

Почему плазменные гармоники?*

Р.А.Ганеев

Обсуждается генерация гармоник высокого порядка (ГГВП) для ультракоротких лазерных импульсов, распространяющихся в лазерно-индуцированной плазме. Показано, что в течение последних нескольких лет существенное развитие метода ГГВП в плазме позволило в некоторых случаях превзойти характеристики гармоник высокого порядка, получаемых в газах. Продемонстрирована привлекательность нового подхода в генерации когерентного излучения в вакуумной ультрафиолетовой области спектра, который может также использоваться в качестве инструмента спектроскопии ГГВП при лазерной абляции различных твердых тел. Представлены общие идеи и перспективы этой относительно новой области нелинейной оптики.

Ключевые слова: плазменные гармоники высокого порядка, лазерная абляция, ультракороткие лазерные импульсы.

1. Введение: источники когерентного излучения в вакуумной ультрафиолетовой области спектра

Вопрос, который я поместил в заглавие настоящей обзорной статьи, тесно связан с направлениями дальнейших разработок в одной из областей нелинейной оптики. Действительно, почему плазменные гармоники? Необходимо ли нам плазменные гармоники, если мы имеем детально разработанную технику преобразования частоты лазерного излучения в коротковолновый диапазон с помощью генерации гармоник высокого порядка (ГГВП) в газовых средах? Существует и другой метод ГГВП – генерация гармоник от поверхности. Оба этих метода имеют относительно длинную историю развития и, казалось бы, полностью удовлетворяют потребности научного сообщества в источниках когерентного вакуумного ультрафиолетового (ВУФ) излучения.

С общепринятой точки зрения события в нашей жизни должны следовать логическим принципам простоты. Птолемей говорил [1]: «Мы считаем хорошим принципом объяснять явления в соответствии с самой простой возможной гипотезой». Это философское видение повседневной жизни было позднее (в средневековый период) развито как принцип бритвы Оккама. Он гласит: «Необходимо переходить к более простым методам до тех пор, когда простотой нужно будет пожертвовать ради большей объяснительной силы и полезности» [2]. Следует отметить, что самые простые и доступные методы или теории не обязательно должны быть самыми точными. Более того, сама наука является примером принципа бритвы Оккама, т. к. новые, более сложные идеи и гипотезы, которые первоначально противоречили общепринятым и

самым простым объяснениям и подходам при описании основ нашей вселенной, в конечном счете полностью изменили наше видение окружающего мира.

Однако вернемся с философских высот на землю. Рассмотрим новый подход в оптике, не претендующий на замену существующих методов генерации когерентного коротковолнового излучения, но достаточно хороший для того, чтобы занять собственную нишу в этой области физики. Применим ли принцип бритвы Оккама («Бесполезно обходиться большим количеством сущностей там, где можно обойтись меньшим») в науке, в частности в нелинейной оптике, и особенно в методах генерации когерентного коротковолнового излучения при нелинейном взаимодействии излучения с веществом? Чтобы ответить на этот вопрос, а также на вопрос, поставленный в заглавии настоящего обзора, прежде всего вспомним историю метода ГГВП в газах и от поверхности, а также лучшие достижения этих методов. Ниже вкратце обсуждаются и другие методы генерации когерентного ВУФ излучения.

О самых первых наблюдениях ГГВП в газах сообщалось во второй половине 1980-х годов. Для ГГВП использовался пикосекундный YAG:Nd-лазер с длиной волны 1064 нм [3], а также эксимерный лазер с длиной волны 248 нм [4]. Сообщалось о гармониках в различных газах до 21-го и 33-го порядков на длине волны излучения 1064 нм при интенсивности 3×10^{13} Вт·см⁻², что вызвало огромный интерес к данной области нелинейной оптики. Эти исследования продемонстрировали, что применение газов в качестве нелинейных сред может стать прогрессивным методом генерации когерентного ВУФ излучения при использовании пикосекундных возбуждающих импульсов. Первые разработки были в дальнейшем использованы для спектроскопии ГГВП в газах, причем в эту сферу исследований были привлечены фемтосекундные лазеры. В настоящее время получены гармоники до 5000-го порядка. Исследования ГГВП в газах связаны с разработкой аттосекундных источников лазерного излучения, с анализом структурных особенностей определенных газовых молекул путем изучения спектров гармоник этих веществ, а также с применением гармоник высоких порядков в исследовании поверхности, в биологии, медицине, физике и химии. Привлекательность этого метода осно-

* Перевод с англ. Е.А.Витовтовой.

вана на возможности применения фемтосекундных лазеров во многих лабораториях мира и в простоте использования техники ГГВП в газах.

ГГВП от поверхности, основанная на другом физическом механизме, менее популярна из-за потребности в специфических характеристиках лазеров, необходимых для ее реализации. Чрезвычайно высокие пиковые плотности потока и интенсивности (более 10^{18} Вт·см⁻²) и, что особенно важно, очень высокий контраст между возбуждающим импульсом и прединпульсом, существующими в любой подобной лазерной системе, являются основными требованиями для реализации данной методики. Не многие лаборатории могут выполнить эти требования. При использовании этой методики были достигнуты высокие порядки (выше 3000-й гармоники) и значительны эффективности преобразования для самых низких порядков гармоник.

Другие методы генерации когерентного ВУФ излучения – использование рентгеновских лазеров [5–7] и лазеров на свободных электронах [8, 9] – основаны на принципах, отличных от принципов ГГВП лазерного излучения [10, 11]. Метод ГГВП в газах представляется очень привлекательным с точки зрения возможности применения лазеров умеренной энергии/интенсивности излучения во многих лабораториях и меньших затрат на их повседневное использование по сравнению с двумя вышеотмеченными методами. К недостаткам рентгеновских лазеров относятся низкая частота следования импульсов излучения, плохая пространственная когерентность и большая расходимость пучка. Что касается лазеров на свободных электронах, которые генерируют коротковолновое излучение, то на сегодняшний день существуют лишь несколько таких источников. К тому же применение этих лазеров в значительной степени ограничено их высокой стоимостью.

Основной проблемой генерации когерентных ВУФ импульсов является, как правило, довольно низкая ее эффективность. Многие применения требуют значительно большей яркости источников ВУФ излучения. Для решения этой задачи многообещающим является подход, в котором используется взаимодействие лазерного излучения с плазмой, т.к. приповерхностная сверхплотная плазма выдерживает интенсивные лазерные поля, возбуждающие гармоники. Были идентифицированы два различных механизма генерации, вносящих вклад в ГГВП в сверхплотной плазме: когерентное кильватерное излучение [12–15] и процесс, описываемый релятивистским осциллирующим зеркалом [16–19]. В обоих случаях происходит испускание излучения в ВУФ области в направлении отраженного лазерного пучка через процесс нелинейного преобразования на поверхности плазменного фронта. Отметим также еще один механизм (когерентное излучение плотными образованиями электронных пучков), который может генерировать импульсы в ВУФ области в направлении движения этих пучков [20, 21].

Импульсная мощность существующих на сегодняшний день источников когерентного ВУФ излучения составляет в лучшем случае несколько десятков микроватт. Между тем, в настоящее время полупроводниковая промышленность заинтересована в ВУФ литографии на длине волны 13.5 нм, что требует сотен ватт мощности в полосе генерации [22]. Таким образом, имеющиеся источники когерентного ВУФ излучения не могут быть использованы в микролитографии.

Лазеры, работающие в ВУФ области спектра, и системы на основе ГГВП разрабатываются во многих лабораториях мира. Со своей стороны, полупроводниковая промышленность много вкладывает в развитие некогерентных плазменных источников. В сравнении с ВУФ лазерами системы на основе ГГВП обеспечивают меньшую длительность импульсов, перестраиваемость длины волны и более высокие частоты следования импульсов. Некогерентные плазменные источники могут обеспечивать большие мощности. Однако оба варианта также имеют недостатки по сравнению с ВУФ лазерами. Источники гармоник дают меньшую энергию и спектрально более широкие импульсы, а у плазменных источников существует ограничение на максимальную яркость. Таким образом, все типы источников ВУФ излучения имеют свои достоинства и недостатки.

Хотя источники когерентного ВУФ излучения неприменимы для микролитографии, они могли бы быть полезными в случае решения иных задач при производстве полупроводников, поскольку позволяют получать изображения с высоким пространственным разрешением. Малая длина волны этих источников дает преимущества, в частности в отношении возможности фокусировки лазерного пучка в пятно диаметром ~ 50 нм. Это позволяет производить абляцию образца, например микроорганизма, и исследовать его химический состав при различных диаметрах пятен в задачах, связанных с биологией и медициной.

К другим областям применения когерентного ВУФ излучения относятся формирование рисунков, получение изображений, фотохимия и микроскопия. В частности для работы в режиме одиночных импульсов ВУФ микроскопам требуется достаточный поток фотонов, который может быть обеспечен недавно разработанным новым классом ВУФ лазеров [23–35]. В таких устройствах предварительный лазерный импульс облучает поверхность твердой мишени, создает плазму и вызывает абляцию материала, а затем сформированная плазма облучается основным возбуждающим импульсом. Последний направляется под углом к поверхности, создавая волну, проходящую сквозь плазму со скоростью, оптимизированной для повышения эффективности генерации ВУФ излучения. Регистрация изображений осуществляется на длине волны около 3 нм, находящейся в пределах диапазона так называемого «водяного окна». Это делает возможным получение высокого контраста изображения биологического образца по отношению к окружающей его воде.

Возвращаясь к подходам к ГГВП, следует отметить, что имеется много хороших публикаций, описывающих разработки в области ГГВП в газах (см., напр., обзор [36]). Механизмы генерации нечетных и четных гармоник при отражении лазерного излучения от сверхплотной плазмы также активно обсуждаются (см. монографию [37] и обзор [38]). В настоящей обзорной статье эти методики ГГВП не рассматриваются. Моя цель состоит в том, чтобы ознакомить читателя с самыми последними достижениями при ГГВП в плазменном факеле и обсудить перспективы исследований в этой области.

Мотивация для написания данной обзорной статьи, содержащей некоторые важные недостающие детали, которые не обсуждались в других обзорах, заключается в том, чтобы представить самые последние данные о различных новых схемах генерации гармоник высокого порядка в лазерно-индуцированном слабоионизованном раз-

раженном плазменном факеле, которые я буду называть «плазменными гармониками». Некоторая некорректность этого термина компенсируется его краткостью и емкостью. Действительно, начиная с первых экспериментов по ГГВП в газовых средах (например, в газовых струях и газовых ячейках), термины «газовые гармоники» и «ГГВП в газах» появились в научной литературе наряду с термином «поверхностные гармоники», относящимся к процессу ГГВП при зеркальном отражении интенсивного лазерного поля от поверхностей различных материалов. Так как большинство исследований ГГВП в специально подготовленных плазменных факелах в последнее время выполнялось при моем участии, считаю своей привилегией пользоваться термином «плазменные гармоники».

