу поиска значений параметров chirпированного лазерного импульса, при которых мощность ГГВП W максимальна в полубесконечном спектральном интервале $\omega > \omega_{\min}$, где $\hbar\omega_{\min} = 800$ эВ. Предполагается, что амплитуда частотной модуляции лазерного импульса может принимать значения в широком интервале $0 \leq \Delta\omega \leq \omega_{\text{las}}$. Пиковая интенсивность импульса I задаётся равной 6×10^{14} Вт/см², длительность $\tau_p = 5.89$ фс, несмещённая центральная длина волны $\lambda = 2\pi c/\omega_{\text{las}} = 0.8$ мкм, постоянная добавка к фазе $\varphi = 0$, временной масштаб частотной модуляции $\tau_{\text{ch}} = 4.84$ фс.

Для поиска оптимальных значений t_0 и $\Delta\omega$ была использована одномерная модель, описанная в п.3.1. С использованием этой модели были рассчитаны значения W в диапазоне $0 \leq \Delta\omega \leq \omega_{\text{las}}$ и в широком диапазоне t_0 . Полученные результаты показывают, что локальные максимумы W достигаются вблизи максимального значения амплитуды модуляции частоты $\Delta\omega = \omega_{\text{las}}$. Глобальный максимум достигается вблизи $t_0 = 0.82$ фс и $\Delta\omega/\omega_{\text{las}} = 0.988$. На рис.1 показана зависимость W от t_0 при $\Delta\omega/\omega_{\text{las}} = 0.988$. Видно, что кривая $W(t_0)$ имеет несколько резких максимумов, чередующихся с периодом 1.4 фс, приблизительно соответствующим половине периода поля на длине волны 0.8 мкм. В двух пиках, расположенных вблизи $t_0 = 0.82$ и 2.3 фс, величина W принимает близкие значения, которые существенно превышают соответствующие значения в остальных пиках функции $W(t_0)$. Также интересной особенностью зависимости W от t_0 является очень резкий (на много порядков) перепад W при малом (на сотые доли фемтосекунды) изменении t_0 . Резкий перепад величины $W(t_0)$ означает, что край плато пересекает нижнюю границу ω_{\min} спектрального интервала в интеграле (7). Это свидетельствует о том, что положение края плато в спектре ГГВП очень сильно меняется при малом изменении t_0 .

Далее мы провели численное интегрирование трёхмерного нестационарного УШ для значений параметров chirпированного импульса, соответствующих, согласно представленному на рис.1 одномерному расчёту, одному из наиболее интенсивных пиков (при $\Delta\omega/\omega_{\text{las}} = 0.988$, $t_0 = 0.82$ фс). Из рис.2, на котором чёрной линией показан

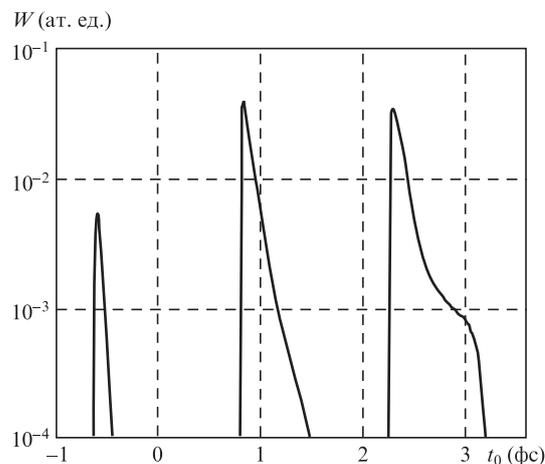


Рис.1. Зависимость мощности ГГВП W в полубесконечном спектральном интервале $\omega > \omega_{\min}$ ($\hbar\omega_{\min} = 0.8$ кэВ) от момента времени t_0 , соответствующего наибольшей модуляции частоты, при $I = 6 \times 10^{14}$ Вт/см², $\tau_p = 5.89$ фс, $\lambda = 0.8$ мкм, $\varphi = 0$, $\tau_{\text{ch}} = 4.84$ фс и $\Delta\omega/\omega_{\text{las}} = 0.988$.

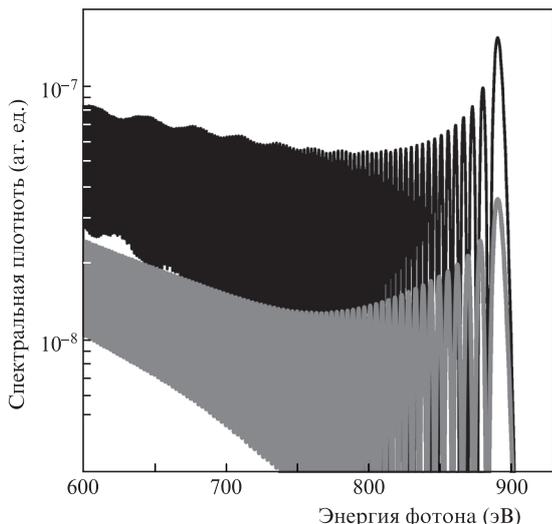


Рис.2. Спектры ГВВП в высокочастотной области для chirпированного лазерного импульса (чёрная кривая) и импульса без частотной модуляции (серая кривая) при $I = 6 \times 10^{14}$ Вт/см², $\tau_p = 5.89$ фс, $\varphi = 0$, $\lambda = 0.8$ мкм (с частотной модуляцией) и 2.234 мкм (без неё); параметры частотной модуляции chirпированного импульса: $\tau_{ch} = 4.84$ фс, $\Delta\omega/\omega_{las} = 0.988$ и $t_0 = 0.82$ фс.

