ГЕНЕРАЦИЯ ГАРМОНИК ВЫСОКОГО ПОРЯДКА АТОМАМИ В ДВУХЧАСТОТНЫХ ЛАЗЕРНЫХ ПОЛЯХ: ФАЗОВЫЙ КОНТРОЛЬ И УПРАВЛЕНИЕ СПЕКТРОМ И ДЛИТЕЛЬНОСТЬЮ РЕКОМБИНАЦИОННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

В. Д. Таранухин*

Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова, физический факультет 119992, Москва, Россия

Поступила в редакцию 21 апреля 2003 г.

Исследуется возможность фазового контроля надпороговой туннельной ионизации и последующего рекомбинационного излучения при использовании двухчастотных лазерных полей. Показано, что в таких полях возможен контроль момента ионизации t_0 (в пределах оптического цикла T) и момента рекомбинации t_k . Найдены условия, минимизирующие характерные длительности $\delta t_0 \ll T$ и $\delta t_k \ll T$, в пределах которых имеет место эффективная ионизация и рекомбинация. Фазовый контроль позволяет реализовать генерацию рекомбинационного излучения с селекцией узкого спектрального диапазона, а дополнительная высокочастотная «подсветка» — режим «усиления» высоких гармоник. Показано, что в случае специальной двухчастотной накачки с использованием эллиптически поляризованного излучения возможна генерация когерентных электромагнитных импульсов аттосекундной длительности. С ростом интенсивности излучения накачки их длительность убывает и может достичь субаттосекундного диапазона. При экспериментальной реализации таких импульсов возможен прорыв в развитии новых методов фемто- и аттосекундной диагностики быстропротекающих процессов.

PACS: 32.80.Rm, 34.80.Lx, 03.65.Sq, 03.65.Ge

1. ВВЕДЕНИЕ

Возможность получения ультракоротких импульсов когерентного излучения длительностью 10⁻¹⁵-10⁻¹⁷ с интенсивно исследуется в настоящее время с целью развития эффективных методов фемто- и аттосекундной метрологии [1]. Современные предложения по генерации фемто- и субфемтосекундных импульсов связаны с процессом генерации гармоник высокого порядка (ГГВП) при надпороговой туннельной ионизации атомов в сильных лазерных полях [1,2]. В общем случае спектр высоких гармоник представляет широкое, медленно спадающее плато, простирающееся от частоты излучения накачки ω_0 до частоты «отсечки» $\Omega \approx U_i + 3.17 U_p$, где U_i — потенциал ионизации атома, U_p — пондеромоторный потенциал излучения накачки. Отметим сразу, что для

применений необходима только определенная часть этого спектра. Получение субфемтосекундных импульсов возможно при выполнении фазового синхронизма для группы гармоник из плато [3] или за счет методики поляризационного «затвора» [4]. В последней используется излучение накачки с меняющейся во времени эллиптичностью. Это позволяет контролировать возврат фотоэлектронов к родительскому иону (и, соответственно, длительность рекомбинационного излучения), поскольку такой возврат возможен только в те моменты, когда излучение накачки поляризовано линейно. В обоих случаях длительность рекомбинационного излучения $\tau_g \lesssim T = \lambda/c$ (где T и λ — длительность оптического цикла и длина волны накачки, с скорость света), что соответствует длительности порядка одной фемтосекунды.

Одновременно развиваются методы измерения длительности таких коротких импульсов [1,5]. Эти методы используют идею фазового контроля надпо-

^{*}E-mail: tvd@ssf.phys.msu.su

роговой туннельной ионизации — контроля момента ионизации (момента выхода фотоэлектрона в континуум) в пределах оптического периода излучения. Фазовый контроль возможен вследствие того, что при туннельной ионизации фотоэлектрон начинает свое движение в континууме (после этапа подбарьерной эволюции) с нулевой скоростью вдоль мгновенного направления электрического поля накачки. При этом движение электрона в континууме включает как осцилляторную, так и дрейфовую составляющие. Дрейфовая скорость электрона несет информацию о моменте ионизации атома [5] и регистрируется детектором после окончания взаимодействия фотоэлектрона с излучением. В настоящей работе исследуется возможность фазового контроля процесса генерации высоких гармоник в двухчастотных полях. Использование дополнительного излучения (как будет показано ниже) позволяет:

1) управлять спектром ГГВП, например, осуществлять генерацию рекомбинационного излучения в выделенном узком спектральном диапазоне вместо генерации широкого плато;

2) управлять длительностью рекомбинационного излучения; при этом становится реальной возможность генерации когерентных импульсов длительностью $\tau_q \sim 1-10$ аттосекунд (1 ас = 10^{-18} с);

3) обеспечить режим «усиления» высоких гармоник.

Рекомбинационное излучение, возникающее при туннельной ионизации атома и последующей рекомбинации фотоэлектрона с родительским ионом, описывается волновым уравнением с источником, который является второй производной по времени от индуцированного полем дипольного момента $\mathbf{D}(t)$. Момент **D** вычисляется из уравнения Шредингера, определяющего, в частности, его зависимость от времени t. Эта зависимость (наряду с эффектами распространения) определяет длительность рекомбинационного излучения. В настоящей работе эффекты распространения, которые описываются волновым уравнением и которые могут приводить как к удлинению рекомбинационного импульса, так и к его сжатию, не рассматриваются. Основное внимание уделяется расчету одноатомного отклика $\mathbf{D}(t)$.

2. КВАНТОВАЯ МОДЕЛЬ ГЕНЕРАЦИИ ГАРМОНИК ВЫСОКОГО ПОРЯДКА В ДВУХЧАСТОТНЫХ ПОЛЯХ

Квантовую модель генерации ГГВП одиночным атомом в монохроматическом поле [6, 7] можно обоб-

щить на случай более сложной накачки, например, накачки, включающей излучение на двух различных частотах. При этом будем использовать те же приближения, что и в работах [6,7], соответствующие туннельному режиму ионизации атомов. В этом режиме ГГВП допускает квазиклассическое описание и наглядную физическую интерпретацию как процесса, включающего три стадии [8]: собственно ионизацию атома (выход фотоэлектрона в континуум), набор электроном кинетической энергии $\varepsilon \sim U_p$ (надпороговая стадия ионизации) и рекомбинацию электрона на родительском ионе с излучением фотона на частоте $\omega_k = kU_p + U_i$. Фактор k меняется в пределах 0-3.17 в зависимости от фазы (момента) ионизации φ , что и приводит к генерации широкого спектра высоких гармоник. При этом максимальная частота генерации Ω соответствует фазе ионизации $\varphi \approx \pi/10$, отсчитываемой от максимума поля накачки. Заметим также, что ввиду сильной нелинейности процесса генерации высоких гармоник «тонкая» структура спектра ГГВП имеет сложный характер, а при использовании коротких импульсов накачки спектр является сплошным.