И снова – почему плазменные гармоники, если ГГВП в газах является детально разработанной методикой, которая, с одной стороны, позволяет генерировать когерентные ВУФ импульсы, а с другой – дает возможность исследовать особенности некоторых молекулярных газов и обеспечивает генерацию и применение аттосекундных импульсов? Этот вопрос возник в первой половине 1990-х годов, когда начались исследования ГГВП в плазменных факелах. Разочарование, вызванное невпечатляющими результатами, достигнутыми в этих исследованиях, стало поводом задаться вопросом о целесообразности экспериментов с плазменными гармониками. В следующем разделе я обсуждаю эти результаты и причины того, почему предложенная методика была забыта почти на десять лет. Отказ от плазменных гармоник совпал с впечатляющими достижениями при создании источников когерентного ВУФ излучения с использованием ГГВП в газах, а также с первыми сообщениями о генерации аттосекундных импульсов. Вероятно, принцип Оккама был достаточной причиной снижения интереса к исследованиям плазменных гармоник в связи с отсутствием идей о том, как преодолеть препятствия в виде пресловутой низкой эффективности преобразования этого процесса, а также низких порядков генерируемых гармоник по сравнению с величинами, полученными при ГГВП в газах.

В этой части обзора еще преждевременно описывать нововведения, сообщавшиеся при первых успешных экспериментах по ГГВП с плазменными факелами в 2005 г. Поэтому я предпочел следовать логике исторических событий в этой области. В следующем разделе я обсуждаю

некоторые достоинства и недостатки плазменных гармоник, наблюдавшихся в начале этих исследований.

2. Ранняя стадия исследований плазменных гармоник: надежды и разочарования

Первые исследования ГГВП в плазме были нацелены на увеличение предельного порядка генерируемых гармоник при использовании частиц с высокими потенциалами ионизации, что казалось очень логичным, если опираться на физику микропроцессов, определяющих генерацию гармоник. Для этого наиболее подходили однозарядные ионы щелочных металлов (Li^+ , Na^+ и K^+), т.к. они изоэлектронны по отношению к нейтральным благородным газам и имеют более высокие потенциалы ионизации по сравнению с последними. Akiyama и др. [39] использовали импульсы излучения субпикосекундного КгF-лазера (0.5 пс, 6 мДж, 248 нм) для генерации гармоник в плазме, содержащей ионы щелочных металлов и полученной с использованием наносекундного лазерного излучения (20 нс, 200 мДж, 248 нм; рис.1,а). Максимальная наблюдавшаяся гармоника имела 13-й порядок в K^+ -содержащей плазме. Сообщалось также о гармониках до 11-го порядка в Na^+ -плазме и до 9-го порядка в Li^+ -плазме. Из использовавшихся нелинейно-оптических сред плазма с ионами K^+ обеспечивала самую высокую интенсивность для всех порядков гармоник (рис.1,б).

Те же авторы в последующих исследованиях с целью подавления влияния процессов ионизации использовали в лазерно-индуцированной плазме и другие ионы для ГГВП [40]. Самый высокий порядок гармоник (21-й) наблюдался в плазме свинца (рис.2,а). Было найдено, что номер самой высокой гармоники в различных ионах и нейтральных газах пропорционален потенциалам ионизации использовавшегося вещества. Эти эксперименты выполнялись при чрезвычайно высокой (3×10^{17} Вт·см⁻²) интенсивности излучения субпикосекундного КгF-лазера длительностью 0.5 пс, тогда как интенсивность импульса длительностью 20 нс, создающего плазму, была порядка 1×10^9 Вт·см⁻². Были использованы шесть твердых мишеней с различными атомными номерами: бор ($Z = 5$), углерод (6), титан (22), медь (29), вольфрам (74) и свинец (82). На рис.2,б собраны распределения гармоник при использовании мишеней из этих шести элементов. Доминирую-

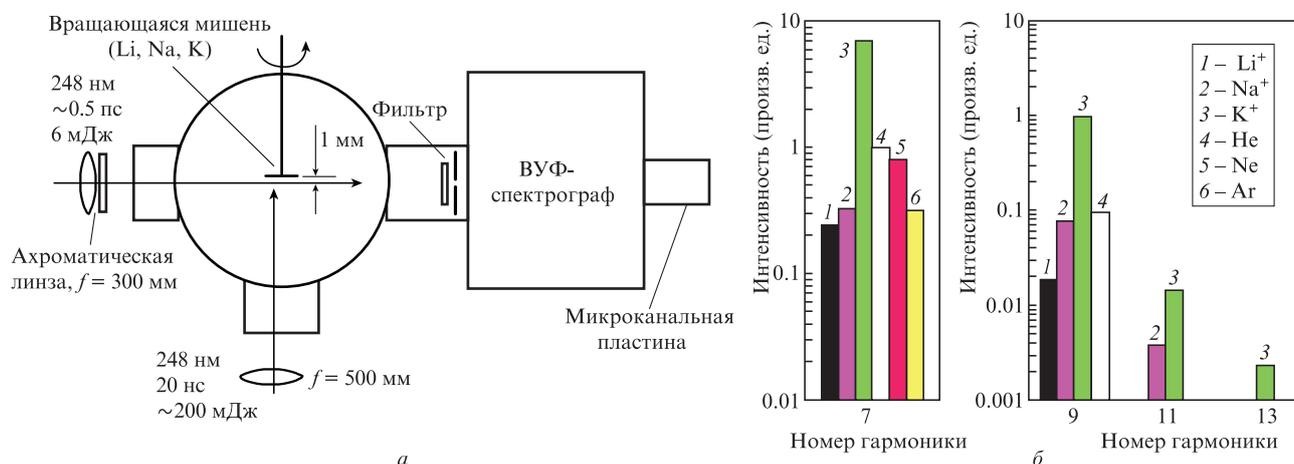


Рис.1. Схема экспериментальной установки (а) и относительные интенсивности гармоник в благородных газах и ионах щелочных металлов (б) (адаптировано из [39] с разрешения Американского физического общества, авторское право от 1992 г.).

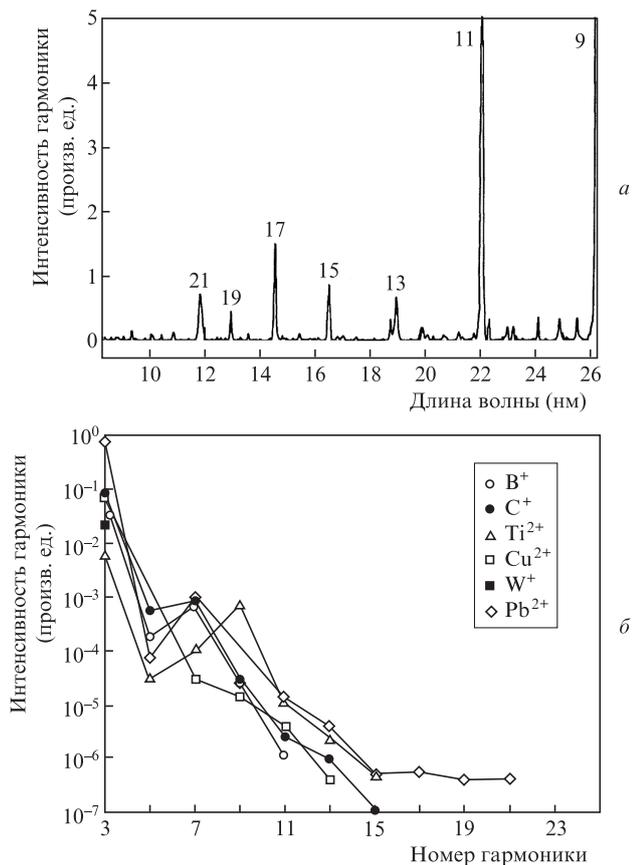


Рис.2. Интегрированный по времени спектр ГВП, наблюдаемый в плазме свинца (пики в спектре помечены в соответствии с порядками гармоник) (а), и распределения интенсивностей гармоник высокого порядка для шести видов ионов (б) (воспроизведено из [40] с разрешения Американского физического общества, авторское право от 1993 г.).

щее зарядовое состояние для каждого вещества оценивалось с помощью столкновительно-излучательной модели.

Wahlström и др. [41] также изучали ГВП в лазерно-индуцированных ионах щелочных металлов (Na^+ и K^+) при использовании фемтосекундных возбуждающих импульсов (150 фс, 794 нм) и субнаносекундных нагревающих импульсов (100 пс, 1064 нм). Самые высокие наблюдавшиеся порядки гармоник были не столь высоки, как ожидалось из оценок, основанных на интенсивности насыщения для этих ионов и интенсивностях сфокусированного излучения в отсутствие дефокусировки (рис.3). Было найдено, что пространственное распределение излучения гармоник в дальнем поле содержит кольцевые структуры, которые изменяются при изменении условий фокусировки. Исследователи полагали, что отсутствие платообразного распределения гармоник может быть результатом дефокусировки пучка мощного лазера вследствие ионизации, уменьшающей максимальную интенсивность в среде. Ожидалось, что эта дефокусировка будет ослаблена при использовании для генерации гармоник коротковолнового лазера.

Эффекты распространения при ГВП (до 13-го порядка) короткоимпульсного излучения Krf-лазера в парах углерода и в слабозаряженной плазме углерода исследованы в [42]. Было обнаружено, что гармоник высокого порядка генерировались главным образом на нейтральных атомах. Авторы [42] также полагали, что в плазме ГВП на суммарной частоте подавлялась нежелатель-

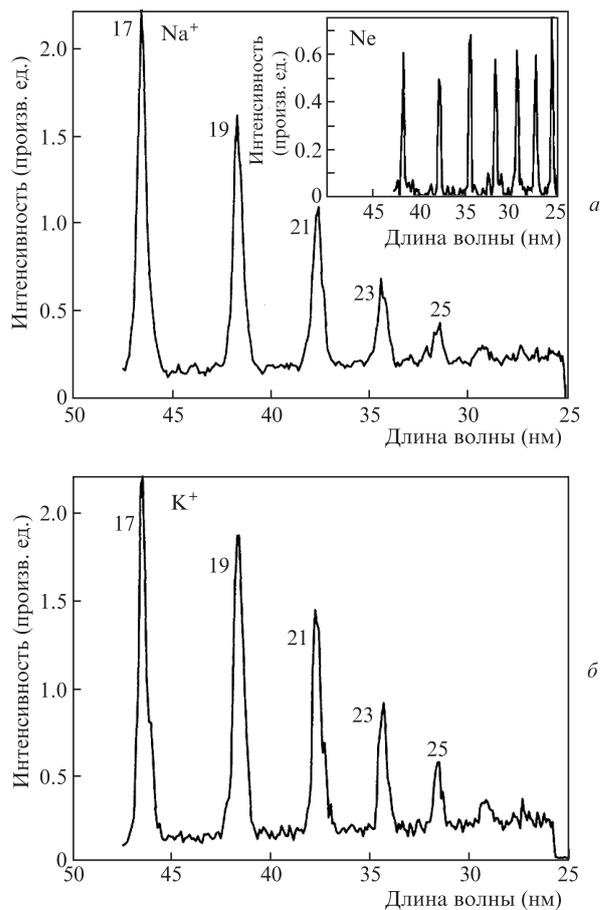


Рис.3. Спектры гармоник, полученные в Na^+ (а) и K^+ (б). На вставке – часть спектра, полученного при сходных условиях, но в случае замены лазерно-индуцированной плазмы импульсным соплом, создающим струю нейтральных атомов Ne (воспроизведено из [41] с разрешения Американского физического общества, авторское право от 1995 г.).