спектр ГВВП для данного случая, видно, что соответствующая краю плато энергия фотона $\hbar\omega_c \approx 890$ эВ (что намного превышает значения энергии отсечки, полученные в работе [22]). Таким образом, короткие chirпированные лазерные импульсы с относительно невысокой интенсивностью могут быть использованы для генерации излучения с энергиями фотонов порядка 1 кэВ.

Рассмотрим теперь, как соотносятся спектральные плотности дипольного ускорения в области края плато для chirпированного импульса и для импульса без частотной модуляции. На рис.2 серой линией показан спектр ГВВП, рассчитанный для импульса с $\delta = 0$ при тех же значениях I , τ_p и φ , что и для chirпированного импульса, но при большей центральной длине волны ($\lambda = 2.234$ мкм). Как видно из рис.2, в обоих случаях спектр ГВВП простирается почти до 0.9 кэВ, однако в случае частотно-модулированного импульса эффективность преобразования в высшие гармоники оказывается почти на порядок выше, чем в отсутствие частотной модуляции.

Столь значительная разница в выходе гармоник объясняется существенными различиями во временных изменениях электрического поля внутри заданной огибающей для двух рассматриваемых импульсов (рис.3). Из-за резкой зависимости скорости ионизации от величины электрического поля [27] эти различия приводят к существенной разнице в ионизационной динамике и, как следствие, – в частотно-временной эволюции процесса ГВВП.

Чтобы показать это, обратимся к результатам расчётов, представленным на рис.4. На рис.4,а показана зависимость населённости основного состояния атома от времени:

$$P_0(t) = |\langle \psi | \psi_0 \rangle|^2, \tag{11}$$

где $\psi_0(\mathbf{r})$ – волновая функция основного состояния. На рис.4,б,в показаны вейвлет-спектрограммы дипольного ускорения, обеспечивающие частотно-временной анализ высокочастотного отклика системы. Для расчёта спектрограмм была использована формула

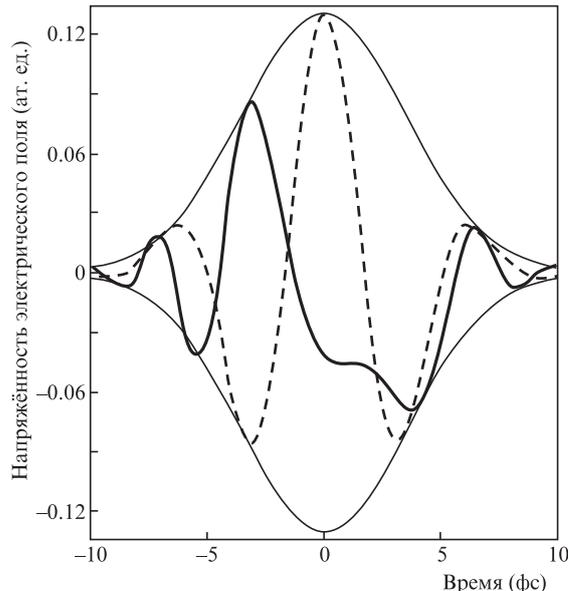


Рис.3. Временные профили электрического поля импульсов с частотной модуляцией (сплошная кривая) и без неё (штриховая кривая), спектры ГВВП для которых построены на рис.2.

$$S(t, \Omega) = \sqrt{\frac{\Omega}{\tau_0}} \int_{-\infty}^{\infty} a(t-t') \exp\left(-i\Omega t' - \frac{\Omega^2 t'^2}{2\tau_0^2}\right) dt', \tag{12}$$

где $\tau_0 = 5\pi/\sqrt{\ln 4} \approx 13.34$ (см., напр., [28, 29]). Как следует из рис.4,а, оба импульса, изображённых на рис.3, достаточно сильно ионизируют газ вблизи момента времени $t \approx -3$ фс, соответствующего локальным максимумам модуля их электрического поля. Дальнейшая динамика электронов для двух этих импульсов существенно различается.

В случае импульса без частотной модуляции амплитуда напряжённости электрического поля на следующем после отрыва электрона полупериоде увеличивается. К моменту $t \approx 1.5$ фс, когда часть волнового пакета, соответствующая наиболее высокоэнергетичным свободным электронам, возвращается к родительскому иону, основное состояние под действием этого поля почти полностью опустошается (см. рис.4,а, штриховая кривая), что приводит к тому, что возбуждаемый высокочастотный электронный ток оказывается слабым.

