

КОГЕРЕНТНЫЕ ЭФФЕКТЫ В ПРОЦЕССЕ ГЕНЕРАЦИИ ВЫСОКИХ ГАРМОНИК*Д. Ф. Зарецкий, Э. А. Нерсесов**Московский государственный инженерно-физический институт
115409, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 31 января 1997 г.

Показано, что в случае фазового синхронизма излучателей и при определенном соотношении между параметрами волны накачки и атомного пучка возможен эффект насыщения, при котором интенсивность излучения высоких гармоник перестает зависеть от концентрации атомов. В рамках простой модели, учитывающей неоднородность интенсивности волны накачки в поперечном к оси фокуса направлении, получено выражение для оптимальной концентрации атомов среды, соответствующей насыщению интенсивности. Полученные зависимости оптимальной концентрации атомов от мощности лазерной волны и номера гармоники находятся в качественном согласии с недавно опубликованными экспериментальными данными [8].

1. ВВЕДЕНИЕ

Явление генерации высоких гармоник на частотах, соответствующих нечетному числу квантов ионизирующей лазерной волны, исследовалось впервые в экспериментальных работах [1–4]. Одной из особенностей этого явления явилась установленная в [3] нелинейная зависимость интенсивности гармоники I_s (s — номер гармоники) от концентрации n_a атомов среды. В ряде теоретических работ этот результат был связан с явлением фазового синхронизма в процессе генерации гармоник. Так, в работе [5] методом численного решения уравнений Максвелла в нелинейной среде получены значения интенсивностей I_s в зависимости от основных параметров ионизирующей волны и пучка атомов.

В работах [6, 7] явление генерации высоких гармоник изучалось с помощью квантового аналитического подхода, развитого авторами для описания эффектов надпороговой ионизации атомов. Генерация гармоник непосредственно связывалась с явлением надпороговой ионизации атомов, так что своим происхождением высокие гармоники обязаны процессу перехода атома из основного состояния в непрерывный спектр с поглощением нескольких квантов волны накачки и излучением кванта высокой гармоники с возвращением в основное состояние. Полученные в [6, 7] выражения для вероятностей спонтанного и вынужденного излучения высоких гармоник в условиях фазового синхронизма излучателей дали удовлетворительное объяснение основных закономерностей явления (форма спектра, зависимость I_s от различных параметров задачи, таких как интенсивность и размеры фокуса лазерной волны, плотность пучка атомов и его расположение относительно фокуса и т. д.).

В недавней совместной экспериментальной работе двух групп в Лунде и Сакле [8] исследовалась зависимость интенсивности генерации высоких гармоник от плотности атомной среды. Было установлено, что в области невысоких давлений (4–14 мбар) интенсивность гармоник возрастает с ростом концентрации атомов приблизительно по

квадратичному закону. Однако по достижении некоторой оптимальной концентрации интенсивность генерации выходит на постоянную величину, и дальнейший рост плотности среды сопровождается монотонным уменьшением интенсивности. В [8] было установлено, что значение оптимальной концентрации зависит как от номера гармоники (убывает с ростом номера), так и от интенсивности лазерной волны (при фиксированном номере гармоники возрастает с увеличением мощности волны накачки).

В связи с этими экспериментальными результатами представляет интерес их качественное объяснение в рамках аналитического квантового подхода. В данной работе показано, что в условиях фазового синхронизма излучающих атомов и при невысокой плотности среды имеет место квадратичная зависимость интенсивности гармоник I_s от концентрации атомов n_a . Однако при определенных соотношениях между параметрами волны накачки и пучка возникает эффект насыщения, когда интенсивность I_s перестает зависеть от концентрации. Причина подобного явления связана со значительным фазовым сдвигом излучателей, возникающим на расстоянии меньшем продольного размера объема взаимодействия.

В рамках простой модели, учитывающей неоднородность интенсивности лазерной волны в поперечном к оси фокуса направлении, получено соотношение для оптимальной концентрации атомов. Качественные зависимости, следующие из этого соотношения, находятся в согласии с данными работы [8].