ным положительным фазовым рассогласованием. В работе обсуждалась неколлинеарная синхронная ГВП при преобразовании разностных частот в плазме. Исследователи предположили, что наблюдаемый аномальный рост интенсивности 5-й гармоники обусловлен неколлинеарным синхронным преобразованием разностных частот и дефокусировкой лазерного излучения.

В работе [43] была продемонстрирована возможность оптимизации ГВП в плазме при использовании для ее создания и генерации гармоник только одного лазера. Анализ показал, что двухпучковая схема имеет некоторые преимущества благодаря возможности оптимизации уровня возбуждения плазмы. Было продемонстрировано, что пикосекундные импульсы могут служить эффективным инструментом для генерации как плазмы, так и гармоник. В этих экспериментах исследовались гармоник до 11-го порядка ($\lambda = 96$ нм) при использовании излучения лазера на стекле с неодимом в разреженной плазме. Максимальная эффективность (10^{-3}) была получена для 3-й гармоники, тогда как эффективность самой высокой, 11-й, гармоники была значительно ниже ($\sim 10^{-8}$).

Krushelnick и др. [44] проанализировали ГВП в сформированной плазме пониженной плотности при использовании субпикосекундных УФ лазерных импульсов, сфокусированных до интенсивности 10^{18} Вт·см $^{-2}$. Сообщалось о генерации 7-й и 9-й гармоник в плазме алюминия, а также

гармоник до 19-го порядка в плазме LiF. Эффективность генерации гармоник, измеренная в этих экспериментах, была меньше, чем в экспериментах по ГГВП в газах. В данных исследованиях эффективность генерации гармоник была ограничена наличием избыточного количества свободных электронов в нелинейной среде, что вызывало дисперсию и фазовое рассогласование. Тем не менее предполагалось, что генерация гармоник в ионах может наблюдаться в плазме, если поляризация иона достаточно велика, а концентрация электронов незначительна. Излучение 7-й и 9-й гармоник в такой плазме было зарегистрировано при интенсивности лазерного излучения 5×10^{17} Вт·см⁻². Это интенсивность, при которой эффективность излучения гармоник в исходно нейтральном гелии была такой же. Однако при низких интенсивностях излучение гармоник в нейтральных газах было все же значительно интенсивнее, чем в плазменных мишенях. Наблюдение 7-й и 9-й гармоник в плазме алюминия было обусловлено, вероятно, нелинейной поляризацией ионов плазмы. При распространении лазерного импульса высокой интенсивности в плазме происходит туннельная ионизация, снижающая эффективность генерации гармоник (если рассматривать такую генерацию как трехступенчатый процесс [45]). Ионизация может также вызывать рефракционную дефокусировку, которая не позволяет лазерному пучку создавать область с высокой интенсивностью внутри плазмы. Этот процесс может также создавать неоднородности в плазме, которые могут способствовать фазовому рассогласованию.

Таким образом, первые эксперименты по ГГВП при прохождении лазерного излучения через плазму, полученную при лазерной абляции твердой мишени, оказались гораздо менее успешными, чем исследования ГГВП в газах. Представленные выше данные были получены при использовании сильно возбужденных плазменных формирований, содержащих многозарядные ионы. В этих исследованиях проявилось несколько ограничивающих факторов, которые делали невозможной генерацию гармоник достаточно высоких порядков с приемлемой эффективностью. Исследования ограничили демонстрацией генерации гармоник относительно низких порядков (см. рис.4 из работы [46], где подытожены лучшие результаты, достигнутые на ранних стадиях исследований ГГВП в плазме).

Эти недостатки, а также низкая эффективность преобразования привели к снижению интереса к рассмотренной методике генерации гармоник, особенно в сравнении с достижениями при ГГВП в газах. С 1997 г. по 2005 г. публикаций о плазменных гармониках не было, т. к. никто не верил в успех в этой области. Все усилия тех групп, что первоначально пытались достичь каких-либо интересных результатов при использовании методики ГГВП в плазме, были направлены на ГГВП в газах. Плазменные гармоники были признаны неэффективными.

3. От разочарования к успеху: свет в конце тоннеля

В конце 2004 г. в Институте физики твердого тела (Япония) проводились исследования абляции поверхности бора и возбуждения формирующейся плазмы с помощью как очень интенсивных (фемтосекундных), так и относительно слабых (пикосекундных) лазерных импульсов. Абляция осуществлялась с помощью импульсов длитель-

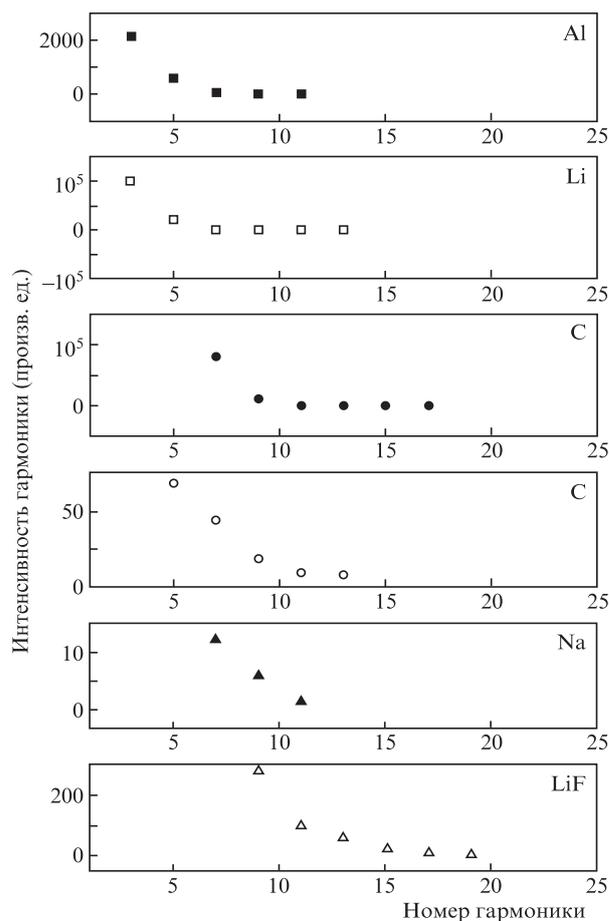


Рис.4. Спектры гармоник высокого порядка, полученные в различных лазерно-индуцированных плазменных средах на ранней стадии исследований (1992–1997 гг.): Al [43], Li [39], C [40], C [42], Na [39], LiF [44] (воспроизведено из [46] с разрешения Wiley-VCH, авторское право от 2012 г.).

ностью 300 пс, а затем плазменный факел облучался широким пучком 2-й гармоники излучения лазера на сапфире с титаном ($\lambda \sim 400$ нм) для получения теневого изображения. Цель исследований состояла в измерении скорости фронта расширения плазмы в случае сильной абляции мишеней для объяснения закономерностей генерации обратнорассеянной 3/2 гармоники излучения, наблюдавших ранее в наших экспериментах [47].

Наше оборудование позволяло наблюдать ВУФ спектры плазмы. Мы часто анализировали спектральные характеристики плазмы, полученной с помощью импульсов различной длительности, в УФ и ВУФ областях. Изменялись спектры плазмы при абляции мишени из бора (схема эксперимента приведена на рис.5) для задержки 40 нс между двумя импульсами с длительностями 300 пс и 110 фс. В отличие от обычного эксперимента, мы исследовали, что будет в условиях, когда первым импульсом формируется плазма низкой плотности и слабой ионизации. В этом случае, как и ожидалось, в ВУФ области плазменные линии отсутствовали. Однако при воздействии на эту плазму сфокусированного фемтосекундного импульса непосредственно на люминесцентном экране микроканальной пластины невооруженным глазом, без ПЗС-усилителя, наблюдалось множество узких линий, похожих на гармоники, сопровождаемых несколькими линиями излучения плазмы (рис.6,а). Увеличение или уменьшение интегральной плотности потока пикосекундных

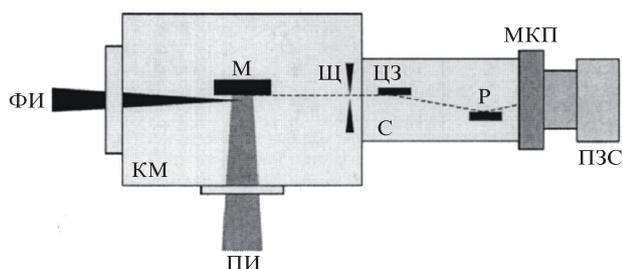


Рис.5. Схема экспериментальной установки для ГГВП:

КМ – камера мишени; М – мишень; Щ – щель; С – спектрометр; ЦЗ – цилиндрическое зеркало с золотым покрытием; Р – решетка; МКП – микроканальная пластина; ПЗС – прибор с зарядовой связью; ФИ – фемтосекундный импульс; ПИ – пикосекундный импульс (воспроизведено из [48] с разрешения Американского оптического общества).

импульсов на поверхности мишени выше или ниже некоторого уровня приводило к исчезновению гармоник. В случае слишком сильного возбуждения поверхности бора в спектрах ВУФ излучения преобладали интенсивные линии ионов, приписываемые их одно-, двух- и трехзарядным состояниям, а также чрезвычайно сильные линии на длинах волн 6.03 и 4.86 нм в первом и более высоких порядках дифракции (рис.6,б). Между тем, при оптимальных условиях абляции бора спектр гармоник захватывал весь регистрируемый диапазон спектра. Калибровка нашего спектрометра в ВУФ области подтвердила, что наблюдаемые линии соответствуют нечетным гармоникам излучения на длине волны 800 нм. Гармоники наблюдались вплоть до 60-го порядка и, аналогично газовым гармоникам, имели платообразную форму спектрального распределения интенсивности (рис.6,в).