При использовании chirпированного импульса населённость P_0 основного состояния остаётся практически неизменной на временном интервале между отрывом и возвратом высокоэнергетичного электрона (рис.4,а, сплошная кривая) и соответствует примерно 70% от общего числа электронов. Поскольку вблизи максимума огибающей поле меняется медленнее, чем на переднем фронте (рис.3, сплошная кривая), фотоэлектроны к моменту возврата успевают набрать достаточно большую энергию. Поскольку населённость как свободных, так и связанных состояний в этом случае достаточно велика, высокочастотная поляризация возбуждается эффективно и спектральная плотность ГВВП оказывается гораздо выше, чем в случае импульса без частотной модуляции.

Использование коротких импульсов с нелинейной частотной модуляцией позволяет эффективно генерировать одиночные аттосекундные импульсы [22, 23]. Чтобы показать это, обратимся ещё раз к вейвлет-спектрограмме дипольного ускорения для chirпированного импульса

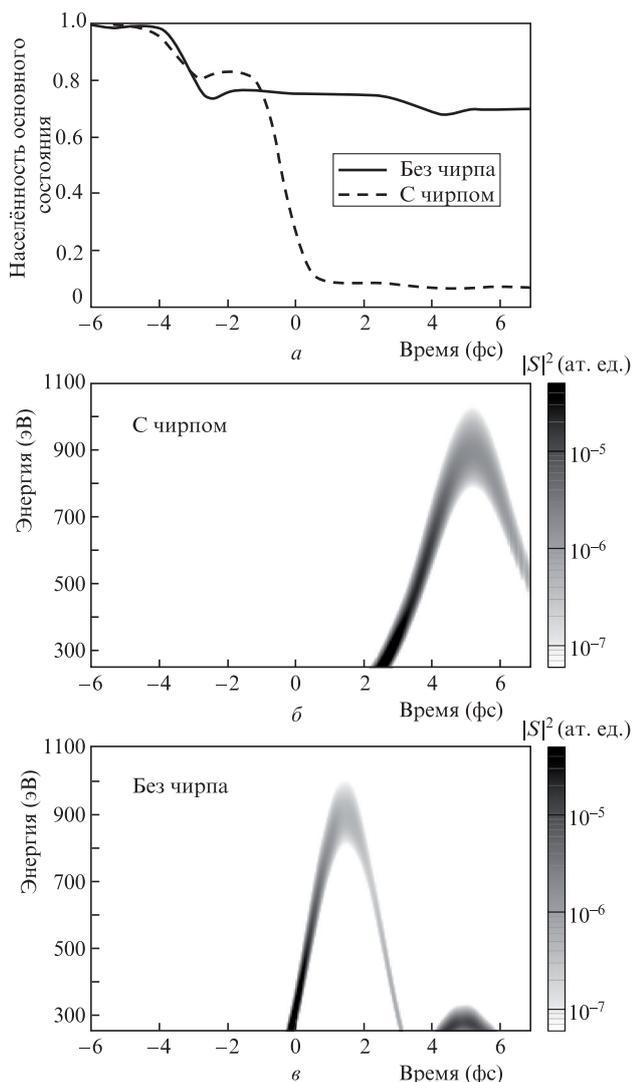


Рис.4. Зависимости от времени населённости основного состояния атома P_0 (а) и вейвлет-спектрограммы $S(\Omega, t)$ дипольного ускорения для импульсов с частотной модуляцией и без неё, показанных на рис.3,б, в.

(рис.4,б). Как видно из рисунка, возбуждение высоких частот в дипольном ускорении происходит на отдельном интервале времени с длительностью, определяемой временами возврата электронов, рождённых на одном горбе электрического поля при $t \approx -3$ фс. Эта длительность в рассмотренном нами случае составляет несколько фемтосекунд, что связано с тем, что фазы разных спектральных компонент дипольного ускорения сильно отличаются друг от друга.

Длительность генерируемого высокочастотного импульса можно сократить с использованием селекции «коротких» траекторий электронов и компенсации чирпа генерируемого излучения [30]. «Короткие» и «длинные» траектории электронов (называемые так в соответствии с временем движения электронов в континууме) отвечают различным участкам спектрограммы, соответствующим положительному и отрицательному чирпам частоты. При селекции только коротких траекторий чирп частоты дипольного ускорения является положительным и близким к линейному, т.е. $\omega(t) \approx at + \beta$, где $\alpha > 0$ и β – некоторые коэффициенты. Так как фаза спектральных компонент дипольного ускорения определяется интегралом от

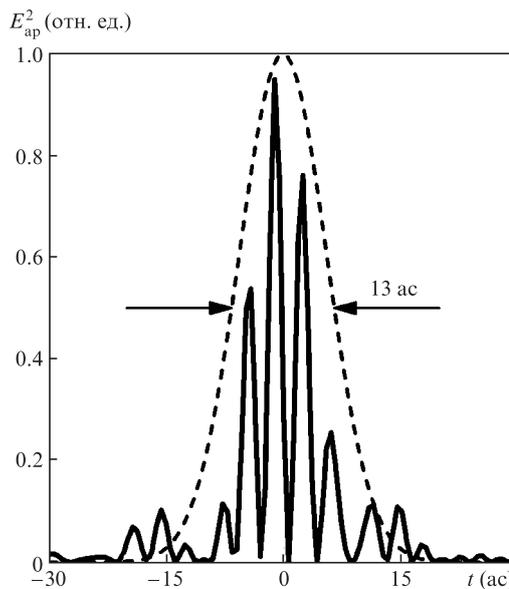


Рис.5. Временной профиль квадрата электрического поля аттосекундного импульса, получаемого при ГВВП частотно-модулированного излучения с параметрами, указанными в подписи к рис.2. Аттосекундный импульс получен с использованием селекции «коротких» траекторий электронов, участвующих в ГВВП, и компенсации положительного чирпа частоты генерируемого излучения.