2. ВЕРОЯТНОСТЬ СПОНТАННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

Рассматривается временная задача о переходах из основного состояния атомов с поглощением нескольких квантов волны накачки и возвращением в основное состояние с излучением кванта высокой гармоники. Амплитуда вероятности перехода системы с излучением к моменту времени t квантов s -й гармоники ($\mathbf{K}, \Omega = s\omega$) дается выражением [7] ($\hbar = c = 1$)

$$A_{\Omega}(t) = A_{0s}(eA_{0\Omega}) \sum_j \exp [i(\mathbf{s}\mathbf{k} - \mathbf{K})\mathbf{R}_j] \xi^*(s\omega - \Omega) \exp [i(s\omega - \Omega - i\lambda)t], \quad (1)$$

где $A_{0\Omega}$ — амплитуда векторного потенциала излучаемой волны частоты Ω ; \mathbf{k} и ω — волновой вектор и частота ионизирующей волны; \mathbf{R}_j — радиус-вектор j -го атома (остаточного иона) и суммирование в (1) проводится по всем атомам в объеме взаимодействия среды с лазерной волной; $\xi^*(x) = \mathcal{P}/x + i\pi\delta(x)$; безразмерный множитель A_{0s} определяется амплитудой вероятности многофотонной ионизации атома и содержит функцию, описывающую огибающую максимумов спектра надпороговых фотоэлектронов; параметр $\lambda \approx +0$ соответствует адиабатическому включению поля волны при $t \rightarrow -\infty$.

Из (1) следует формула для вероятности перехода в единицу времени в парциальное конечное состояние системы:

$$\frac{d}{dt} |A_{\Omega}(t)|^2 = A_{0s}^2 (eA_{0\Omega})^2 \left| \sum_j \exp [i(\mathbf{s}\mathbf{k} - \mathbf{K})\mathbf{R}_j] \right|^2 \frac{2\lambda}{(s\omega - \Omega)^2 + \lambda^2}. \quad (2)$$

В случае спонтанного излучения s -й гармоники частоты ω в (2) следует подставить вместо $eA_{0\Omega}$ выражение $eA_{0\Omega} = \sqrt{8\pi\alpha/\Omega V}$, где V — нормировочный объем поля

спонтанного излучения, α — постоянная тонкой структуры, а лоренцову зависимость (последний множитель в (2)) заменить δ -функцией, дающей закон сохранения энергии в рассматриваемом процессе. Эта δ -функция снимается интегрированием по статистическому весу излучаемого кванта (\mathbf{K}, Ω), и в результате вероятность рассматриваемого перехода системы атомов из основного состояния в единицу времени дается выражением

$$w_{sp}^{(s)} = A_{0s}^2 \frac{4\alpha s}{\lambda_0} \int_{(4\pi)} \left| \sum_j \exp [i(\mathbf{s}\mathbf{k} - \mathbf{K})\mathbf{R}_j] \right|^2 d\Omega_{\mathbf{K}}, \quad (3)$$

в котором интегрирование проводится по направлениям вылета кванта \mathbf{K} ; $\lambda_0 = 2\pi/\omega$ — длина волны лазерного излучения.

Мы ограничимся вычислением вероятности излучения кванта высокой гармоники в единицу времени. При этом полная вероятность перехода за импульс накачки по порядку величины может быть оценена как $w_{sp}^{(s)}\tau_i$, где τ_i — длительность импульса ионизирующей волны.

Как следует из (3), вероятность $w_{sp}^{(s)}$ представима в виде произведения двух множителей: величина A_{0s}^2 описывает переход, происходящий на одиночном атоме и не зависит от номера атома; суммирование по j отвечает коллективному отклику среды на воздействие волн. Вероятность A_{0s}^2 относится к переходу атома из основного состояния с поглощением нескольких квантов волны накачки и возвращением в основное состояние с излучением одного кванта высокой гармоники. Эта вероятность в случае многофотонных переходов определяется составным матричным элементом и включает в себя многократное суммирование по промежуточным состояниям атома, суммирование по виртуальным квазиэнергетическим состояниям фотоэлектрона и интегрирование по непрерывному спектру [7]. Условие фазового синхронизма атомов, излучающих в рассматриваемом процессе, связывается с поведением показателей экспонент в сумме (3).