Итак, как и в работах [6,7], будем рассматривать излучение накачки достаточно большой интенсивности I, при которой ионизация атома является туннельной. Это позволяет пренебречь влиянием на процесс ионизации из основного атомного состояния промежуточных резонансов, соответствующих переходам в континуум из всех остальных связанных состояний [9]. Учтем также то, что вероятность рекомбинации в основное состояние атома существенно больше, чем в любое другое дискретное состояние [10]. При этом можно пренебречь вкладом в волновую функцию $\Psi(\mathbf{r}, t)$ системы всех дискретных состояний кроме основного $|0\rangle$:

$$\Psi(\mathbf{r},t) = a(t)|0\rangle + \Psi_c, \quad \Psi_c = \int d\mathbf{p} \, b_p(t)|\mathbf{p}\rangle, \quad (1)$$

где a(t) и $b_p(t)$ — амплитуды основного атомного состояния и состояний континуума $|\mathbf{p}\rangle$, соответствующих состояниям электрона с импульсом **p**. С другой стороны, если интенсивность излучения не настолько велика, что реализуется надбарьерная ионизация, и электрон начинает эволюцию в континууме достаточно далеко от родительского иона (на дальней границе достаточно широкого потенциального барьера), то влиянием кулоновских сил на движение электрона в континууме можно пренебречь. Будем пренебрегать также тормозным излучением (на фоне рекомбинационного). Указанные приближения позволяют решить уравнение Шредингера (процедура решения изложена в работе [6]). При этом амплитуду **p**-состояния континуума можно представить в виде

$$b_p(t) = i \int_0^t dt_0 a(t_0) \mathbf{E}(t_0) \mathbf{d} \left(\mathbf{p} - \frac{\mathbf{A}(t_0)}{c} \right) \times \\ \times \exp\left[-iS(\mathbf{p}, t, t_0) \right], \quad (2)$$

где $\mathbf{d}(\mathbf{p}) = \langle \mathbf{p} | \mathbf{r} | 0 \rangle$ — матричный элемент дипольного момента перехода из основного состояния атома в **p**-состояние континуума, $\mathbf{E}(t_0)$ и $\mathbf{A}(t_0)$ — амплитуды электрического поля и вектор-потенциала излучения накачки в момент ионизации t_0 ,

$$S(\mathbf{p},t,t_0) = \int_{t_0}^t dt' \left\{ U_i + \frac{1}{2} \left[\mathbf{p} - \frac{\mathbf{A}(t')}{c} \right]^2 \right\}.$$
 (3)

Отметим, что вклад в амплитуду b_p формируется за все время эффективной ионизации (интеграл по моментам ионизации t_0 в (2)), что приводит к формированию продольной структуры волнового пакета в континууме. Подстановка (2) в (1) позволяет представить волновую функцию Ψ_c в следующем виде:

$$\Psi_{c}(r,t) = i \int_{0}^{t} dt_{0} B(\mathbf{p}_{0},t_{0}) f(\mathbf{r},t,t_{0}) \times \\ \times \exp\left[-iS(\mathbf{p}_{0},t,t_{0}) + i\mathbf{p}_{0} \cdot \mathbf{r}\right], \quad (4)$$

где

$$B(\mathbf{p}_0, t_0) = a(t_0) \mathbf{E}(t_0) \mathbf{d} \left(\mathbf{p}_0 - \frac{\mathbf{A}(t_0)}{c} \right)$$

 амплитуда электронного волнового пакета в момент t₀, а функция

$$f(\mathbf{r}, t, t_0) = \int d\mathbf{p} \frac{\mathbf{d}(\mathbf{p} - \mathbf{A}(t_0)/c)}{\mathbf{d}(\mathbf{p}_0 - \mathbf{A}(t_0)/c)} \times \\ \times \exp\left[-iS(\mathbf{p}, t, t_0) + iS(\mathbf{p}_0, t, t_0) - i\mathbf{p}_0 \cdot \mathbf{r}\right] |\mathbf{p}\rangle \quad (5)$$

описывает форму и фазу пакета (эффект расплывания пакета). В этих выражениях $\mathbf{p}_0(t, t_0)$ — импульс, дающий основной вклад в интеграл (5) и соответствующий стационарной фазе, определяемой условием $\partial S/\partial \mathbf{p} = 0$. Возможность использования стационарной фазы обусловлена тем, что характерный масштаб $p^2 \propto 1/(t-t_0)$ изменения действия S на временах порядка оптического периода гораздо меньше, чем масштаб изменения $p^2 \propto U_i$ матричного элемента **d**. В дальнейшем нас не будет интересовать явный вид формы пакета $f(\mathbf{r}, t, t_0)$. Существенно, однако, что его центр, соответствующий импульсу \mathbf{p}_0 ,

эволюционирует по классической траектории (что непосредственно следует из условия $\partial S/\partial \mathbf{p} = 0$). При этом для ширины пакета будем использовать достаточно строгое выражение (см. ниже формулу (7)), справедливое для режима туннельной ионизации.