частоты по времени, она имеет слагаемое $\Delta\phi$, квадратичное по частоте $\omega(t)$: $\Delta\phi = \omega^2/2\alpha$. Соответствующую квадратичную по частоте часть фазы генерируемого излучения можно компенсировать путем пропускания излучения через тонкую пластину (или набор пластин) из металла, обладающего аномальной дисперсией в полосе пропускания [30–32].

Оценим, какую длительность аттосекундного импульса можно получить таким способом в случае использования чирпированного лазерного импульса (с параметрами, указанными в подписи к рис.2). Для этого мы проводим следующее преобразование дипольного ускорения $a(t)$. Для селекции «коротких» траекторий функция $a(t)$ умножается на функцию-маску, равную нулю на временном интервале, соответствующем «длинным» траекториям, и единице на временном интервале, соответствующем «коротким» траекториям. Из фурье-спектра получившейся функции вычитаем фазу $\Delta\phi = \omega^2/2\alpha$, где $\alpha = 0.28t_a^{-2}$ (значение этого коэффициента было найдено из вейвлет-спектрограммы), и отфильтровываем низкочастотную часть с энергиями фотонов ниже 420 эВ. Квадрат модуля коэффициентов обратного преобразования Фурье получившегося сигнала соответствует квадрату $E_{ap}^2(t)$ электрического поля генерируемого аттосекундного импульса. На рис.5 показана зависимость величины E_{ap}^2 от времени, смещённая по оси t к нулю. Видно, что характерная длительность генерируемого аттосекундного импульса составляет ~ 13 ас. Полученный результат демонстрирует, что с использованием частотно-модулированных лазерных импульсов можно добиться существенного уменьшения длительности аттосекундных импульсов.

4. Аналитическое описание

Представленное в разд.3 решение задачи нахождения параметров частотно-модулированного лазерного импульса для реализации оптимального режима ГВВП было

основано на использовании численных расчётов в рамках квантовомеханической модели, т.е. на численном решении одномерного нестационарного УШ. Однако при числе варьируемых параметров лазерного импульса более двух применение такого подхода для решения задачи оптимизации требует значительного времени и объёма вычислительных ресурсов. Это делает необходимым использование в подобных задачах альтернативных (как правило, приближенных) подходов. Одним из таких подходов является любая из полуаналитических квантовомеханических теорий [21, 33, 34], позволяющих в рамках определённых приближений представить искомый высокочастотный поляризационный отклик исследуемой системы в интегральном виде. Ниже мы будем использовать теорию Левенштейна [21], модифицированную таким образом, чтобы учесть важный для рассматриваемой нами задачи эффект опустошения атомарных уровней интенсивным лазерным полем.

4.1. Модифицированное приближение сильного поля

Теория Левенштейна [21] даёт квантовомеханическое описание трёхступенчатого процесса ГГВП [14] в приближении сильного поля. В этой теории волновая функция электрона, взаимодействующего с интенсивным электромагнитным полем, имеет вид суперпозиции невозмущённой собственной функции основного связанного состояния в атоме и набора функций непрерывного спектра, представляемых, в соответствии с приближением сильного поля, в виде плоских волн без учёта влияния кулоновского потенциала. Зависящий от времени средний дипольный момент системы при этом выражается как интеграл по времени и компонентам канонического импульса электрона, содержащий быстроосциллирующий подынтегральный множитель в виде экспоненты, показатель которой представляет собой квазиклассическое действие электрона $S(\mathbf{p}, t, t')$ (\mathbf{p} – канонический импульс электрона, t – текущее время, t' – временная переменная интегрирования). Основной вклад в интегралы по импульсу дают стационарные точки действия: $\nabla_{\mathbf{p}}S(\mathbf{p}, t, t') = 0$. Эти стационарные точки имеют наглядный физический смысл: их вклад в высокочастотный нелинейный отклик системы соответствует траекториям свободного электрона, начинающимся на ядре и заканчивающимся на нём же в более поздние моменты времени; эта картина соответствует предположениям полуклассической модели [14]. Теория [21] даёт не только качественное, но и количественное подтверждение основных выводов полуклассической модели, демонстрируя, в частности, хорошее согласие с ней в отношении положения энергии отсечки (1) в спектре ГГВП.