Последующие вычисления легко осуществляются в приближении сплошной среды (критерий сформулирован ниже), когда суммирование в (3) заменяется интегрированием по объему взаимодействия атомов с волной. При этом из (3) следует

$$w_{sp}^{(s)} = A_{0s}^2 \left(\frac{\pi}{3}\right)^2 \frac{\alpha s}{\lambda_0} (V_{int} n_a)^2 \int_{(4\pi)} \left[\frac{2J_1(v)}{v} \right]^2 \frac{\sin^2 u}{u^2} d\Omega_{\mathbf{K}}, \quad (4)$$

где $V_{int} = \pi\rho_0^2 d$ — объем взаимодействия атомного пучка с ионизирующей волной, ρ_0 — радиус фокуса волны в его центре, d — диаметр пучка атомов, посылаемых в поперечном к волне накачки направлении; $J_1(v)$ — функция Бесселя; аргументы дифракционных множителей

$$v = s\omega\rho_0(\theta - \theta') \quad \text{и} \quad u = s\omega [\theta^2 - (\theta_0^2 + \theta'^2)] d/4, \quad (5)$$

где $\theta_0^2 \equiv 2|\Delta n|$ ($\Delta n = n_\omega - n_\Omega$ — разность показателей преломления среды для волн соответствующих частот); θ и θ' — углы между осью z (направлением распространения ионизирующей волны) и соответственно векторами \mathbf{K} и \mathbf{k} . Угол θ' связан с разбросом по направлениям волнового вектора \mathbf{k} , происходящим в результате фокусировки лазерной волны. В получаемых в дальнейшем выражениях необходимо проводить усреднение по этому углу.

Как показали результаты численных расчетов работы [5], в условиях экспериментов по генерации высоких гармоник с использованием сильной лазерной волны, когда процесс фотоионизации атомов достигает насыщения, основной вклад в значение Δn вносят фотоэлектроны и $|\Delta n| = \omega_p^2/2\omega^2$, где $\omega_p = \sqrt{4\pi n_i e^2/m_e}$ — плазменная частота ионизованной среды ($n_i \approx n_a$ в условиях насыщения).

Приближение сплошной среды имеет место при выполнении неравенства $|sk - K|a \ll 1$, или с учетом введенного параметра Δn

$$\frac{|\Delta n|a}{\lambda_0/s} = \frac{\theta_0^2 a s}{2\lambda_0} \ll 1, \quad (6)$$

где a — среднее расстояние между атомами среды. Нетрудно видеть, что при заданной плотности среды это условие ограничивает сверху допустимые номера гармоник s .

В соответствии с (4) и (5) угловая картина интенсивности излучения гармоники представлена двумя острыми дифракционными максимумами в направлении углов $\theta = \theta'$ и $\theta = \sqrt{\theta_0^2 + \theta'^2}$, а результирующая интенсивность зависит как от угловой расстройки θ_0 , так и от величин угловых ширин $\Delta\theta_{\perp}$ и $\Delta\theta_{\parallel}$ соответствующих дифракционных множителей.

Оценки работы [7] показали, что для типичных параметров экспериментов по генерации высоких гармоник полная интенсивность излучения в направлении угла $\theta = \theta'$ в пределах угловой ширины $\Delta\theta_{\perp} \simeq 2\lambda_0/s\pi\rho_0$ значительно превосходит аналогичную по смыслу величину, получаемую в направлении угла $\theta = \sqrt{\theta_0^2 + \theta'^2}$ и в пределах ширины $\Delta\theta_{\parallel} \simeq \lambda_0/s\theta_0 d$. По этой причине основной вклад в величину интеграла в (4) дает область углов θ , для которой параметр $v \approx 0$. В случае жесткой фокусировки лазерной волны, когда угловая расходимость в фокусе θ_f превосходит дифракционную ширину $\Delta\theta_{\perp}$: $\theta_f > \Delta\theta_{\perp}$, в результате интегрирования из (4) получим

$$w_{sp}^{(s)} = A_{0s}^2 \left(\frac{\pi}{3}\right)^2 \frac{\alpha s}{\lambda_0} (V_{int} n_a)^2 2\pi\theta' \Delta\theta_{\perp} \frac{\sin^2(s\omega\theta_0^2 d/4)}{(s\omega\theta_0^2 d/4)^2}. \quad (7)$$