С учетом (4) для дипольного момента

$$\mathbf{D}(t) = \langle \Psi^*(\mathbf{r}, t) | \mathbf{r} | \Psi(\mathbf{r}, t) \rangle$$

получаем

$$\mathbf{D}(t) = a^*(t) \int_0^t dt_0 B(\mathbf{p}_0, t_0) \times \\ \times \langle 0 | \mathbf{r} | f(\mathbf{r}, t, t_0) \exp\left[-iS(\mathbf{p}_0, t, t_0) + i\mathbf{p}_0 \cdot \mathbf{r}\right] \rangle + \text{c.c.} \quad (6)$$

Выражение (6) описывает квазиклассическую эволюцию фотоэлектрона в процессе надпороговой туннельной ионизации и допускает наглядную физическую интерпретацию. На первой стадии ГГВП происходит формирование электронного волнового пакета в континууме. Амплитуда пакета $B(\mathbf{p}_0, t_0) \propto a(t_0)$ определяется вероятностью W_i туннельной ионизации в момент t₀ и учитывает насыщение процесса ионизации (истощение атомных состояний). В работе [6] аналитические результаты для дипольного момента (6) были получены в приближении относительно низкой интенсивности излучения накачки, при которой вероятность ионизации мала. Это приводит к формуле Келдыша для зависимости вероятности туннельной ионизации от мгновенного значения поля накачки F. В сильных лазерных полях, однако, зависимость $W_i(F)$ может существенно меняться. Модификация вероятности ионизации W_i в сильных полях детально обсуждается в работе [11] (см. также [12]). Независимый расчет вероятности ионизации полезен для использования в выражении (6).

На следующей стадии туннельной надпороговой ионизации электронный волновой пакет эволюционирует в континууме под действием излучения накачки. Функция $f(\mathbf{r}, t, t_0)$ описывает форму пакета (его расплывание) и эволюцию его центра. В сильных (но нерелятивистских) полях экскурсия электрона в континууме L гораздо больше, чем размер его волнового пакета σ и в то же время $L \ll \lambda$. В этом случае возможен квазиклассический подход и эволюцию центра волнового пакета в континууме можно описывать с помощью классического уравнения движения, т.е. рассматривать классические траектории центра волнового пакета. Для кулоновского потенциала (когда электрон находится вблизи родительского иона) такое приближение не очевидно. Им, однако, можно воспользоваться, так как набор фотоэлектроном основной части кинетической энергии (что существенно для процесса ГГВП) происходит вдали от родительского иона. Кроме того, поскольку основной вклад в ГГВП дает только первый возврат фотоэлектрона к родительскому иону, можно считать, что форма его волнового пакета при эволюции в континууме существенно не меняется. В то же время эффект расплывания волнового пакета является существенным: он может быть описан как расплывание пакета для свободной частицы, но со скоростью V_{sp} , определяемой процессом туннельной ионизации [13]:

$$\sigma(t) = \sqrt{\sigma^2(t_0) + V_{sp}^2(t - t_0)^2},$$

$$V_{sp} \approx F_i^{1/2} (2U_i)^{-1/4},$$
(7)

где $F_i = F(t_0)$ — поле накачки в момент ионизации. В дальнейшем для скорости расплывания пакета будем использовать численное значение $V_{sp} \approx 1$ нм/фс (при интенсивностях излучения накачки $I \approx 10^{14} - 10^{17}$ Вт/см²), которое хорошо согласуется с экспериментальными данными [4].

Эволюционируя в континууме, электрон приобретает от поля энергию $\varepsilon = \partial S / \partial t$. При возврате к родительскому иону он может рекомбинировать и излучить фотон с энергией $\omega_k = U_i + \varepsilon$. При этом матричный элемент $\langle 0 | {\bf r} | \dots \rangle$ в (6) определяет как вероятность рекомбинации, так и длительность рекомбинационного излучения одиночным атомом, так как этот матричный элемент отличен от нуля только в те моменты времени, когда электрон находится вблизи родительского иона (когда заметно перекрываются волновой пакет электрона и волновая функция основного состояния атома). Наконец, отметим, что интеграл по t_0 в выражении (6) описывает когерентный вклад в процесс ГГВП от электронов, освободившихся из атома в различные моменты *t*₀, т. е. продольную структуру электронного пакета.

Такая физически наглядная интерпретация ГГВП, которая возможна вследствие квазиклассичности процесса, позволяет распространить область применимости модели ГГВП [6] на случай достаточно больших интенсивностей излучения накачки [11], а также учесть трехмерный характер эволюции электрона в континууме и рассматривать поля накачки произвольной конфигурации [14]. В следующих разделах рассмотрены случаи использования в качестве накачки комбинированного излучения с компонентами, обладающими разными частотами и разными поляризациями.

3. ГЕНЕРАЦИЯ РЕКОМБИНАЦИОННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ В ДВУХЧАСТОТНОМ ПОЛЕ РАЗЛИЧНОЙ ПОЛЯРИЗАЦИИ: ПОЛУЧЕНИЕ АТТОСЕКУНДНЫХ ИМПУЛЬСОВ

Известно, что в случае обычной циркулярно поляризованной накачки генерации гармоник не происходит [4]. Это является следствием того, что после ионизации атома фотоэлектрон уходит далеко от родительского иона и никогда к нему не возвращается, т. е. для любых моментов ионизации отсутствуют столкновительные траектории электрона. В случае линейно поляризованного излучения накачки, наоборот, для любого момента ионизации имеется столкновительная траектория. Покажем, что в случае специальной двухчастотной накачки (включающей и циркулярно поляризованные поля) процесс ГГВП возможен, причем появляется возможность управления параметрами генерации, в частности, длительностью рекомбинационного излучения.

Рассмотрим двухчастотную накачку, являющуюся комбинацией высокочастотного (ВЧ) поля, поляризованного эллиптически, и линейно поляризованного низкочастотного (НЧ) поля:

$$\mathbf{F} = F_0 \left(\hat{\mathbf{x}} \sqrt{1 - \alpha^2} \cos(\omega t) + \hat{\mathbf{y}} \alpha \sin(\omega t) \right) + \mathbf{F}_{dc}, \quad (8)$$

$$\mathbf{F}_{dc} = -\beta F_0 \left(\hat{\mathbf{x}} \sqrt{1 - \gamma^2} + \hat{\mathbf{y}} \gamma \right), \qquad (9)$$