Оригинальная версия теории Левенштейна строилась в предположении слабой ионизации, т.е. населённость основного состояния считалась неизменной. Дальнейшее развитие теории ГГВП показало, что учёт опустошения связанного состояния может быть сведён к умножению амплитуд вероятности переходов электрона из основного состояния в континуум в момент времени $t - \tau$ и из континуума в основное состояние в момент времени t на амплитуду основного состояния в моменты $t - \tau$ и t соответственно, где τ – время движения электрона в свободном пространстве. Эта изменяющаяся амплитуда основного состояния может быть приближённо вычислена как

$$a(t) = \exp\left[-\int_{-\infty}^t \frac{w(t')}{2} dt'\right],$$

где $w(t')$ – зависящая от времени скорость ионизации. В результате выражение для переменного дипольного момента атома во внешнем линейно поляризованном электромагнитном поле записывается в следующем виде (здесь и далее используются атомные единицы):

$$\begin{aligned} z(t) = & i \int_0^t dt' \left(\frac{\pi}{\varepsilon + i\tau/2}\right)^{3/2} d_z^* [p_{st}(t, \tau) - A_z(t)] \\ & \times d_z [p_{st}(t, \tau) - A_z(t - \tau)] E(t - \tau) \\ & \times \exp\left[-iS_{st}(t, \tau) - \int_0^t \frac{w(t')}{2} dt' - \int_0^{t-\tau} \frac{w(t')}{2} dt'\right] \\ & + \text{компл. сопр.} \end{aligned} \quad (13)$$

Здесь $A(t) = \mathbf{e}_z A_z(t)$ – векторный потенциал электромагнитного поля лазерного импульса; \mathbf{e}_z – единичный вектор вдоль оси z ; ε – параметр регуляризации, который может быть выбран малым;

$$p_{st}(t, \tau) = \frac{1}{\tau} \int_{t-\tau}^t \frac{A_z(t')}{c} dt' \quad (14)$$

– z -координата стационарной точки ($\nabla_{\mathbf{p}} S_{st}(\mathbf{p}, t, \tau) = 0$) квазиклассического действия, описывающего свободное движение электрона в поле лазерного импульса:

$$S(\mathbf{p}, t, \tau) = \int_{t-\tau}^t \left[\frac{1}{2} \left(\mathbf{p} - \frac{\mathbf{A}(t')}{c} \right)^2 + I_p \right] dt'; \quad (15)$$

стационарное значение z -компоненты канонического импульса электрона \mathbf{p} соответствует классической траектории, начинающейся на ядре в момент времени $t - \tau$ и заканчивающейся на нём же в момент времени t ; $S_{st}(t, \tau)$ – квазиклассическое действие, соответствующее $p_{st}(t, \tau)$; $d_z(\mathbf{p})$ – компонента дипольного матричного элемента, соответствующего переходу из основного связанного состояния в непрерывный спектр. Для водородоподобных систем, у которых высоковозбуждённые состояния в континууме могут приближённо рассматриваться как плоские волны, этот матричный элемент имеет вид

$$d_z(\mathbf{p}) = i \frac{2^{7/2} (2I_p)^{5/4}}{\pi} \frac{p_z}{(\mathbf{p}^2 + 2I_p)^3}. \quad (16)$$

Для вычисления величины $w(t)$, ответственной за ионизацию нелинейной среды, предлагались различные подходы [21, 35–37]. Из литературы известно [38, 39], что широко используемая туннельная формула для скорости ионизации [40] даёт при больших значениях E (интересующих нас в рассматриваемой задаче) сильно завышенное её значение. Поэтому, следуя [37], для вычисления $w(t)$ в настоящей работе мы использовали аналитическую формулу для скорости туннельной ионизации атома в статическом поле с поправкой для надбарьерного режима, предложенную в работе [39]:

$$w(t) = C_l^2 \left(\frac{4I_p}{|E(t)|} \right)^{22/\sqrt{2I_p}-1} \exp\left[-\frac{2(2I_p)^{3/2}}{3|E(t)|}\right] \times$$

$$\times \exp \left[-\frac{6Z^2 |E(t)|}{I_p (2I_p)^{3/2}} \right]. \quad (17)$$

Здесь C_1 – числовой коэффициент, который определяется из условия нормировки волновой функции; Z – эффективный заряд ядра. Последний экспоненциальный множитель в (17) представляет собой упомянутый выше поправочный фактор, позволяющий, как показано в [39], с высокой точностью рассчитывать скорость ионизации атомов в широком диапазоне значений напряженности электрического поля E .

4.2. Результаты расчётов

Представленные ниже результаты получены в рамках изложенного в п.4.1 модифицированного приближения сильного поля. Здесь мы рассматриваем задачу максимизации эффективности преобразования оптического излучения в «водяное окно» – важную для биохимических исследований область длин волн между 2.3 и 4.4 нм, где углеродсодержащие биологические объекты эффективно поглощают излучение, тогда как вода относительно прозрачна. Соответственно, для нахождения оптимальных параметров рассматриваемых лазерных импульсов рассчитывалась мощность ГВВП в интервале энергий фотонов от $\hbar\omega_{\min} = 284$ эВ до $\hbar\omega_{\max} = 543$ эВ. Использование аналитической теории вместо прямого численного интегрирования нестационарного УШ позволило исследовать эффективность ГВВП в широком диапазоне варьируемых параметров E_0 , $\Delta\omega$, t_0 , τ_{ch} и φ частотно-модулированного импульса, задаваемого формулами (3) и (4). Несмещённая центральная длина волны и длительность импульса полагались равными 0.8 мкм и 5 фс. Высокочастотная часть спектра ГВВП, соответствующего найденному оптимальному набору параметров, приведена на рис.6,а (чёрная кривая). Энергия отсечки в этом случае составляет около 375 эВ.