Полагая для простоты оценки, что в пределах фокуса угловая плотность интенсивности лазерной волны постоянная, после усреднения по θ' из (7) следует результат

$$w_{sp}^{(s)} = A_{0s}^2 \left(\frac{\pi}{3}\right)^2 \frac{\alpha s}{\lambda_0} (V_{int} n_a)^2 \pi \Delta\theta_{\perp} \theta_f \frac{\sin^2(s\omega\theta_0^2 d/4)}{(s\omega\theta_0^2 d/4)} \quad (8)$$

при условии, что $\theta_f > \Delta\theta_{\perp}$.

В предельном случае мягкой фокусировки, когда $\theta_f < \Delta\theta_{\perp}$, в процедуре усреднения по θ' нет необходимости и вероятность излучения дается формулой, аналогичной (8), с заменой множителя $\pi\Delta\theta_{\perp}\theta_f$ на телесный угол $\pi(\Delta\theta_{\perp})^2$ дифракционного пятна в направлении волны накачки.

Заканчивая обсуждение вопроса о влиянии фокусировки волны на интенсивность спонтанного излучения гармоник, приведем выражение для угловой расходимости θ_f . В ближней зоне дифракции, когда поперечный размер пучка d значительно меньше конфокального параметра L (именно этот случай реализуется в известном эксперименте [3]), значение θ_f дается формулой

$$\theta_f \simeq \frac{d\lambda_0^2}{(2\pi)^2 \rho_0^3}. \quad (9)$$

Для основных параметров лазера и пучка, приводимых в Заключении следует, что при $\rho_0 \simeq 10^{-3}$ см имеет место жесткая фокусировка, а при $\rho_0 \simeq 10^{-1}$ см — мягкая.

Полная интенсивность излучения s -й гармоники в пределах дифракционного пятна в направлении угла $\theta = 0$ дается выражением (мы ограничимся случаем достаточно больших ρ_0 , когда $\theta_f < \Delta\theta_{\perp}$)

$$I_s = w_{sp}^{(s)} s\omega / \pi \rho_0^2 = A_{0s}^2 \frac{(2\pi)^3}{9} \alpha (dn_a)^2 \frac{\sin^2(s\omega\theta_0^2 d/4)}{(s\omega\theta_0^2 d/4)^2}. \quad (10)$$

Если основные параметры задачи таковы, что реализовано условие $u_0 = s\omega\theta_0^2 d/4 < 1$, интенсивность I_s зависит квадратично от n_a , а ее величина

$$I_s = A_{0s}^2 \frac{(2\pi)^3}{9} \alpha (dn_a)^2. \quad (11)$$

Этот результат возникает в условиях фазового синхронизма всех атомов, находящихся в объеме взаимодействия V_{int} с волной. Вполне естественно, что выражение (11) применимо по этой причине только в достаточно разреженных средах. Так, если использовать для оценок параметры работы [3] ($\lambda_0 = 1064$ нм, $d = 1$ мм), на допустимую концентрацию атомов возникает ограничение сверху:

$$n_a < 2.1 \cdot 10^{18} / s \text{ см}^{-3}. \quad (12)$$

Для гармоник с высокими номерами $s \simeq 30\text{--}50$ условие (12) приводит к значениям $n_a \approx 10^{16} \text{ см}^{-3}$.

Возрастание интенсивности (11) с ростом n_a при фиксированных параметрах волны происходит до тех пор, пока аргумент дифракционного множителя $\sin^2 u_0 / u_0^2$ в (10) не станет значительным: $u_0 \gg 1$. При этом интенсивность I_s перестает зависеть от n_a и ее величина дается формулой

$$I_s = A_{0s}^2 \frac{2(2\pi)^3}{9} \frac{m_e^2}{s^2 \alpha \lambda_0^2}. \quad (13)$$

Возникающий здесь эффект насыщения связан с тем, что при большой плотности среды расстояние вдоль направления волны накачки, на котором набирается заметный фазовый сдвиг когерентно излучающих атомов,

$$L_{coh} = \frac{2\lambda_0}{s\theta_0^2} = \frac{2\pi m_e}{s\alpha \lambda_0 n_a}, \quad (14)$$

оказывается меньше продольного размера d области взаимодействия пучка с волной. Это приводит к эффективной замене параметра d на L_{coh} в (10).