где $F_0, \ \omega$ и α — амплитуда, частота и эллиптичность ВЧ-компоненты накачки, $\hat{\mathbf{x}}, \hat{\mathbf{y}}$ — орты, β и γ — параметры, определяющие относительную амплитуду и направление линейно поляризованной НЧ-компоненты накачки **F**_{dc}. В качестве НЧ-компоненты можно использовать синхронизованное по времени с ВЧ-полем излучение СО₂-лазера: в течение оптического цикла ВЧ-излучения на длине волны $\lambda \sim 1$ мкм поле СО2-лазера можно рассматривать как постоянное. Для простоты ограничимся случаем коллинеарного распространения НЧ- и ВЧ-полей. Как было отмечено выше, эволюцию фотоэлектрона в континууме (для туннельного режима ионизации) можно описывать с помощью классических траекторий центра волнового пакета электрона. Решение классических уравнений движения в поле (8) с нулевыми начальными условиями для координат и скорости электрона [7] приводит к следующим траекториям:

$$x(t) = -\sqrt{1 - \alpha^2} \times \left[\cos t - \cos t_0 + (t - t_0)\sin t_0 + \beta_1 (t - t_0)^2\right], \quad (10)$$



Рис.1. Временная зависимость координат фотоэлектрона в континууме (см. уравнения (10), (11)) для Y-случая при $\alpha = 1/\sqrt{2}, \ \beta \approx -0.276,$ $\gamma \approx -0.96, \ t_0 = \pi/10$

$$y(t) = = -\alpha \left[\sin t - \sin t_0 - (t - t_0) \cos t_0 + \beta_2 (t - t_0)^2 \right], \quad (11)$$

где

$$\beta_1 = \frac{\beta}{2} \sqrt{\frac{1-\gamma^2}{1-\alpha^2}}, \quad \beta_2 = \frac{\beta}{2} \frac{\gamma}{\alpha}$$

В формулах (10), (11) и до конца настоящего раздела используются безразмерные переменные: время нормировано на $1/\omega$, координаты — на $(eF_0/m\omega^2)$, скорость — на $(eF_0/m\omega)$, а энергия — на пондеромоторную энергию ВЧ-компоненты накачки: $U_p = e^2 F_0^2/4m\omega^2$, где m и e — масса и заряд электрона. Столкновительным траекториям соответствует случай, когда в момент времени t_k обе координаты x и y стремятся к нулю одновременно.

Из уравнений (10), (11) следует, что в отличие от одночастотной накачки столкновительные траектории электрона (см. рис. 1) существуют только для определенных наборов параметров: α , β , γ и момента ионизации t₀. Желательно, чтобы при выборе этих параметров энергия электрона в момент рекомбинации, ε_k , была побольше (для генерации гармоник с бо́льшими номерами), время, проводимое электроном в континууме, — поменьше (что уменьшает расплывание электронного пакета и увеличивает эффективность рекомбинации), отношение амплитуд НЧ- и ВЧ-полей — поменьше (ввиду разной мощности лазеров с длинами волн 1 мкм и 10 мкм), и чтобы в течение всего времени действия накачки была только одна столкновительная траектория (для генерации одиночного импульса рекомбинационного излучения). Анализ уравнений (10), (11) показывает, однако, что не существует однозначного решения этой проблемы: существует множество (в общем случае бесконечно большое) различных наборов параметров α , β , γ и t_0 , приводящих к столкновительным траекториям. Для генерации наиболее коротких импульсов рекомбинационного излучения наиболее важно минимизировать время, которое электрон проводит вблизи родительского иона, т.е. в области

$$\Delta r \le \sigma(t_k),\tag{12}$$

где дипольный момент (6) отличен от нуля. Это достигается как за счет увеличения кинетической энергии электрона в момент рекомбинации, ε_k , (эта энергия ограничена интенсивностью используемого излучения), так и за счет увеличения скорости «перехода» от столкновительных траекторий электрона к нестолкновительным. Последнее реализуется при достаточно большой производной $dr(t_k)/dt_0$, где $r = \sqrt{x^2 + y^2}$, так как при заданных параметрах α , β и γ значение момента ионизации t_0 определяет, будет ли траектория электрона столкновительной или нет. Возможность существенного уменьшения времени взаимодействия электрона с родительским ионом объясняется тем, что в двухкомпонентном поле (8) за счет определенного выбора параметров накачки электронный волновой пакет в момент возврата к ядру может быть сориентирован в пространстве так, что перекрытие с областью родительского иона (и следовательно, рекомбинация) будет иметь место только для малой «продольной» части пакета, которая соответствует малому интервалу моментов ионизации $\delta t_0 \ll 2\pi/\omega$. При этом время взаимодействия с ионом (и длительность рекомбинации) будет определяться поперечным размером электронного пакета (7).

Мы нашли два семейства решений уравнений (10), (11), обеспечивающих большую величину производной $dr(t_k)/dt_0$. Обозначим их буквами X и Y. Y-случай (который показан на рис. 1) соответствует моментам электрон-ионных столкновений (моментам рекомбинации) t_k , которые находятся из уравнения (10): $x(t_k) = 0$. Для таких моментов

$$\frac{dx(t_k)}{dt_0} \equiv 0,$$

$$\frac{dy(t_k)}{dt_0} \equiv \frac{\partial y}{\partial t_0} + \frac{\partial y}{\partial t_k} \frac{\partial t_k}{\partial t_0} = \infty.$$
(13)

Первое из этих уравнений является следствием уравнения $x(t_k) = 0$, которое определяет функцию $t_k(t_0)$,

$$\sin t_k - \sin t_0 = 2\beta_1 \tau, \tag{14}$$

где $\tau = t_k - t_0$.

X-случай соответствует противоположной ситуации:

$$\frac{dy(t_k)}{dt_0} \equiv 0, \quad \frac{dx(t_k)}{dt_0} = \infty.$$
(15)

При этом параметры α , β , γ и t_0 должны удовлетворять условию

$$\cos t_k - \cos t_0 = -2\beta_2\tau. \tag{16}$$

В обоих случаях условия (14), (16) не выделяют единственного набора параметров α , β , γ и t_0 , при которых существуют столкновительные траектории. Однако они существенно облегчают поиск таких наборов с помощью компьютера.

Таким образом, на основе уравнения (14) или (16) определяется подходящий набор параметров накачки α , β , γ и момент ионизации t_0 . Затем компьютерное моделирование электронных траекторий (10), (11) при найденных значениях α, β и γ для разных моментов ионизации вблизи значения t₀ позволяет определить максимальное отклонение момента ионизации δt_0 (и соответствующее максимальное отклонение момента рекомбинации δt_k), при котором условие рекомбинации (12) еще выполняется, т.е. когда отклонение электронной траектории от родительского иона меньше ширины электронного волнового пакета. При этом фотоэлектроны, появляющиеся в континууме вне интервала δt_0 , не сталкиваются с родительским ионом и не дают вклада в рекомбинационное излучение. С помощью описанной процедуры находится «элементарная» длительность рекомбинационного излучения (излучения одиночного атома) в процессе ГГВП: $\tau_q \approx \delta t_k$.