Как и в п.3.2, было проведено сравнение эффективности преобразования оптического излучения в высокочастотную область для случаев chirпированного импульса и импульса без частотной модуляции; во втором случае задавались такие параметры импульса, при которых обеспечивается то же положение края плато, что и в случае chirпированного импульса. Такое сравнение было проведено для широкого диапазона интенсивностей неchirпированного импульса; при этом, поскольку, согласно (1), (2), положение края плато в спектре высоких гармоник определяется произведением интенсивности лазерного излучения на квадрат его длины волны, вместе с интенсивностью I варьировалась и длина волны λ (согласно условию $I\lambda^2$). Результаты этих расчётов приведены на рис.7.

Из рис.7 видно, что в случае импульса без частотной модуляции мощность ГВВП оказывается в 2.4–4.6 раза ниже, чем в случае chirпированного импульса. Максимальная эффективность генерации гармоник с указанной выше энергией отсечки в случае накачки без частотной модуляции наблюдается при $I \approx 6 \times 10^{14}$ Вт/см² и $\lambda \approx 1.43$ мкм; соответствующий спектр ГВВП приведен на рис.6,а (серая кривая). Отметим, что указанная оптимальная интенсивность импульса без частотной модуляции, необходимая для получения энергии отсечки 375 эВ, примерно в 1.33 раза выше, чем в случае chirпированного импульса. При меньших интенсивностях для генерации фотонов с такими энергиями требуется более длинноволно-

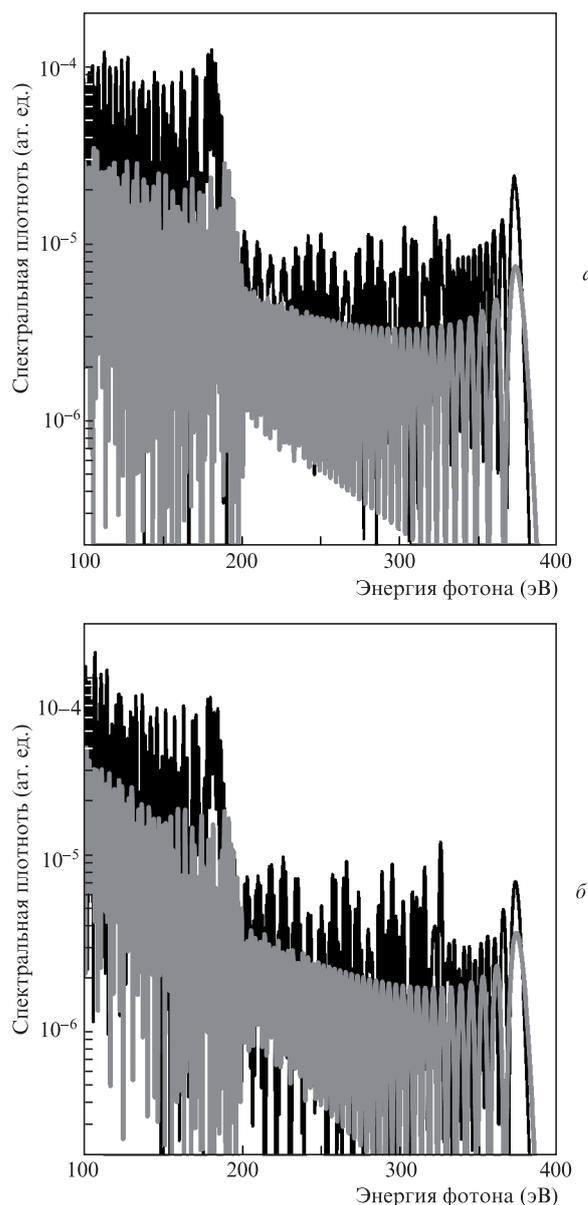


Рис.6. Спектры ГВВП в высокочастотной области для chirпированного лазерного импульса (чёрная кривая) при $\tau_p = 5$ фс, $\varphi = 2.9$ рад, $I = 4.5 \times 10^{14}$ Вт/см², $\lambda = 0.8$ мкм, $\tau_{\text{ch}} = 3.65$ фс, $\Delta\omega/\omega_{\text{las}} = 0.75$, $t_0 = 3.06$ фс и импульса без частотной модуляции (серая кривая) при $I = 6 \times 10^{14}$ Вт/см², $\lambda = 1.43$ мкм. Представлены результаты расчётов в рамках модифицированного приближения сильного поля (а) и из решения трёхмерного нестационарного уравнения Шрёдингера (б).