Таким образом, случайное наблюдение нелинейно-оптического процесса высокого порядка в плазме бора при определенных условиях абляции мишени позволило сформулировать основные требования для эффективной ГГВП в этой среде. Эти результаты были опубликованы

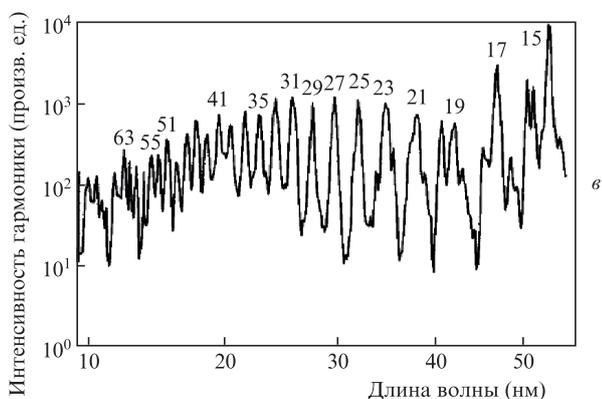
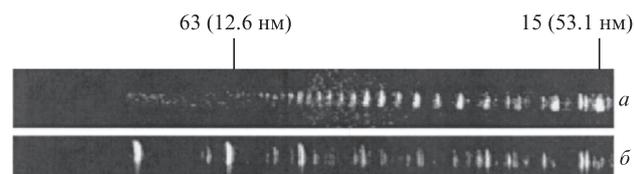


Рис.6. Необработанные изображения спектра гармоник, полученного при оптимальных условиях абляции бора (а), и излучения плазмы бора, проявляющегося при сильной абляции (б); в – спектр гармоник, генерируемых в плазме бора (воспроизведено из [48] с разрешения Американского оптического общества).

в 2005 г. [48] и стали началом исследований различных плазменных образований и их нелинейно-оптических свойств высокого порядка. С тех пор ГГВП в плазме нашла новые применения во многих неожиданных областях взаимодействия излучения с веществом. Помимо альтернативного метода генерации когерентного ВУФ излучения, оказалось, что ГГВП в плазме может служить еще и спектроскопическим и аналитическим инструментом. Использование двухзарядных ионов для ГГВП позволило существенно расширить спектр плазменных гармоник без применения предельно коротких возбуждающих импульсов. Было показано, что для гармоник как низкого, так и высокого порядков эффективность преобразования может быть значительно увеличена, если энергия какой-либо гармоники находится вблизи резонансов атомных или ионных систем. Подобное усиление одиночной гармоники было продемонстрировано в экспериментах с использованием плазмы индия. Для создания лазерно-индуцированной плазмы могут применяться различные материалы, что повышает шанс согласования таких резонансов с излучением гармоник титан-сапфировых лазеров. Отметим, что ранее при исследованиях ГГВП в газах было показано, что двухцветная накачка усиливает интенсивность преобразованного излучения и значительно влияет на выходную мощность и свойства спектра гармоник, генерируемых в благородных газах. При генерации плазменных гармоник использование двухцветной накачки является новым подходом в нелинейной спектроскопии ионных переходов, обладающих высокими силами осциллятора [49].

Проведенные исследования показали, что усиленные гармоники могут также генерироваться на наночастицах, подвергшихся абляции, что открывает перспективы использования эффектов усиления локального поля и возбуждения широких плазменных резонансов в ВУФ области. В качестве очень интересной перспективы может рассматриваться повышение выходной мощности гармоник в случае применения квазифазового синхронизма (КФС) в специально подготовленной плазме.

Таким образом, было доказано, что плазменные гармоники могут являться эффективными источниками коротковолновых ультракоротких импульсов для различных применений и исследований свойств излучателей гармоник. Спектроскопия с использованием ГГВП при лазерной абляции – новый метод исследований материалов и одно из важнейших применений плазменных гармоник.

4. Пути улучшения характеристик плазменных гармоник: идеи и достижения

Поиск путей повышения эффективности ГГВП в ВУФ диапазоне долго был (и все еще остается) одной из наиболее актуальных проблем нелинейной оптики. В большинстве случаев эффективность преобразования лазерного излучения в гармоники оказывается недостаточной для их использования в качестве надежных источников когерентного коротковолнового излучения в биологии, диагностике плазмы, медицине, микроскопии, фотолитографии, при получении дифракционных изображений с использованием когерентного ВУФ излучения при измерениях с временным разрешением и т.д. Возможность повышения интенсивности гармоник в газоструйных источниках при использовании атомных и ионных резонансов долгое время исследовалась главным образом теоретиче-

ски [50, 51]. Результаты расчетов наводили на мысль о том, что интенсивность одиночной гармоники может быть существенно повышена, если ее частота находится в резонансе с атомным или ионным переходом, что может быть альтернативой повышению интенсивности преобразованного излучения за счет фазового синхронизма между длинами волн гармоник и лазерного излучения [52, 53].

Как было указано в разд.2, первые эксперименты с использованием перевозбужденных плазменных факелов дали разочаровывающие результаты. Тем не менее можно было надеяться на существенное повышение интенсивностей гармоник и на получение эффективного когерентного излучения с меньшей длиной волны при использовании должным образом подготовленных плазменных формирований. Действительно, поскольку фундаментальные ограничения отсутствуют, следовало лишь найти оптимальные условия для формирования различных плазменных факелов. Лазерно-индуцированную плазму можно эффективно использовать для процесса ГГВП, если минимизировать влияние ограничивающих факторов (самодефокусировка, фазовая самомодуляция и рассогласование фаз волн гармоник и преобразовываемого излучения) [39, 43, 44].

К числу особенностей ГГВП в лазерно-индуцированной плазме можно отнести широкий диапазон, в котором могут изменяться характеристики среды (дебаевский радиус, концентрация ионов, электронов и нейтральных частиц и степень их возбуждения) при изменении условий абляции на поверхности твердого тела. Использование любых элементов из таблицы Менделеева, а также тысяч многокомпонентных образцов, существующих в виде твердых тел, в значительной степени расширяет диапазон применяемых материалов, тогда как для ГГВП в газах обычно используются лишь несколько благородных газов. Таким образом, исследование практически любого твердого материала с помощью нелинейной спектроскопии, основанной на лазерной абляции и генерации гармоник, может рассматриваться как новый инструмент для материаловедения.

В некоторых случаях этот метод дает возможность реализовать условия квазирезонанса и повысить эффективность генерации одиночной гармоники благодаря влиянию ионных переходов на нелинейный отклик в рассматриваемом спектральном диапазоне, и это позволяет исследовать переходы, обладающие большими силами осциллятора [54–58]. Данный эффект едва ли можно наблюдать при ГГВП в газах из-за низкой вероятности совпадения частот атомных переходов некоторых газов и частот одиночных гармоник лазерных источников. В этой связи отметим, что недавние исследования резонансного усиления генерации гармоник в газах продемонстрировали усиление суженных участков спектра гармоник в результате влияния резонансов Фано и эффекта Штарка [59, 60].

Существенное увеличение порядков генерируемых гармоник, наблюдение длинного плато и появление второго плато в распределении энергии высших гармоник, высокие эффективности, полученные в ряде плазменных факелов, реализация резонансного усиления отдельных гармоник, эффективное усиление гармоник в плазменных факелах, содержащих кластеры различных материалов, и другие свойства, проанализированные в [61–66], продемонстрировали преимущества использования специально подготовленной плазмы для ГГВП. На сегодняшний

день в плазменных средах удается получать гармоники 60-го и 70-го порядков [48, 67, 68]. Гармоники самого высокого (101-го) порядка были получены при абляции марганца [69], и в настоящее время их можно генерировать при использовании лазерных импульсов с умеренными характеристиками (60 фс, 3 мДж).

Эффективность преобразования до 10^{-5} при ГГВП в плазме в области плато была продемонстрирована при лазерной абляции серебряных мишеней [70–72]. Применение двухцветной накачки привело к усилению нечетных гармоник, а также к появлению сильных четных гармоник [73–75]. Кроме того, эффективность преобразования в отдельную (резонансно усиленную) гармонику высокого порядка приближается к 10^{-4} [54] (рис.7,а). Использование протяженной плазмы [76] позволило реализовать фазовый квазисинхронизм для плазменных гармоник [77].

Поиск новых плазменных сред, в которых происходит усиление отдельной гармоники, делает возможным дальнейшее повышение эффективности преобразования гармоник. Получение одиночной гармоники высокой интенсивности (а не группы гармоник одинаковой интенсивности в области плато) открыло бы путь к практическому применению этих источников когерентного коротковолнового излучения. Наблюдение в некоторых плазменных средах резонансно усиленных гармоник позволяет надеяться, что подобные условия будут обнаружены и при использовании других плазменных образований. При этом длина волны генерируемой гармоники может быть настроена на переходы с большой силой осциллятора путем перестройки длины волны возбуждающего лазерного излучения [54, 65], а также изменения chirpa лазерного излу-

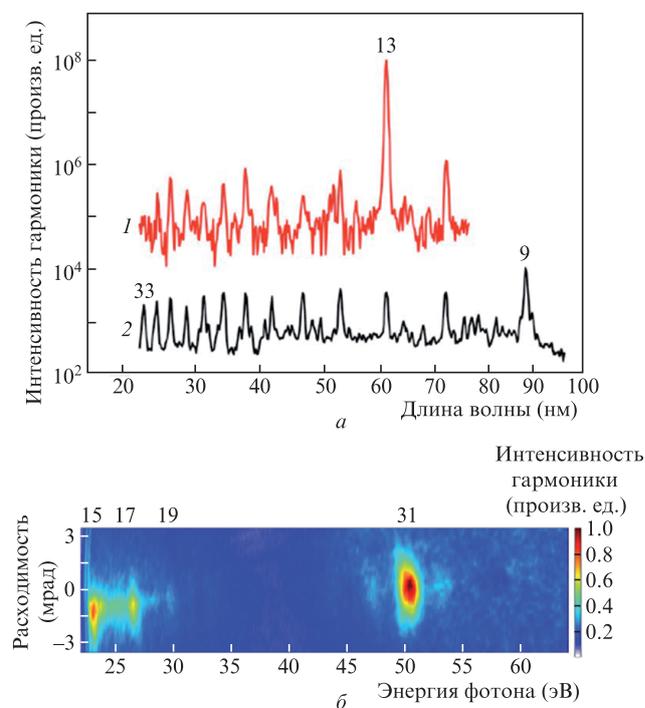


Рис.7. Спектры гармоник, генерируемых в плазменных факелах индия (1) и серебра (2) (воспроизведено из [54] с разрешения Американского оптического общества) (а) и необработанное изображение спектра гармоник, генерируемого в плазме марганца в случае возбуждающих импульсов длительностью 3.5 фс (б) (адаптировано из [82] с разрешения Американского оптического общества).