Ниже приводятся результаты численных экспериментов (для X- и Y-случаев) по определению длительности рекомбинационного излучения τ_g в процессе ГГВП с двухчастотной накачкой (8), (9). При этом в качестве ВЧ-компоненты накачки рассматривается лазерное излучение с длиной волны $\lambda = 1-0.8$ мкм и интенсивностью Генерация гармоник высокого порядка атомами . . .

 $I_{HF} = 10^{15} - 10^{17} \text{ Bt/cm}^2$. Излучение такой интенсивности уже использовалось в экспериментах и расчетах по надпороговой ионизации и ГГВП на ионах (использование ионов обеспечивает туннельный режим ионизации, что существенно для процесса ГГВП). Например, в работе [15] проводился расчет излучения высоких гармоник ионами He⁺ при накачке излучением с интенсивностью $I = 10^{17} \text{ Bt/cm}^2$. В работе [16] лазеры с интенсивностью излучения $I \sim 10^{16} - 10^{17} \text{ Bt/cm}^2$ использовались для туннельной ионизации благородных газов (Ar, Kr, Ne, Xe). Наблюдались ионы большой кратности (с зарядом до Z = 8). В работах [17,18] проводился расчет ГГВП такими ионами при накачке с интенсивностью $I \sim 10^{16} - 10^{19} \text{ Bt/cm}^2$.

Х-случай. Для накачки (8), (9) с интенсивностью $I_{HF} = 10^{17} \text{ Br/см}^2$ был найден следующий набор параметров, которые удовлетворяют условию (16): $\alpha = 1/\sqrt{2}$ (что соответствует ВЧ-излучению круговой поляризации), $\beta \approx 0.4, \gamma \approx 0.65$ и единственный (в течение оптического цикла ВЧ-поля) момент ионизации $t_0 \approx -\pi/5$ (t_0 отсчитывается от максимума ВЧ-поля). Численное исследование электронных траекторий (10), (11) с такими параметрами дает следующие значения для момента рекомбинации: $t_k \approx 1.2\pi$, для кинетической энергии электрона в момент рекомбинации: $\varepsilon_k \approx 3.6$. При этом соответствующие отклонения моментов t_0 и t_k (при которых условие рекомбинации (12) все еще выполняется): $\delta t_0 \approx \delta t_k \approx 0.02$. Такая величина δt_k соответствует размерной длительности рекомбинационного излучения одиночным атомом $\tau_q \approx 10$ ac. Отметим еще раз, что найденный набор параметров α , β , γ и t_0 , который приводит к генерации таких коротких импульсов, не является единственно возможным и оптимальным. Следовательно, реальные длительности τ_g (при выбранных параметрах ВЧ-накачки) могут быть еще меньше. Отметим также, что рассмотрение накачки с интенсивностью $I_{HF} \sim 10^{17} - 10^{18} \text{ Bt/см}^2$ требует, вообще говоря, учета влияния магнитного поля излучения на электронные траектории [11]. Этот учет, однако, не меняет существенно величину au_g , хотя точные значения параметров (и условие (16)) могут измениться.

У-случай. Для накачки с $I_{HF} = 10^{15} \text{ Вт/см}^2$ из уравнения (14) был найден следующий набор параметров: $\alpha = 1/\sqrt{2}, \beta \approx -0.22, \gamma \approx -1, t_0 = 0.$ Моделирование электронных траекторий (10), (11) с этими параметрами дает: $t_k \approx 2\pi, \varepsilon_k \approx 4, \delta t_0 \approx \delta t_k \approx 0.25$, что соответствует длительности рекомбинационного излучения $\tau_g \approx 100$ ас. При увеличении интенсивности I_{HF} длительность τ_q уменьшается. Например, для $I_{HF} = 5 \cdot 10^{17} \text{ Br/см}^2$ были найдены параметры $\alpha = 1/\sqrt{2}, \beta \approx -0.276,$ $\gamma \approx -0.96, t_0 = \pi/10,$ которые дают $t_k \approx 1.9\pi,$ $\varepsilon_k \approx 4.5, \, \delta t_0 \approx 0.01, \, \delta t_k \approx 0.002, \,$ что соответствует субаттосекундной длительности рекомбинационного излучения: $\tau_q \approx 0.9$ ac. Экспериментальная реализация таких импульсов означала бы прорыв в развитии новых методов фемто- и аттосекундной диагностики быстропротекающих процессов [1]. Отметим, что полученное значение τ_g более чем на три порядка меньше длительности Т оптического периода ВЧ-поля. Однако такой импульс содержит приблизительно 50 оптических циклов рекомбинационного излучения (длительность которых определяется параметром ε_k) и в этом смысле является почти монохроматическим.

Полученные выше оценки относятся к каждому оптическому циклу ВЧ-поля: в каждом цикле происходит всплеск рекомбинационного излучения длительностью τ_g . В случае длинного импульса ВЧ-излучения это приводит к генерации цуга аттосекундных импульсов с частотой повторения $\sim \omega$, что может быть использовано, например, для петагерцовой спектроскопии с аттосекундным временным разрешением. Однако выделение одиночного импульса из такого цуга является сложной задачей.

В случае же предельно короткого импульса ВЧ-излучения (когда ионизация атома происходит эффективно только в течение одного оптического цикла) использование двухчастотной накачки (8), (9) делает возможной генерацию одиночного аттосекундного импульса рекомбинационного излучения автоматически (без дополнительных экспериментальных усилий). Рассмотрим, например, ультракороткий ВЧ-импульс накачки с пиковой интенсивностью $I_{HF} = 10^{18}$ Вт/см² и огибающей поля

$$F_0(t) \sim \exp\left[-\frac{(t-7)^2}{4}\right],$$
 (17)

которая соответствует импульсу, показанному на рис. 2. Для этого случая мы нашли по прежней методике набор параметров накачки: $\alpha = 0.708$, $\beta \approx -0.275$, $\gamma \approx -0.96$, $t_0 = 7.3575$, которому соответствует только одна столкновительная траектория ($t_k \approx 12$) в течение всего импульса (17). При этом варьирование параметра t_0 дало $\delta t_0 \approx 0.02$ и $\delta t_k \approx 0.06$, что соответствует длительности одиночного импульса рекомбинационного излучения $\tau_g \approx 30$ ас.