вая накачка, что, как отмечалось во Введении, приводит к уменьшению выхода гармоник, в то время как при более высоких интенсивностях происходит подавление ГВВП из-за истощения нелинейной среды. Приведённые на рис.6,б спектры ГВВП, полученные из решения трёхмерного нестационарного УШ, хорошо согласуются с результатами расчётов в рамках модифицированного приближения сильного поля (рис.6,а).

Анализ динамики населённости основного состояния атома в случаях импульсов с частотной модуляцией и без неё в рассматриваемой здесь задаче ГВВП в «водяном окне» приводит к результатам, похожим на приведённые на рис.4,а результаты для генерации гармоник в области ниже 1 кэВ. Это указывает на общность механизма значительного повышения эффективности ГВВП в рассмотрен-

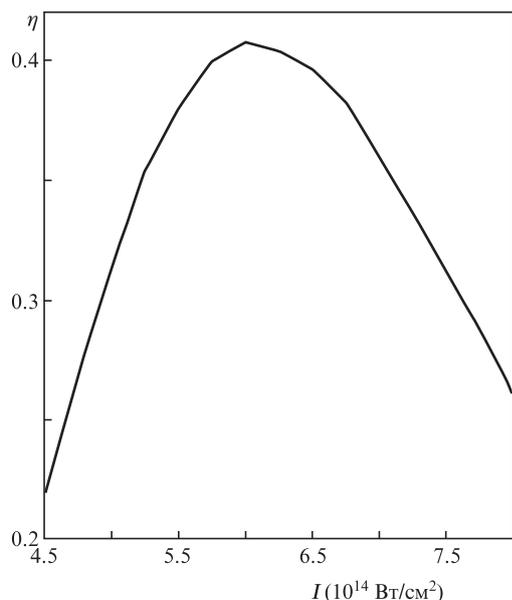


Рис.7. Отношение η мощностей ГГВП для лазерного импульса без частотной модуляции и частотно-модулированного импульса как функция от интенсивности I импульса без частотной модуляции с центральной длиной волны λ , удовлетворяющей условию $I\lambda^2 = \text{const}$. В обоих случаях длительности лазерного импульса и энергии отсечки в спектре ГГВП равны 5 фс и 375 эВ.

ных режимах при использовании лазерных импульсов с сильной частотной модуляцией.

5. Заключение

В данной работе исследована генерация гармоник высокого порядка при ионизации газа интенсивным лазерным импульсом с нелинейной частотной модуляцией. Найдены оптимальные параметры лазерных импульсов, соответствующие максимальной эффективности трансформации лазерного излучения в «водяное окно» (соответствующее энергиям фотонов 280–540 эВ) и в более высокочастотный диапазон с энергиями фотонов порядка 1 кэВ. Показано, что при использовании chirпированных лазерных импульсов эффективность преобразования в высшие гармоники может оказаться существенно больше, чем в отсутствие частотной модуляции, а генерируемое излучение может быть преобразовано в одиночные сверхкороткие импульсы длительностью ~ 10 ас. Высокая эффективность нелинейного преобразования частот в найденных оптимальных режимах ГГВП объяснена особенностями динамики процесса ионизации, характеризующейся в данном случае сочетанием высокой вероятности отрыва электронов, дающих основной вклад в высокочастотную область спектра ГГВП, с относительно малой вероятностью опустошения атомарных уровней в интервале времени между отрывом электрона и его столкновением с родительским ионом.

Работа выполнена при финансовой поддержке Президиума РАН (программа «Экстремальные световые поля и их приложения»), РФФИ (гранты № 14-02-00762 и 14-02-31044), гранта Правительства Российской Федерации (соглашение № 14.В25.31.0008) и гранта Президента РФ государственной поддержки ведущих научных школ РФ № НШ-2001.2014. Авторы благодарны МСЦ РАН и ННГУ за предоставленные вычислительные ресурсы.