чения [62, 64]. Интенсивность ВУФ гармоник может быть увеличена и при облучении наночастиц и кластеров, присутствующих в плазме в результате абляции. Исследования с использованием плазменных гармоник позволяют ожидать дальнейшего расширения наших представлений о нелинейно-оптических свойствах материалов. Достоинства этого метода были подытожены в монографиях [49, 78, 79].

К достижениям последних лет можно отнести сравнительные теоретические и экспериментальные исследования предельно высоких порядков гармоник, генерируемых в плазме серебра [80], новые данные о нелинейностях высокого порядка для случая плазмы, содержащей фуллерены [81], генерацию одиночной субфемтосекундной гармоники в плазме марганца с использованием предельно коротких импульсов (рис.7,б [82]), сравнительное исследование плазменных и газовых сред для эффективной ГГВП [83], измерение длительности импульсов плазменных гармоник [84, 85], генерацию континуума в спектре гармоник в плазме [86], стабилизацию интенсивности ге-

нерируемых гармоник в течение более чем миллиона лазерных импульсов с использованием вращающихся мишеней (рис.8,а [87]), ГГВП с использованием пикосекундных возбуждающих импульсов [88], применение лазеров с частотой следования импульсов 1 кГц для ГГВП в плазме с целью повышения средней мощности преобразованного излучения [89, 90], анализ когерентных свойств плазменных гармоник [91], использование двухимпульсной техники для ГГВП в плазме [92], демонстрацию интерференции квантовых траекторий для длинных и коротких траекторий электронов в экспериментах по ГГВП в плазме (рис.8,б [93]) и т. д. Все эти результаты существенно расширили наши знания об особенностях плазменных сред с помощью анализа их нелинейно-оптических характеристик высокого порядка.

5. Будущее плазменных гармоник: новые идеи и подходы

Новый метод анализа плазменных образований с использованием ГГВП при лазерной абляции может рассматриваться как перспективный подход в материаловедении. Его применение расширит возможности оптимизации ГГВП в лазерно-индуцированных плазменных факелах, позволит реализовать новые подходы для исследования больших молекул и кластеров, подвергшихся абляции, и значительно увеличит круг объектов исследований по сравнению с ГГВП в газах. Таким образом, рассматриваемый метод является не только альтернативным методом генерации когерентного ВУФ излучения, но и может служить инструментом для различных спектроскопических и аналитических применений, некоторые из которых появились в последние годы и обсуждались в предыдущем разделе.

Можно усовершенствовать ГГВП в плазме: при использовании двойного возбуждения лазерно-индуцированной плазмы; путем оптимизации схем генерации продольных гармоник в лазерном факеле; при использовании многокомпонентных плазменных факелов; при оптимизации абляции наноструктурированных мишеней; путем создания условий фазового квазисинхронизма в сложных протяженных и перфорированных плазменных формированиях; при обеспечении режима распространения волноводной накачки в плазменной среде; при использовании импульсов среднего ИК диапазона для увеличения предельного порядка генерируемых гармоник; путем стабилизации характеристик плазмы и гармоник при высоких частотах следования импульсов и использовании вращающихся и движущихся мишеней; для достижения генерации аттосекундных импульсов путем получения непрерывного спектра предельно высоких порядков гармоник; путем использования техники поляризационного стробирования для укорачивания импульсов плазменных гармоник и т.д.

Можно также ожидать, что в ближайшем будущем будет осуществлена дальнейшая модификация метода ГГВП в плазме: генерация гармоник при использовании двухцветной накачки в случае источников излучения с соизмеримыми и несоизмеримыми длинами волн в среднем ИК и УФ диапазонах; исследования ГГВП в различных кластерах, возникающих при лазерной абляции объемных мишеней; учет влияния ориентации молекул на выходную мощность гармоник в молекулярных факелах; разработка спектроскопии ГГВП при абляции различ-

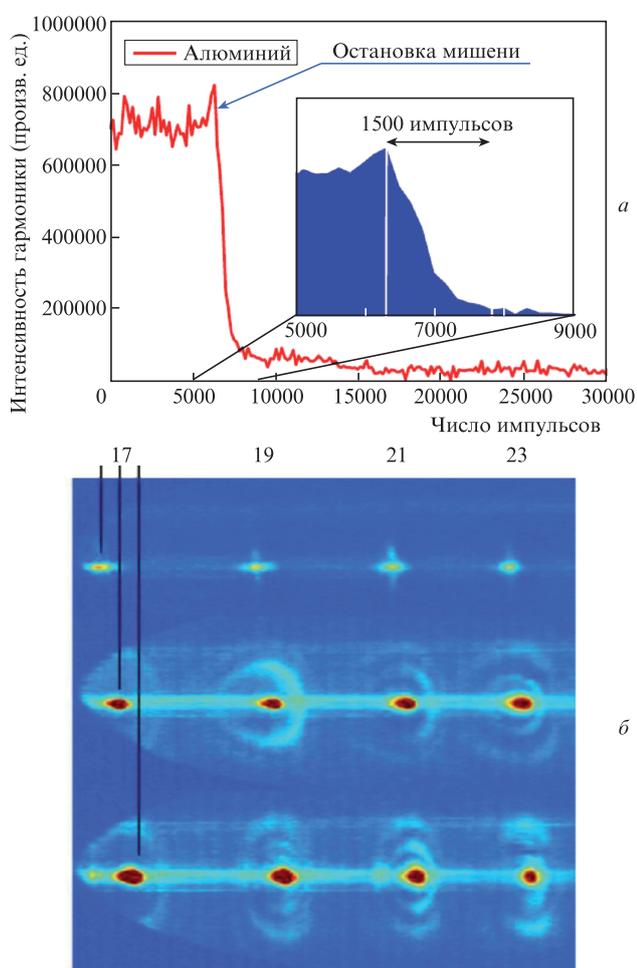


Рис.8. Стабилизация выхода гармоник для более чем 1.2 млн импульсов и затухание гармоник в плазме алюминия после остановки вращения мишени (воспроизведено из [87] с разрешения Американского оптического общества) (а) и зависимость интерференции квантовых траекторий от chirpa лазерного излучения при ГГВП в плазме алюминия в случаях положительно chirпированных импульсов длительностью 93 фс (верхняя часть), импульсов без chirпирования длительностью 35 фс (средняя часть) и отрицательно chirпированных импульсов длительностью 62 фс (нижняя часть) (воспроизведено из [93] с разрешения Американского физического общества, авторское право от 2011 г.) (б).

ных органических материалов; учет ориентационного нелинейно-оптического отклика больших молекул и кластеров, подвергшихся абляции; измерение с временным разрешением методом накачки и зондирования многокомпонентной плазмы, содержащей различные молекулы.

Совместная реализация новых и старых методов (т. е. резонансного усиления гармоник, применения кластеров с регулируемыми и изменяемыми размерами, индуцированного двухцветной накачкой усиления нечетных и четных гармоник, исследования влияния многоэлектронной динамики сложных кластеров, таких как фуллерены и нанотрубки, на индуцированный плазмонным резонансом рост нескольких гармоник в ВУФ области и т. д. [94–107]) делает возможным дальнейшее внедрение этого метода в материаловедение. Разработка современных схем фазового квазисинхронизма в многоструйных плазменных факелах, исследования зависящей от времени динамики агрегации и дезинтеграции кластеров путем анализа их нелинейно-оптического отклика, сравнительный анализ ГГВП в газах и плазме, совместное применение ГГВП в газах и плазме для исследований взаимодействия газообразных веществ и веществ, подвергшихся абляции, применение протяженных плазменных факелов для ГГВП и т. д. также входят в число целей будущих исследований плазменных гармоник. В частности, применение пространственно-модулированных импульсов для нагрева мишеней [108–110], а также перфорированных мишеней [111] могло бы стать альтернативой формированию множественных плазменных струй на поверхностях микролитрографических мишеней для достижения фазового квазисинхронизма [112].

К достоинствам фазового квазисинхронизма при ГГВП относятся простота регулирования концентрации электронов в многоструйной плазме и большие коэффициенты усиления гармоник [77, 108–111], а также возможность проведения экспресс-анализа концентрации электронов. Эффективность преобразования $\sim 2 \times 10^{-5}$ для 33-й гармоники излучения титан-сапфирового лазера (~ 24 нм), генерированной в многоструйной плазме Ag [108], является одной из самых высоких, достигнутых до сих пор в этой спектральной области при использовании как газов, так и плазмы (рис.9). Что касается экспресс-анализа концентрации электронов, то выявление гармоник, имеющих максимальный коэффициент усиления, при фиксированных размерах разделенных плазменных струй позволяет рассчитать концентрацию электронов. Эта методика была продемонстрирована в [108], где концентрация электронов была измерена для многоструйной плазмы серебра. Предложенный метод позволяет анализировать изменения концентрации электронов в слабоионизованной плазме. В частности, изменение расстояния от аблируемой мишени и задержки между импульсами нагрева и возбуждения позволяют анализировать динамику концентрации электронов в слабоионизованной среде.

Представляет интерес применение для ГГВП излучения среднего ИК диапазона (2000–5000 нм) в сравнении с излучением титан-сапфирового лазера (800 нм) с целью изучения динамики нелинейно-оптического отклика молекулярных структур, подвергшихся абляции, исследования расширения диапазона генерируемых гармоник при соизмеримой эффективности преобразования в случае лазерных источников с различными длинами волн, а также поиска новых возможностей повышения эффективности преобразования при ГГВП в кластерах.