Таким образом, предложенный подход дает принципиальную возможность генерации когерентных импульсов электромагнитного излучения длитель-



Рис.2. Пример ультракороткого ВЧ-импульса накачки, обеспечивающего генерацию одиночного аттосекундного импульса (см. уравнение (17))

ностью 1-10 ас и даже преодоления субаттосекундного барьера. По сути, этот подход является разновидностью метода фазового контроля туннельной ионизации, поскольку обеспечивает селекцию фотоэлектронов (в пределах интервала ионизации δt_0), которые дают вклад в генерацию рекомбинационного излучения. Обсудим вкратце эффективность такой генерации. Как и при обычной накачке, эта эффективность определяется тремя факторами: вероятностью ионизации атома (иона), скоростью расплывания волнового пакета электрона в континууме и вероятностью электрон-ионной рекомбинации. Использование комбинированной накачки (в том числе и с циркулярно поляризованным излучением) не меняет существенно вероятности туннельной ионизации, так как последняя определяется мгновенным значением поля. Расплывание волнового пакета и вероятность рекомбинации в расчете на один фотоэлектрон также приблизительно такие же, как и при обычной ГГВП. Однако накачка (8), (9) осуществляет селекцию только малой части всех фотоэлектронов, рекомбинирующих с родительским ионом $(\delta t_0/T \sim 0.1-0.01)$. Это приводит как к генерации коротких импульсов рекомбинационного излучения, так и к селекции узкой области $\delta \omega_a$ в широком плато спектра ГГВП. Заметим, что противоречия в генерации импульса рекомбинационного излучения с малой длительностью τ_g и относительно узким спектром $\delta\omega_q$ нет, так как $\delta\omega_q\tau_q \gg 1$ вследствие большой частоты рекомбинационного излучения. Следовательно, при использовании накачки (8), (9) суммарная энергия ГГВП убывает (пропорционально $\delta t_0/T$ или $\delta \omega_g/\Omega$). Однако интенсивность гармоник (рекомбинационного излучения) в пределах спектрального диапазона $\delta \omega_q$ остается приблизительно такой же, как и при обычной накачке.

4. АКТИВНЫЙ ФАЗОВЫЙ КОНТРОЛЬ ТУННЕЛЬНОЙ ИОНИЗАЦИИ И ГЕНЕРАЦИЯ РЕКОМБИНАЦИОННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ С СЕЛЕКЦИЕЙ УЗКОГО СПЕКТРАЛЬНОГО ДИАПАЗОНА

В предыдущем разделе рассмотрен пассивный фазовый контроль туннельной ионизации, когда ионизация атома происходит во все моменты в течение оптического цикла T, а селекция фотоэлектронов осуществляется на стадии их рекомбинации с родительским ионом. Параметры двухчастотной накачки выбираются так, чтобы рекомбинировали только те электроны, которые «уходят» от атома в течение достаточно малого интервала времени $\delta t_0/T \ll 1$. При этом малая длительность рекомбинационного излучения достигается за счет сильной чувствительности условия рекомбинации (12) к изменению момента ионизации t₀. За счет двухчастотного излучения можно реализовать также и активный фазовый контроль, т. е. селекцию фотоэлектронов уже на стадии ионизации атома (когда ионизация происходит только в течение малой доли оптического периода Т). При этом степень ионизации среды в целом будет гораздо меньше, чем в обычном случае. Известно, что значительная концентрация свободных электронов в среде приводит к дефокусировке излучения, и это накладывает ограничение на рост эффективности ГГВП [2]. Следовательно, селекция моментов ионизации уменьшает дефокусировку излучения накачки, позволяет существенно увеличить длину фазового синхронизма и, соответственно, повысить эффективность процесса ГГВП. Оставаясь в рамках рассмотрения одноатомного отклика, покажем, что двухчастотная накачка специального типа позволяет также существенно уменьшить ширину рекомбинационного спектра и повысить тем самым эффективность его использования.

Итак, пусть накачка осуществляется следующим двухкомпонентным полем: сильным НЧ-полем \mathbf{F}_L (которое само не приводит к туннельной ионизации атома) и полем ультракороткого импульса высокой частоты $\omega_H > U_i$, способного, например, к однофотонной ионизации атома и длительность которого существенно меньше оптического периода T_L НЧ-поля,

$$F = F_L \cos(\omega_L T) + F_H \cos(\omega_H t + \varphi), \qquad (18)$$

где $F_L \gg F_H$ — амплитуды, а $\omega_L \ll \omega_H$ — частоты, соответственно, НЧ- и ВЧ-поля. Считаем, что оба поля поляризованы линейно и параллельно друг другу (вдоль оси x) и синхронизованы по времени так, что ВЧ-импульс соответствует определенной фазе φ оптического цикла НЧ-поля. Если амплитуда F_L недостаточна для туннелирования электрона из атома, то ионизация атома определяется коротким импульсом ВЧ-излучения. Надпороговая же стадия ионизации определяется НЧ-полем. Заметим, что такая схема ГГВП полностью эквивалентна схеме, использованной в работе [5] для измерения длительности импульсов субфемтосекундного диапазона.

При дальнейших вычислениях и оценках будем ориентироваться на следующую экспериментальную ситуацию. В качестве НЧ-компоненты рассматриваем излучение СО₂-лазера с интенсивностью $I_L = 6 \cdot 10^{13} \text{ Bt/cm}^2$ (туннельной ионизацией, например, атомов Не таким излучением можно пренебречь, однако его пондеромоторная энергия значительна: $U_p \approx 500$ эВ). А в качестве ВЧ-компоненты имеем в виду излучение на частоте $\omega_H \sim 25$ эВ длительностью $\tau_H \sim 1-3$ фс и интенсивностью $I_H \sim 10^{10} \text{ Bt/cm}^2$. Такие параметры достигаются в современных экспериментах по генерации высоких гармоник [2].