Значение концентрации атомов, при которой достигается насыщение, определяется из условия $L_{coh} \simeq d$ и дается равенством

$$n_a \approx 2 \cdot 10^{13} / s\lambda_0 d \quad (15)$$

(здесь λ_0 и d измеряются в см, n_a — в см^{-3}).

Возможность подобного эффекта насыщения в условиях фазового синхронизма при определенном выборе параметров задачи отмечалось в работе [9], в которой этот вывод был сделан на основе численного анализа результатов эксперимента [3].

На самом деле, как следует из результатов недавней экспериментальной работы [8], значение оптимальной концентрации атомов, при которой достигается насыщение, превосходит более чем на порядок оценку (15). Это различие может быть обусловлено неоднородной ионизацией атомов в пределах фокуса волны накачки. Отмечаемая неоднородность является следствием распределения интенсивности лазерной волны в поперечном направлении к оси фокальной области. Для того чтобы качественно понять и оценить этот эффект, рассмотрим следующую модель. Разобьем область фокуса на два участка в поперечном направлении. Будем считать, что во внутренней области, прилегающей к оси фокуса, происходит полная ионизация атомов за время прохождения импульса волны накачки. На периферии фокуса ионизация носит частичный характер. В рамках этой модели дифракционный фактор $\sin^2 u_0/u_0^2$ в (10) изменяется и выражение для интенсивности приобретает вид

$$I_s \propto \frac{\sin^2(s\omega\theta_0^2 d/4)}{(s\omega\theta_0^2 d/4)^2} \left(\frac{\Delta\rho}{\rho_0}\right)^2 + \frac{\sin^2(s\omega\theta_0'^2 d/4)}{(s\omega\theta_0'^2 d/4)^2} \left[1 - \left(\frac{\Delta\rho}{\rho_0}\right)^2\right] \bar{\alpha}, \quad (16)$$

где $\Delta\rho$ — эффективный радиус внутренней области фокуса; $\bar{\alpha} = |A'_{0s}/A_{0s}|^2$ и θ_0' и θ_0 — параметры, зависящие от степени ионизации среды соответственно во внешней и внутренней областях.

Переход от квадратичной зависимости интенсивности гармоники к насыщению по n_a имеет место, когда оба слагаемых в (16) становятся одного порядка и при этом во внутренней области достигнуто насыщение ($s\omega\theta_0^2 d/4 > 1$). Тогда из выражения (16) следует условие для значения концентрации, при которой наступает отклонение от квадратичной зависимости интенсивности гармоники:

$$n_a \approx \frac{(\Delta\rho/\rho_0)^2}{[1 - (\Delta\rho/\rho_0)^2]} \frac{m_e \omega}{\bar{\alpha} s e^2 d}. \quad (17)$$

Значение n_a , следующее из (17), гораздо больше ранее приводимой оценки (15), если $\Delta\rho/\rho_0 \approx 1$, т. е. имеет место почти полная ионизация атомов во всем объеме фокуса, а отношение амплитуд $\bar{\alpha} < 1$. Из условия (17) также следуют наблюдаемые в эксперименте [8] зависимости оптимальной концентрации атомов для данной гармоники от мощности волны накачки (в диапазоне от $0.6 \cdot 10^{15}$ до $1.5 \cdot 10^{15}$ Вт/см²), а также от номера гармоники ($s \simeq 50-70$) при фиксированной интенсивности волны.

Как следует из (17), оптимальная концентрация должна уменьшаться с ростом номера s , что и наблюдается в эксперименте. Кроме того, увеличение мощности волны накачки при фиксированном s сопровождается приближением параметра $\Delta\rho/\rho_0$ к единице, а следовательно, приводит к росту n_a , что в действительности наблюдается в эксперименте [8].