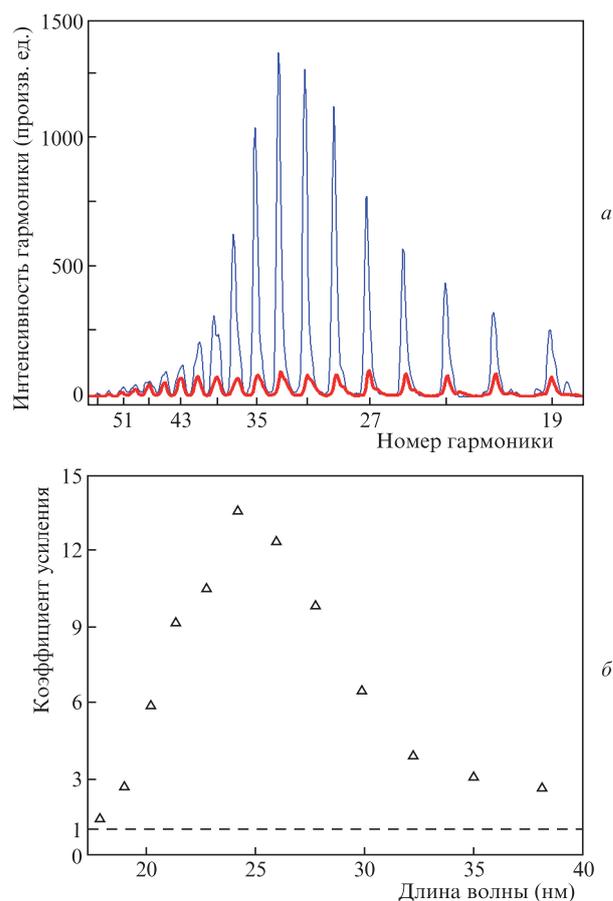


Рис.9. Нормированные спектры гармоник, полученные в плазме длиной 6 мм (жирная кривая) и в пяти плазменных струях длиной 0.5 мм каждая (тонкая кривая) (а), а также коэффициенты усиления гармоник для пятиструйной среды в спектральном диапазоне 18–38 нм (б) (воспроизведено из [108] с разрешения Американского физического общества, авторское право от 2014 г.).

Исследования будут нацелены также на анализ плазменных свойств кластеров, полученных при лазерной абляции и ведущих к резонансному усилению гармоник, на выявление возможности применения графеноподобных и кольцеобразных структур, многокомпонентных молекул, нановолокон и других недавно появившихся кластерообразных систем для ГГВП в плазме [113], на анализ плазмонных свойств наночастиц углерода в ВУФ области и рассмотрение косвенной причастности кластеров к ГГВП (когда они не являются непосредственными излучателями гармоник, а скорее усиливают локальное поле, по аналогии с использованием наноструктур золота, усиливающих ГГВП в газах [114–116]).

Эти идеи в области плазменных гармоник частично позиментованы из исследований газовых гармоник, поскольку фундаментальные ограничения на перенесение принципов ГГВП в газах на ГГВП в плазме отсутствуют. В частности, использование фазового квазисинхронизма в периодически модулированных газовых структурах привело к росту эффективности преобразования для некоторых групп гармоник [117–120]. Недавняя реализация подобного подхода при ГГВП в плазме показала еще большее увеличение интенсивности ряда гармоник, обеспечиваемое фазовым квазисинхронизмом, по отношению к интенсивности обычных гармоник в области плато [108, 110]. Более того, такие методы, как двухцветная накачка и использование длинноволновых лазеров, в по-

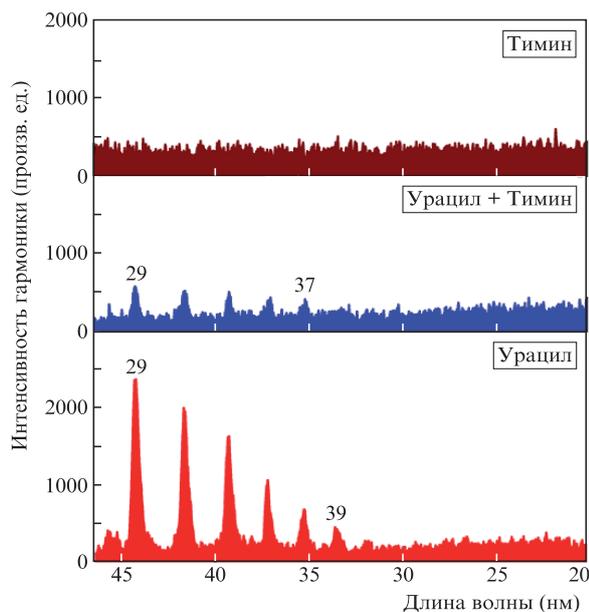


Рис.10. Спектры в ВУФ области для урацила, тимина и мишени, изготовленной из смеси урацила и тимина (50:50), в случае зондирующих импульсов на 1300 нм и абляционных импульсов на 780 нм длительностью 160 пс ($I = 2 \times 10^{10}$ Вт·см⁻²) (воспроизведено из [121] с разрешения Общества владельцев журнала физической химии и химической физики).

следнее время применялись в случае различных типов плазмы при использовании предельно коротких лазерных импульсов [81, 83, 89], что приводило к усилению нечетных и четных гармоник, а также к увеличению предельно генерируемого порядка гармоник. Кроме того, сообщалось о генерации одиночных гармоник с такими источниками в случае плазмы марганца [82]. Наконец, разработанный метод спектроскопии ГГВП уже позволил анализировать структурные свойства сложных систем, таких как элементы ДНК (тимин и урацил, рис.10) [121, 122].

Стоит отметить, что в настоящее время в нелинейной спектроскопии, связанной с газовыми гармониками, делаются попытки рассматривать такие проблемы, как использование аттосекундных импульсов при ГГВП для визуализации перегруппировок ядер, вызванных локализованными возбуждениями дырок; применение ионизации сильным полем для создания локализованных возбуждений дырок и изучения их аттосекундной динамики в многоатомных молекулах; попытки добиться селективного отображения динамики дырок (вызванной удалением, например, внутренних электронов) с использованием техники ГГВП; разработка многомерной спектроскопии ГГВП, способной следить за потоком энергии между различными молекулярными уровнями в фемтосекундном масштабе времени. Использование плазменных гармоник может придать этим исследованиям определенный дополнительный импульс.

Важной областью применения ГГВП в плазме может стать использование абляционных факелов в аттосекундной науке. Измерение физических процессов с временным разрешением, приближающимся к 10^{-16} с, является одной из наиболее интересных новых областей физики. Такие исследования делают достижимым измерение ультрабыстрой динамики коррелированного движения электронов, которая лежит в основе широкого круга физических и химических процессов, таких как фотохимические

реакции, радиационное повреждение биомолекул и преобразование световой энергии в химическую энергию. Подобные исследования требуют самой передовой техники и, в частности, соответствующих источников света с большой спектральной шириной (свыше 10 эВ). В настоящее время основным методом здесь является генерация гармоник в газах. Тем не менее возможности сегодняшних аттосекундных измерений сильно ограничены несколькими факторами. К ним относятся низкий выход фотонов при генерации изолированных аттосекундных импульсов и ограниченный ассортимент атомов и молекул, которые могут быть получены в газовой фазе при плотностях, достаточных для ГГВП.

Первые попытки анализа временных характеристик плазменных гармоник обсуждались в [123], где было показано, что длительность импульсов с 11-й по 19-ю гармонику, генерированных в плазме хрома, составляла ~ 300 ас. Об измерении длительности импульсов плазменных гармоник сообщалось также в [84, 85]. Цель будущих работ состоит в том, чтобы значительно эффективнее использовать ГГВП в плазме для аттосекундных исследований. Успехов в этой области можно ожидать в самое ближайшее время. Для этого необходимо: с помощью аттосекундной стрик-камеры проверить, приводит ли, как это следует из расчетов, резонансно-усиленная ГГВП в некоторых абляционных факелах к изолированным субфемтосекундным импульсам; использовать изолированные субфемтосекундные импульсы в плазме металлов для измерений методом накачки и зондирования на поверхности и в молекулах; разработать оптимальные условия для абляционных факелов высокой плотности и исследовать с помощью ГГВП в различных сложных органических веществах (например, в компонентах рибонуклеиновой и дезоксирибонуклеиновой кислот) аттосекундную динамику электронов.

К числу других возможных применений метода ГГВП в плазме относятся формирование затравок для ВУФ лазеров на свободных электронах, применение и анализ эндодеральных фуллеренов, анализ молекулярных структур по спектрам гармоник, полученных от ориентированных молекул в плазме методами, предложенными в [121, 123, 124].

Исследования в рассматриваемой области нелинейной оптики быстро и успешно развиваются в различных лабораториях мира [84 – 86, 123, 126 – 131]. Полагаю, что ответ на вопрос о том, зачем нужны плазменные гармоник и почему они становятся все более популярными, представляется ясным. Результаты, полученные при исследовании плазменных гармоник, побуждают к дальнейшему развитию метода ГГВП. Недавние обзоры [75, 132, 133] по различным проблемам, связанным с плазменными гармониками, показывают, что эта область нелинейной оптики развивается в направлении как расширения сферы применения метода, так и поисков новых путей управления характеристиками плазменных гармоник.

Очевидно, что ГГВП в плазме не просто еще один метод генерации когерентного ВУФ излучения, а скорее новый метод анализа различных свойств излучателей гармоник, появляющихся в плазменных факелах при лазерной абляции твердых тел. Поэтому принцип бритвы Оккама применим и к этому новому методу, учитывая, что он дает новые знания, получение которых невозможно при генерации гармоник в газах и от поверхности.

Я выражаю благодарность многочисленным коллегам из различных лазерных центров, с которыми мы наблюдали новые явления при исследованиях плазменных гармоник. Моя особая благодарность Н. Kuroda, P.D. Gupta, P.A. Naik, T. Ozaki, J.P. Marangos, J.W.G. Tisch, H. Zacharias, M. Castillejo, M. Suzuki, H. Singhal, L.B. Elouga Bom и С. Hutchison за сотрудничество и плодотворное обсуждение различных аспектов ГТВП в лазерно-индуцированной плазме.