Если частота ВЧ-поля $\omega_H \gtrsim U_i$, то в момент выхода в континуум скорость фотоэлектрона $V_0 \approx 0$, точнее 0 < V₀ < V_{0m}. Максимальное значение начальной скорости фотоэлектрона в отсутствие фазовой модуляции ВЧ-импульса, $V_{0m} = (2\hbar/m\tau_H)^{1/2}$, определяется его длительностью т_H. При этом вероятность ионизации пропорциональна интенсивности І_Н и пороговому сечению однофотонной ионизации. Дальнейшая эволюция волнового пакета фотоэлектрона происходит под действием в основном НЧ-поля (ввиду условия $F_L \gg F_H$) и, как показано выше, может быть описана классической траекторией x(t) центра пакета. В пренебрежении кулоновским притяжением к родительскому иону (что справедливо при $U_p \gg U_i$) уравнение для этой траектории имеет простой вид:

$$\frac{d^2x}{dt^2} = \frac{e}{m} F_L \cos(\omega_L t + \varphi).$$
(19)

Решение уравнения (19) с начальными условиями $x(t = 0) = 0, V(t = 0) = V_0$ позволяет рассчитать кинетическую энергию электрона ε_k в момент его возврата к родительскому иону (т. е. в точку $x \approx 0$, где и происходит рекомбинация). При этом расплывание волнового пакета (7) влияет только на эффективность рекомбинации электрона и не влияет существенно на его кинетическую энергию ε_k . Энергия ε_k определяется начальной скоростью электрона V_0 и фазой ионизации φ (рис. 3). Последняя фиксирует-



Рис. 3. Зависимость частоты рекомбинационного излучения от фазы ионизации (отсчитываемой от максимума НЧ-поля) для разных начальных скоростей фотоэлектрона. Показано стробирование рекомбинационного спектра ВЧ-импульсом длительностью τ_H

ся ВЧ-полем (фазы $\varphi_{1,2}$ на рис. З соответствуют началу и концу ВЧ-импульса), что позволяет контролировать спектр рекомбинационного излучения. Заметим, что возврат фотоэлектрона к родительскому иону и его рекомбинация происходят лишь при направлении скорости V_0 , противоположном направлению НЧ-поля. Поскольку при однофотонной ионизации рождается симметричный двухлепестковый волновой пакет ($\pm V_0$), половина всех фотоэлектронов не дает вклада в генерацию рекомбинационного излучения.

Результаты расчета энергии электрона ε_k (фактически рекомбинационного спектра $\omega_k = \varepsilon_k + U_i$ по уравнению (19) приведены на рис. З. Видно, что ВЧ-импульс стробирует фазы ионизации $(\varphi_1 < \varphi < \varphi_2)$ и приводит к генерации только в узком спектральном диапазоне $\Delta\Omega$. Вклад в $\Delta\Omega$ дают только те спектральные компоненты, которые находятся между кривыми $\varepsilon_k(\varphi)$ для $V_0 = 0$ и V₀ = V_{0m} и соответствуют фазам ионизации $\varphi_1 < \varphi < \varphi_2$. Как показано на рис. 3, ВЧ-импульс длительностью $au_H = (\varphi_2 - \varphi_1) T_L / 2\pi \approx 1.2 \ {\rm dc}$ вблизи относительной фазы $\varphi \approx \pi/10$ приводит к генерации рекомбинационного излучения в узкой области частот $\Delta \Omega \approx 0.12 \Omega_1$, где $\Omega_1 = \Omega - U_i$. При этом перестройка центральной частоты рекомбинационного спектра возможна за счет изменения амплитуды НЧ-поля: $\Omega_1 \propto I_L$. Использованное на рис. 3 значение V_{0m} соответствует ВЧ-импульсу с определенной фазовой модуляцией. Для ВЧ-импульса такой же длительности ($\tau_H = 1.2 \text{ фc}$), но без фазовой модуляции ширина спектра $\Delta\Omega$ будет приблизительно на 30 % меньше.

Уменьшение длительности ВЧ-импульса приводит к увеличению начальной скорости электрона V_{0m} , что (при достаточно малых τ_H) может привести не к уменьшению, а к увеличению ширины рекомбинационного спектра. Следовательно, существует оптимальное значение длительности ВЧ-импульса, приводящее к минимальной ширине рекомбинационного спектра. Предполагая зависимость $\varepsilon_k(\varphi)$ параболической вблизи вершины кривой (рис. 3) и отсутствие фазовой модуляции у ВЧ-импульса, из уравнения (19) находим

$$\frac{\Delta\Omega}{\Omega_1} = A \left(\tau_H + \frac{B}{\tau_H^{1/2}}\right)^2.$$
(20)

Выражая T_L и τ_H в фс, а Ω_1 в эВ, для параметров A и B получаем: $A \approx 55.8/T_L^2$, $B \approx 0.17T_L/\Omega_1^{1/2}$. Из уравнения (20) следует, что минимальная ширина рекомбинационного спектра $\Delta\Omega_{min}$ реализуется при длительности ВЧ-импульса $\tau_0 = (B/2)^{2/3} \propto T_L^{2/3} \Omega_1^{-1/3}$ и равна

$$\frac{\Delta\Omega_{min}}{\Omega_1} = 9A\tau_0^2. \tag{21}$$

Для $T_L \approx 35 \, \mathrm{фc} \, (\mathrm{H}\mathrm{Y}$ -излучение CO₂-лазера) численные оценки дают: $\tau_0 \approx 0.2 \, \mathrm{фc}$ и $\Delta\Omega_{min}/\Omega_1 \approx 0.016$. Абсолютная ширина рекомбинационного спектра растет с увеличением интенсивности HY-излучения: $\Delta\Omega_{min} \propto \Omega_1^{1/3}, \, \Omega_1 \propto I_L$. Однако относительная ширина спектра с ростом интенсивности I_L уменьшается: $\Delta\Omega_{min}/\Omega_1 \propto \Omega_1^{-2/3}$ и может быть заметно меньше 1 %.