- Goulielmakis E., Yakovlev V.S., Cavalieri A.L., Uiberacker M., Pervak V., Apolonski A., Kienberger R., Kleineberg U., Krausz F. *Science*, **317**, 769 (2007).
- Chan H.-S., Hsieh Z.-M., Liang W.-H., Kung A.H., Lee C.-K., Lai C.-J., Pan R.-P., Peng L.-H. *Science*, **331**, 1165 (2011).
- Wang X., Jin C., Lin C.D. *Phys. Rev. A*, **90**, 023416 (2014).
- Goulielmakis E., Schultze M., Hofstetter M., Yakovlev V.S., Gagnon J., Uiberacker M., Aquila A.L., Gullikson E.M., Attwood D.T., Kienberger R., Krausz F., Kleineberg U. *Science*, **320**, 1614 (2008).
- Huang S.-W., Cirmi G., Moses J., Hong K.-H., Bhardwaj S., Birge J.R., Chen L.-J., Li E., Eggleton B.J., Cerullo G., Kärtner F.X. *Nature Photon.*, **5**, 475 (2011).
- Wirth A., Hassan M., Grguras I., Gagnon J., Moulet A., Luu T., Pabst S., Santra R., Alahmed Z., Azzeer A.M., Yakovlev V., Pervak V., Krausz F., Goulielmakis E. *Science*, **334**, 195 (2011).
- Silaev A.A., Vvedenskii N.V. *Phys. Rev. Lett.*, **102**, 115005 (2009).
- Vvedenskii N.V., Korytin A.I., Kostin V.A., Murzanev A.A., Silaev A.A., Stepanov A.N. *Phys. Rev. Lett.*, **112**, 055004 (2014).
- Alexandrov L.N., Emelin M.Y., Ryabikin M.Y. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **47**, 204028 (2014).
- Silaev A.A., Ryabikin M.Y., Vvedenskii N.V. *Phys. Rev. A*, **82**, 033416 (2010).
- Corkum P.B., Krausz F. *Nature Phys.*, **3**, 381 (2007).
- Krausz F., Ivanov M. *Rev. Mod. Phys.*, **81**, 163 (2009).
- Pfeifer T., Abel M.J., Nagel P.M., Jullien A., Loh Z.-H., Bell M.J., Neumark D.M., Leone S.R. *Chem. Phys. Lett.*, **463**, 11 (2008).
- Corkum P.B. *Phys. Rev. Lett.*, **71**, 1994 (1993).
- Krause J.L., Schafer K.J., Kulander K.C. *Phys. Rev. Lett.*, **68**, 3535 (1992).
- Tate J., Auguste T., Muller H.G., Salieres P., Agostini P., DiMauro L.F. *Phys. Rev. Lett.*, **98**, 013901 (2007).
- Colosimo P., Doumy G., Blaga C.I., Wheeler J., Hauri C., Catoire F., Tate J., Chirila R., March A.M., Paulus G.G., Muller H.G., Agostini P., DiMauro L.F. *Nature Phys.*, **4**, 386 (2008).
- Shiner A.D., Trallero-Herrero C., Kajumba N., Bandulet H.-C., Comtois D., Lègarè F., Giguère M., Kieffer J.-C., Corkum P.B., Villeneuve D.M. *Phys. Rev. Lett.*, **103**, 073902 (2009).
- Moreno P., Plaja L., Malyshev V., Roso L. *Phys. Rev. A*, **51**, 4746 (1995).
- Strelkov V.V., Sterjantov A.F., Shubin N.Yu., Platonenko V.T. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **39**, 577 (2006).
- Lewenstein M., Balcou Ph., Ivanov M.Yu., L'Huillier A., Corkum P.B. *Phys. Rev. A*, **49**, 2117 (1994).
- Carrera J.J., Chu S.-I. *Phys. Rev. A*, **75**, 033807 (2007).
- Du H., Hu B. *Opt. Express*, **18**, 25958 (2010).
- Xiang Y., Niu Y., Gong S. *Phys. Rev. A*, **80**, 023423 (2009).
- Burnett K., Reed V.C., Cooper J., Knight P.L. *Phys. Rev. A*, **45**, 3347 (1992).
- Feit M.D., Fleck J.A., Jr., Steiger A.J. *J. Comput. Phys.*, **47**, 412 (1982).
- Келдыш Л.В. *ЖЭТФ*, **47**, 1945 (1964).
- Antoine P., Piraux B., Maquet A. *Phys. Rev. A*, **51**, R1750 (1995).
- Frolov M.V., Manakov N.L., Silaev A.A., Vvedenskii N.V. *Phys. Rev. A*, **81**, 063407 (2010).
- Kim K.T., Kim C.M., Baik M.-G., Umesh G., Nam C.H. *Phys. Rev. A*, **69**, 051805 (2004).
- Lopez-Martens R., Varju K., Johansson P., Mauritsson J., Mairesse Y., Salieres P., Gaarde M.B., Schafer K.J., Persson A., Svanberg S., Wahlström C.-G., L'Huillier A. *Phys. Rev. A*, **94**, 033001 (2005).
- Sansone G., Benedetti E., Calegari F., Vozzi C., Avaldi L., Flammini R., Poletto L., Villoresi P., Altucci C., Velotta R., Stagira S., De Silvestri S., Nisoli M. *Science*, **314**, 443 (2006).
- Платоненко В.Т. *Квантовая электроника*, **31**, 55 (2001).
- Pérez-Hernández J.A., Roso L., Plaja L. *Opt. Express*, **17**, 9891 (2009).
- Zhou X.X., Tong X.M., Zhao Z.X., Lin C.D. *Phys. Rev. A*, **71**, 061801(R) (2005).
- Strelkov V.V. *Phys. Rev. A*, **74**, 013405 (2006).
- Емелина А.С., Емелин М.Ю., Рябикин М.Ю. *Квантовая электроника*, **44**, 470 (2014).
- Scrinzi A., Geissler M., Brabec T. *Phys. Rev. Lett.*, **83**, 706 (1999).
- Tong X.M., Lin C.D. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **38**, 2593 (2005).
- Аммосов М.В., Делоне Н.Б., Крайнов В.П. *ЖЭТФ*, **91**, 2008 (1986).