- Franklin J. *The Science of Conjecture: Evidence and Probability before Pascal* (Baltimore: The Johns Hopkins University Press, 2001).
- Baker A. *Simplicity* (Stanford: Stanford University, 2010).
- Ferray M., L'Huillier A., Li X.F., Lompré L.A., Mainfray G., Manus G. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **21**, L31 (1988).
- McPherson A., Ginson G., Jara H., Johann N., McIntyre I.A., Boyer K., Rhodes C.K. *J. Opt. Soc. Am. B*, **4**, 595 (1987).
- Desai T., Daido H., Suzuki M., Sakaya N., Guerreiro A.P., Mima K. *Laser Part. Beams*, **19**, 241 (2011).
- Ozaki T., Ganeev R.A., Ishizawa A., Kanai T., Kuroda H. *Phys. Rev. Lett.*, **89**, 253902 (2002).
- Suckewer S., Jaegle P. *Laser Phys. Lett.*, **6**, 411 (2009).
- Patterson B.D., Abela R. *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **12**, 5647 (2010).
- Kur E., Dunning D.J., McNeil B.W.J., Wurtele J., Zholents A.A. *New J. Phys.*, **13**, 063012 (2011).
- Vozzi C., Calegari F., Frassetto F., Negro M., Poletto L., Sansone G., Villoresi P., Nisoli M., De Silvestri S., Stagira S. *Laser Phys.*, **20**, 1019 (2010).
- Dromey B., Zepf M., Gopal A., Lancaster K., Wei M.S., Krushelnick K., Tatarakis M., Vakakis N., Moustazis S., Kodama R., Tampo M., Stoeckl C., Clarke R., Habara H., Neely D., Karsch S., Norreys P. *Nature Phys.*, **2**, 456 (2006).
- Quéré F., Thauray C., Monot P., Dobosz S., Martin P., Geindre J.-P., Audebert P. *Phys. Rev. Lett.*, **96**, 125004 (2006).
- Thauray C., Quéré F., Geindre J.-P., Levy A., Ceccotti T., Monot P., Bougeard M., Rau F., d'Oliveira P., Audebert P., Marjoribanks R., Martin P. *Nature Phys.*, **3**, 424 (2007).
- Nomura Y., Hörlein R., Tzallas P., Dromey B., Rykovanov S., Major Z., Osterhoff J., Karsch S., Veisz L., Zepf M., Charalambidis D., Krausz F., Tsakiris G.D. *Nature Phys.*, **5**, 124 (2008).
- Wheeler J.A., Borot A., Monchocé S., Vincenti H., Ricci A., Malvache A., Lopez-Martens R., Quéré F. *Nature Phot.*, **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., Zepf M., Gopal A., Lancaster K., Wei M. S., Krushelnick K., Tatarakis M., Vakakis N., Moustazis S., Kodama R., Tampo M., Stoeckl C., Clarke R., Habara H., Neely D., Karsch S., Norreys P. *Nature Phys.*, **2**, 456 (2006).
- An der Brügge D., Pukhov A. *Phys. Plasmas*, **17**, 033110 (2010).
- Dromey B., Rykovanov S., Yeung M., Hörlein R., Jung D., Gautier D.C., Dzelzainis T., Kieffer D., Palaniyppan S., Shah R., Schreiber J., Ruhl H., Fernandez J.C., Lewis C.L. S., Zepf M., Hegelich B.M. *Nature Phys.*, **8**, 804 (2012).
- Alibrandi P. *Photonics Spectra*, **9**, 59 (2011).
- Alessi D., Wang Y., Luther B.M., Yin L., Martz D.H., Woolston M.R., Liu Y., Berrill M., Rocca J. *J. Phys. Rev. X*, **1**, 021023 (2011).
- Habib J., Guilbaud O., Zielbauer B., Zimmer D., Pittman M., Kazamias S., Montet C., Kuehl T., Ros D. *Opt. Express*, **20**, 10128 (2012).
- Reagan B.A., Wernsing K.A., Curtis A.H., Furch F.J., Luther B.M., Patel D., Menoni C.S., Rocca J. *J. Opt. Lett.*, **37**, 3624 (2012).
- Staub F., Imesch C., Bleiner D., Balmer J.E. *Opt. Commun.*, **285**, 2118 (2012).
- Kang H.C., Kim H.T., Kim S.S., Kim C., Yu T.J., Lee S.K., Kim C.M., Kim I.J., Sung J.H., Janulewicz A., Lee J., Noh D.Y. *Opt. Lett.*, **37**, 1688 (2012).
- Wilson L., Tallents G., Pasley J., Whittaker D., Rose S., Guilbaud O., Cassou K., Kazamias S., Daboussi S., Pittman M., Delmas O., Demailly J., Neveu O., Ros D. *Phys. Rev. E*, **86**, 026406 (2012).
- Stehlé C., Kozlová M., Larour J., Nejd J., Champion N., Barroso P., Suzuki-Vidal F., Acef O., Delattre P.-A., Dostál J., Krus M., Chièze J.P. *Opt. Commun.*, **285**, 64 (2012).
- Carbajo S., Howlett I.D., Brizuela F., Buchanan K.S., Marconi M.C., Chao W., Anderson E.H., Artioukov I., Vinogradov A., Rocca J.J., Menoni C.S. *Opt. Lett.*, **37**, 2994 (2012).
- Urbanski L., Marconi M., Meng L., Berrill M., Guilbaud O., Klisnick A., Rocca J. *Phys. Rev. A*, **85**, 033837 (2012).
- Oliva E., Fajardo M., Li L., Sebban S., Ros D., Zeitoun P. *Opt. Lett.*, **37**, 4341 (2012).
- Oliva E., Fajardo M., Li L., Pittman M., Le T.T.T., Gautier J., Lambert G., Velarde P., Ros D., Sebban S., Zeitoun P. *Nat. Photon.*, **6**, 764 (2012).
- Ishino M., Faenov A.Y., Tanaka M., Tamotsu S., Hasegawa N., Nishikino M., Pikuz T.A., Kaihori T., Kawachi T. *Appl. Phys. A*, **110**, 179 (2013).
- Barnwal S., Prasad Y.B.S.R., Nigam S., Aneesh K., Sharma M.L., Kushwaha R.P., Tripathi P.K., Naik P.A., Chakera J.A., Navathe C.P., Gupta P.D. *Appl. Phys. B*, **117**, 131 (2014).
- Zhang G.P. *Int. J. Modern Phys. B*, **21**, 5167 (2007).
- Gibbon P. *Short Pulse Laser Interactions with Matter: an Introduction* (London: Imperial College Press, 2005).
- Teubner U., Gibbon P. *Rev. Modern Phys.*, **81**, 445 (2009).
- Akiyama Y., Midorikawa K., Matsunawa Y., Nagata Y., Obara M., Tashiro H., Toyoda K. *Phys. Rev. Lett.*, **69**, 2176 (1992).
- Kubodera S., Nagata Y., Akiyama Y., Midorikawa K., Obara M., Tashiro H., Toyoda K. *Phys. Rev. A*, **48**, 4576 (1993).
- Wahlström C.-G., Borgström S., Larsson J., Pettersson S.-G. *Phys. Rev. A*, **51**, 585 (1995).
- Theobald W., Wülker C., Schäfer F.R., Chichkov B.N. *Opt. Commun.*, **120**, 177 (1995).
- Ganeev R.A., Redkorechev V.I., Usmanov T. *Opt. Commun.*, **135**, 251 (1997).
- Krushelnick K., Tighe W., Suckewer S. *J. Opt. Soc. Am. B*, **14**, 1687 (1997).
- Corkum P.B. *Phys. Rev. Lett.*, **71**, 1994 (1993).
- Ganeev R.A. *Laser Phys. Lett.*, **9**, 175 (2012).
- Ganeev R.A., Suzuki M., Baba M., Turu M., Kuroda H. *Appl. Phys. B*, **78**, 79 (2004).
- Ganeev R., Suzuki M., Baba M., Kuroda H., Ozaki T. *Opt. Lett.*, **30**, 768 (2005).
- Ganeev R.A. *High-order Harmonic Generation in Laser Plasma Plumes* (London: Imperial College Press, 2012).
- Faria F.M.C., Kopold R., Becker W., Rost J.M. *Phys. Rev. A*, **65**, 023404 (2002).
- Taieb R., Veniard V., Wassaf J., Maquet A. *Phys. Rev. A*, **68**, 033403 (2003).
- Gibson E.A., Paul A., Wagner N., Tobey R., Gaudiosi D., Backus S., Christov I.P., Aquila A., Gullikson E.M., Attwood D.T., Murnane M.M., Kapteyn H.C. *Science*, **302**, 95 (2003).
- Kazamias S., Douillet D., Weihe F., Valentin C., Rousse A., Sebban S., Grillon G., Augé F., Hulin D., Balcou P. *Rev. Lett.*, **90**, 193901 (2003).
- Ganeev R.A., Suzuki M., Ozaki T., Baba M., Kuroda H. *Opt. Lett.*, **31**, 1699 (2006).
- Suzuki M., Baba M., Kuroda H., Ganeev R.A., Ozaki T. *Opt. Express*, **15**, 1161 (2007).
- Ganeev R.A., Elouga Bom L.B., Kieffer J.-C., Ozaki T. *Phys. Rev. A*, **75**, 063806 (2007).
- Ganeev R.A., Boltaev G.S., Kulagin I.A., Satlikov N.K., Tugushev R.I., Usmanov T. *J. Opt. Soc. Am. B*, **31**, 436 (2014).
- Ganeev R.A., Zheng J., Wöstmann M., Witte H., Redkin P.V., Zacharias H. *Eur. Phys. J. D*, **68**, 325 (2014).
- Rothhardt J., Hädrich S., Demmler S., Krebs M., Fritzsche S., Limpert J., Tünnermann A. *Phys. Rev. Lett.*, **112**, 233002 (2014).
- Ackermann P., Münch H., Halfmann T. *Opt. Express*, **20**, 13824 (2012).
- Ganeev R.A., Baba M., Suzuki M., Kuroda H. *J. Appl. Phys.*, **99**, 103303 (2006).
- Ganeev R.A., Naik P.A., Singhal H., Chakera J.A., Gupta P.D. *Opt. Lett.*, **32**, 65 (2007).
- Ganeev R.A., Suzuki M., Baba M., Kuroda H. *Appl. Phys. B*, **81**, 1081 (2005).
- Ganeev R.A., Singhal H., Naik P.A., Arora V., Chakravarty U., Chakera J.A., Khan R.A., Redkin P.V., Raghuramaiah M., Gupta P.D. *J. Opt. Soc. Am. B*, **23**, 2535 (2006).
- Suzuki M., Baba M., Ganeev R., Kuroda H., Ozaki T. *Opt. Lett.*, **31**, 3306 (2006).