Таким образом, для генерации предельно узкого рекомбинационного спектра необходимо использовать ВЧ-импульсы оптимальной длительности без фазовой модуляции и синхронизовать их с НЧ-полем вблизи оптимальной фазы $\varphi \lesssim \pi/10~({\rm чем}$ больше максимальное значение начальной скорости электрона V_{0m}, тем ближе к максимуму НЧ-поля должен находится ВЧ-импульс). Необходимо отметить также, что в случае одиночного ВЧ-импульса происходит однократная генерация рекомбинационного излучения. Это приводит к сплошному спектру генерации и уменьшению ее эффективности. Для повышения эффективности генерации желательно использовать цуг ВЧ-импульсов. Для этого, однако, потребуется более сложная (с экспериментальной точки зрения) синхронизация двух лазеров.

В заключение отметим, что рассмотренный механизм ионизации атома двухчастотным полем (18) объясняет также поглощение рекомбинационного излучения (излучения гармоник) в обычной (однокомпонентной) схеме ГГВП. Атомы, находящиеся под воздействием излучения накачки, испытывают также воздействие и слабого рекомбинационного излучения. При этом фотоны рекомбинационного излучения могут участвовать в процессе туннельной ионизации атома НЧ-полем накачки, меняя эффективный потенциал ионизации атома: $U_{i\,eff} = U_i - \omega_H$ [19]. Ввиду экспоненциальной зависимости вероятности туннельной ионизации от потенциала ионизации это приводит к резкому (на несколько порядков) возрастанию скорости ионизации и, соответственно, к эффективному поглощению рекомбинационного излучения. Этот эффект ограничивает предельную эффективность ГГВП в том случае, когда длина поглощения рекомбинационного излучения меньше длины активной среды или длины когерентности. Однако при использовании дополнительного излучения (ВЧ-«подсветки») этот же эффект можно инвертировать и применять для увеличения эффективности генерации высоких гармоник. Например, если наряду с основной накачкой использовать относительно слабое излучение на частоте одной из гармоник, скорость туннельной ионизации атомов существенно возрастет. Это приведет, в свою очередь, к росту интенсивности всех компонент рекомбинационного спектра. Реального усиления излучения на частоте гармоники, использованной для дополнительной накачки («подсветки») атомов, не будет (вследствие достаточно низкой эффективности ГГВП). Однако интенсивность остальных компонент спектра высоких гармоник заметно возрастет.

5. ВЫВОДЫ

Таким образом, двухчастотные поля позволяют реализовать фазовый контроль процесса надпороговой туннельной ионизации. Следствием такого контроля является уникальная возможность управления параметрами рекомбинационного излучения. В настоящей работе на примере излучения одиночного атома показана возможность активного управления спектром рекомбинационного излучения (его центральной частотой и шириной, которую можно уменьшить на два порядка), а также принципиальная возможность генерации когерентных импульсов длительностью $\tau_g = 1-10$ ас. Экспериментальная реализация таких импульсов означала бы принципиально новый шаг в развитии методов диагностики быстропротекающих процессов. Специально отметим, что полученные условия (14), (16), при которых реализуется такая длительность, допускают дальнейшую селекцию параметров двухчастотной накачки. Дополнительные усилия (экспериментальные или с помощью численного моделирования) позволят получать импульсы когерентного излучения длительностью действительно меньше одной аттосекунды.

Вследствие эффектов распространения, а также эффектов пространственной неоднородности лазерного излучения, длительность рекомбинационного излучения может измениться (увеличиться или уменьшиться), что требует специального исследования [20]. Однако при любом таком исследовании первичным является расчет одноатомного отклика, реализованный в настоящей работе.

ЛИТЕРАТУРА

- M. Hentschel, R. Kienberger, Ch. Spielmann et al., Nature 414, 509 (2001); M. Drescher, M. Hentschel, R. Kienberger et al., Science 291, 1923 (2001); H. Niikura, F. Legare, R. Hasbani et al., Nature 417, 917 (2002); A. Baltuska, Th. Udem, M. Uiberacker et al., Nature 421, 611 (2003); P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger et al., Science 292, 1689 (2001); R. Kienberger, M. Hentschel, M. Uiberacker et al., Science 297, 1144 (2002).
- T. Brabec and F. Krausz, Rev. Mod. Phys. 72, 545 (2000).
- Ph. Antoine, A. L'Huillier, and M. Lewenstein, Phys. Rev. Lett. 77, 1234 (1996).
- P. B. Corkum, N. H. Burnett, and M. Y. Ivanov, Opt. Lett. 19, 1870 (1994).
- E. Constant, V. D. Taranukhin, A. Stolow, and P. B. Corkum, Phys. Rev. A 56, 3870 (1997).
- M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Yu. Ivanov et al., Phys. Rev. A 49, 2117 (1994).
- 7. Р. В. Кулягин, В. Д. Таранухин, КЭ 23, 889 (1996).
- 8. P. B. Corkum, Phys. Rev. Lett. 71, 1994 (1993).
- E. Mevel, P. Breger, R. Trainham et al., Phys. Rev. Lett. 70, 406 (1993).
- 10. J. B. Watson, A. Sanpera, and K. Burnett, Phys. Rev. A 51, 1458 (1995).
- 11. V. D. Taranukhin, Laser Phys. 10, 330 (2000).
- A. Scrinzi, M. Geissler, and T. Brabec, Phys. Rev. Lett. 83, 706 (1998).

- А. М. Переломов, В. С. Попов, М. В. Терентьев, ЖЭТФ 51, 309 (1966).
- 14. V. D. Taranukhin and N. Yu. Shubin, J. Opt. Soc. Amer. B 17, 1509 (2000).
- M. W. Walser, C. H. Keitel, A. Scrinzi, and T. Brabec, Phys. Rev. Lett. 85, 5082 (2000).
- S. Augst, D. Strickland, D. D. Meyerhofer et al., Phys. Rev. Lett. 63, 2212 (1989).
- 17. D. B. Milosevic, S. Hu, and W. Becker, Phys. Rev. A 63, 011403R (2000).
- 18. V. D. Taranukhin and N. Yu. Shubin, J. Opt. Soc. Amer. B 19, 1132 (2002).
- **19**. Н. Б. Делоне, Н. Л. Манаков, А. Г. Файнштейн, ЖЭТФ **86**, 906 (1984).
- 20. N. Milosevic, A. Scrinzi, and T. Brabec, Phys. Rev. Lett. 88, 093905 (2002).