3. ОЦЕНКИ. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В этом разделе приведем параметры волны накачки и атомного пучка, а также результаты численных оценок основных величин, выражения для которых получены в работе. При выборе параметров пучка и волны будем руководствоваться двумя основными соображениями. Эффекты надпороговой ионизации атомов и генерации высоких гармоник рассматривались нами в многофотонном приближении, когда параметр адиабатичности Келдыша $\gamma \geq 1$. Это условие накладывает ограничение сверху на интенсивность волны в объеме взаимодействия и степень ее фокусировки. Однако отметим, что рассмотренные в работе условия фазового синхронизма излучателей не зависят от

механизма ионизации отдельного атома, а поэтому в той же мере применимы и для случайной ионизации в режиме туннелирования, когда $\gamma < 1$. Что же касается свойств среды, параметры пучка (концентрация, степень коллимации, диаметр поперечного сечения) выбираются из оптимальных условий наблюдения генерации гармоник.

Мы ограничимся числовым примером, соответствующим многофотонному приближению. С целью проверки правильности полученных в настоящей работе формул обратимся к результатам эксперимента [3], в котором эффекты генерации высоких гармоник наблюдались в режиме жесткой фокусировки ($\rho_0 = 18$ мкм), плотной среды ($n_a = 5 \cdot 10^{17}$ см $^{-3}$), высокой интенсивности волны в фокусе ($I = 3 \cdot 10^{13}$ Вт/см 2) и импульсов сравнительно большой длительности ($\tau_i = 36$ пс).

Расчет по нашим формулам показал, что в случае атомов Ag число фотонов с номером гармоники $s = 33$, испускаемых за один импульс волны накачки, достигает значения $N_s \simeq 10^5$ (величина рассчитанного по формулам из работы [7] параметра $A_{0s} \simeq 1.4 \cdot 10^{-7}$). Следует признать вполне удовлетворительным совпадение приведенного значения N_s с экспериментальным.

Полученные в работе результаты основаны на предположении о независимости амплитуды A_{0s} (см. (1)) от координат атома. Это предположение, строго говоря, справедливо лишь в случае однородного поля волны накачки. На самом деле поле волны в фокусе неоднородно, что может приводить к появлению дополнительной фазы в сумме (1). Однако характерная длина, на которой существенно меняется эта фаза, порядка ρ_0 . Поскольку характерная ширина поперечного дифракционного фактора $\Delta\theta_{\perp} \sim \lambda/s\rho_0 \ll 1$, такая «вялая» зависимость дополнительной фазы не меняет полученных результатов.

В заключение кратко сформулируем основные результаты, полученные в работе:

1) показано, что в условиях фазового синхронизма излучающих атомов зависимость интенсивности генерации гармоник от концентрации атомов среды может быть различной в предельных случаях достаточно разреженной и плотной сред (от квадратичной зависимости до постоянной величины);

2) в простой модели учтен эффект неоднородности интенсивности волны накачки в поперечном к оси фокуса направлении. В рамках этой модели сформулировано соотношение для оптимальной концентрации атомов среды, соответствующей указанному в 1) переходу. Полученные результаты находятся в качественном согласии с данными недавней работы [8].

Авторы выражают благодарность Н. Б. Делоне за интерес к работе и обсуждение ее результатов, а также П. Агостини за предоставление данных совместной экспериментальной работы Лунд-Сакле.

Литература

1. A. McPherson, G. Gibson, H. Jara et al., J. Opt. Soc. Amer. B **4**, 595 (1987).
2. M. Ferray, A. L'Huillier, L. A. Lompre et al., J. Phys. B **21**, L31 (1988).
3. X. Li, A. L'Huillier, M. Ferray et al., Phys. Rev. A **39**, 5751 (1989).
4. A. L'Huillier, L. A. Lompre, G. Mainfray, and C. Manus, in *Proceedings of the 5th International Conference on Multiphoton Processes*, Paris (1990), p. 45.
5. A. L'Huillier, P. Balcou, S. Candel et al., Phys. Rev. A **46**, 2778 (1992).
6. E. A. Nersesov and D. F. Zaretsky, Laser Phys. **3**, 1105 (1993).
7. Д. Ф. Зарецкий, Э. А. Нерсесов, ЖЭТФ **109**, 1994 (1996).
8. C. Altucci, T. Starczewski, E. Mevel et al., J. Opt. Soc. Amer. B **13**, 148 (1996).
9. S. C. Rae, K. Burnett, and J. Cooper, Phys. Rev. A **50**, 3438 (1994).