66. 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).
67. Ganeev R.A., Singhal H., Naik P.A., Chakravarty U., Arora V., Chakera J.A., Khan R.A., Raghuramaiah M., Kumbhare S.R., Kushwaha R.P., Gupta P.D. *Appl. Phys. B*, **87**, 243 (2007).
68. Suzuki M., Baba M., Kuroda H., Ganeev R.A., Elouga Bom L.B., Ozaki T. *Opt. Express*, **15**, 4112 (2007).
69. Ganeev R.A., Elouga Bom L.B., Kieffer J.-C., Ozaki T. *Phys. Rev. A*, **76**, 023831 (2007).
70. Ganeev R.A., Baba M., Suzuki M., Kuroda H. *Phys. Lett. A*, **339**, 103 (2005).
71. Ozaki T., Elouga Bom L.B., Ganeev R., Kieffer J.-C., Suzuki M., Kuroda H. *Laser Part. Beams*, **25**, 321 (2007).
72. Ганеев Р.А. *УФН*, **179** (1), 65 (2009).
73. Ganeev R.A., Singhal H., Naik P.A., Kulagin I.A., Redkin P.V., Chakera J.A., Tayyab M., Khan R.A., Gupta P.D. *Phys. Rev. A*, **80**, 033845 (2009).
74. Ganeev R.A., Suzuki M., Kuroda H. *J. Opt. Soc. Am. B*, **31**, 911 (2014).
75. Ganeev R.A. *J. Opt. Soc. Am. B*, **31**, 2221 (2014).
76. Ganeev R.A., Suzuki M., Kuroda H. *Phys. Plasmas*, **21**, 053503 (2014).
77. Ganeev R.A., Suzuki M., Yoneya S., Kuroda H. *Laser Phys.*, **24**, 115405 (2014).
78. Ganeev R.A. *Nonlinear Optical Properties of Materials* (Berlin: Springer, 2013, Vol. 174).
79. Ganeev R.A. *Plasma Harmonics* (Singapore: Pan Stanford Publ., 2014).
80. Andreev A.V., Ganeev R.A., Kuroda H., Stremoukhov S.Y., Shoutova O.A. *Eur. Phys. J. D*, **67**, 22 (2013).
81. Ganeev R.A., Hutchison C., Witting T., Frank F., Weber S., Okell W.A., Fiordilino E., Cricchio D., Persico F., Zaïr A., Tisch J.W.G., Marangos J.P. *J. Opt. Soc. Am. B*, **30**, 7 (2013).
82. Ganeev R.A., Witting T., Hutchison C., Frank F., Tudorovskaya M., Lein M., Okell W.A., Zaïr A., Marangos J.P., Tisch J.W.G. *Opt. Express*, **20**, 25239 (2012).
83. Ganeev R.A., Hutchison C., Witting T., Frank F., Okell W.A., Zaïr A., Weber S., Redkin P.V., Lei D.Y., Roschuk T., Maier S.A., López-Quintas I., Martín M., Castillejo M., Tisch J.W.G., Marangos J.P. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **45**, 165402 (2012).
84. Haessler S., Elouga Bom L.B., Gobert O., Hergott J.-F., Lepetit F., Perdrix M., Carré B., Ozaki T., Salières P. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **45**, 074012 (2012).
85. Haessler S., Strelkov V., Elouga Bom L.B., Khokhlova M., Gobert O., Hergott J.-F., Lepetit F., Perdrix M., Ozaki T., Salières P. *New J. Phys.*, **15**, 013051 (2013).
86. Pertot Y., Chen S., Khan S.D., Elouga Bom L.B., Ozaki T., Chang Z. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **45**, 074017 (2012).
87. Hutchison C., Ganeev R.A., Witting T., Frank F., Okell W.A., Tisch J.W.G., Marangos J.P. *Opt. Lett.*, **37**, 2064 (2012).
88. Ganeev R.A., Boltaev G.S., Satlikov N.K., Kulagin I.A., Usmanov T. *J. Opt. Soc. Am. B*, **29**, 3286 (2012).
89. Ganeev R.A., Hutchison C., Zaïr A., Witting T., Frank F., Okell W.A., Tisch J.W.G., Marangos J.P. *Opt. Express*, **20**, 90 (2012).
90. Ganeev R.A., Strelkov V.V., Hutchison C., Zaïr A., Kilbane D., Khokhlova M.A., Marangos J.P. *Phys. Rev. A*, **85**, 023832 (2012).
91. Ganeev R.A., Abdelrahman Z., Frank F., Witting T., Okell W.A., Fabris D., Hutchison C., Marangos J.P., Tisch J.W.G. *Appl. Phys. Lett.*, **104**, 021122 (2014).
92. Ganeev R.A., Suzuki M., Yoneya S., Kuroda H. *Appl. Phys. Lett.*, **105**, 041111 (2014).
93. Ganeev R.A., Hutchison C., Siegel T., Zaïr A., Marangos J.P. *Phys. Rev. A*, **83**, 063837 (2011).
94. Ganeev R.A., Suzuki M., Baba M., Kuroda H. *J. Opt. Soc. Am. B*, **22**, 1927 (2005).
95. Ganeev R.A., Suzuki M., Baba M., Kuroda H. *J. Opt. Soc. Am. B*, **23**, 1332 (2006).
96. Ganeev R.A., Naik P.A., Singhal H., Chakera J.A., Kuroda H., Gupta P.D. *J. Opt. Soc. Am. B*, **24**, 1138 (2007).
97. Ganeev R.A., Elouga Bom L.B., Kieffer J.-C., Ozaki T. *J. Opt. Soc. Am. B*, **24**, 1319 (2007).
98. Suzuki M., Baba M., Ganeev R.A., Kuroda H., Ozaki T. *J. Opt. Soc. Am. B*, **24**, 2686 (2007).
99. Ganeev R.A., Elouga Bom L.B., Ozaki T., Redkin P.V. *J. Opt. Soc. Am. B*, **24**, 2770 (2007).
100. Suzuki M., Ganeev R.A., Elouga Bom L.B., Baba M., Ozaki T., Kuroda H. *J. Opt. Soc. Am. B*, **24**, 2847 (2007).
101. Ganeev R.A., Suzuki M., Baba M., Ichihara M., Kuroda H. *J. Opt. Soc. Am. B*, **25**, 325 (2008).
102. Ganeev R.A., Milošević D.B. *J. Opt. Soc. Am. B*, **25**, 1127 (2008).
103. Ganeev R.A., Suzuki M., Baba M., Kuroda H. *J. Opt. Soc. Am. B*, **25**, 2096 (2008).
104. Ganeev R.A., Singhal H., Naik P.A., Chakera J.A., Tayyab M., Baba M., Kuroda H., Gupta P.D. *J. Opt. Soc. Am. B*, **26**, 2143 (2009).
105. Ganeev R.A., Chakera J.A., Naik P.A., Singhal H., Khan R.A., Gupta P.D. *J. Opt. Soc. Am. B*, **28**, 1055 (2011).
106. Ganeev R.A., Naik P.A., Chakera J.A., Singhal H., Pramanik N.C., Abraham P.A., Rani Panicker N., Kumar M., Gupta P.D. *J. Opt. Soc. Am. B*, **28**, 360 (2011).
107. Redkin P.V., Kodirov M.K., Ganeev R.A. *J. Opt. Soc. Am. B*, **28**, 165 (2011).
108. Ganeev R.A., Suzuki M., Kuroda H. *Phys. Rev. A*, **89**, 033821 (2014).
109. Ganeev R.A., Suzuki M., Redkin P.V., Kuroda H. *J. Nonlin. Opt. Phys. Mater.*, **23**, 1450013 (2014).
110. Ganeev R.A., Suzuki M., Kuroda H. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **47**, 105401 (2014).
111. Ганеев Р.А., Сузуки М., Курода Х. *Письма в ЖЭТФ*, **99** (7), 432 (2014).
112. Sheinfux A.H., Henis Z., Levin M., Zigler A. *Appl. Phys. Lett.*, **98**, 141110 (2011).
113. Ganeev R.A. *Laser-Surface Interactions* (Berlin: Springer, 2013).
114. Kim S., Jin J., Kim Y.-J., Park I.-Y., Kim Y., Kim S.-W. *Nature*, **453**, 757 (2008).
115. Hanke T., Krauss G., Traütlein D., Wild B., Bratschitsch R., Leitenstorfer A. *Phys. Rev. Lett.*, **103**, 257404 (2009).
116. Ko K.D., Kumar A., Fung K.H., Ambekar R., Liu G.L., Fang N.X., Toussaint K.C. *Nano Lett.*, **11**, 61 (2011).
117. Seres J., Yakovlev V.C., Seres E., Strelci C.H., Wobruschek P., Spielmann C.H., Krausz F. *Nature Phys.*, **3**, 878 (2007).
118. Pirri A., Corsi C., Bellini M. *Phys. Rev. A*, **78**, 011801 (2008).
119. Tosa V., Yakovlev V.S., Krausz F. *New J. Phys.*, **10**, 025016 (2008).
120. Willner A., Tavella F., Yeung M., Dzelzainis T., Kamperidis C., Bakarezos M., Adams D., Schulz M., Riedel R., Hoffmann M.C., Hu W., Rossbach J., Drescher M., Papadogiannis N.A., Tatarakis M., Dromey B., Zepf M. *Phys. Rev. Lett.*, **107**, 175002 (2011).
121. Hutchison C., Ganeev R.A., Castillejo M., Lopez-Quintas I., Zaïr A., Weber S.J., McGrath F., Abdelrahman Z., Oppermann M., Martín M., Lei D.J., Maier S.A., Tisch J.W.G., Marangos J.P. *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **15**, 12308 (2013).
122. Lopez-Quintas I., Oujja M., Sanz M., Benitez-Cañete A., Hutchison C., de Nalda R., Martín M., Ganeev R.A., Marangos J.P., Castillejo M. *Appl. Surf. Sci.*, **302**, 299 (2014).
123. Elouga Bom L. B., Haessler S., Gobert O., Perdrix M., Lepetit F., Hergott J.-F., Carré B., Ozaki T., Salières P. *Opt. Express*, **19**, 3677 (2011).
124. Ganeev R.A., Hutchison C., Castillejo M., Lopez-Quintas I., McGrath F., Lei D.Y., Marangos J.P. *Phys. Rev. A*, **88**, 033803 (2013).
125. Ganeev R.A., Witting T., Hutchison C., Strelkov V.V., Frank F., Castillejo M., Lopez-Quintas I., Abdelrahman Z., Tisch J.W.G., Marangos J.P. *Phys. Rev. A*, **88**, 033838 (2013).
126. Elouga Bom L.B., Bouzid F., Vidal F., Kieffer J.-C., Ozaki T. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **41**, 215401 (2008).
127. Singhal H., Arora V., Rao B.S., Naik P.A., Chakravarty U., Khan R.A., Gupta P.D. *Phys. Rev. A*, **79**, 023807 (2009).
128. Pertot Y., Elouga Bom L.B., Bhardwaj V.R., Ozaki T. *Appl. Phys. Lett.*, **98**, 101104 (2011).
129. Elouga Bom L.B., Pertot Y., Bhardwaj V.R., Ozaki T. *Opt. Express*, **19**, 3077 (2011).
130. Kumar M., Singhal H., Chakera J.A., Naik P.A., Khan R.A., Gupta P.D. *J. Appl. Phys.*, **114**, 033112 (2013).
131. Singhal H., Naik P.A., Kumar M., Chakera J.A., Gupta P.D. *J. Appl. Phys.*, **115**, 033104 (2014).
132. Ganeev R.A. *J. Nonlin. Opt. Mater. Proc.*, **22**, 1350027 (2013).
133. Ганеев Р.А. *УФН*, **183** (8), 815 (2013).