

МОСКОВСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ
имени М.В. Ломоносова
ФИЗИЧЕСКИЙ ФАКУЛЬТЕТ

На правах рукописи

ЛЬВОВ Кирилл Вячеславович

**Динамика носителей заряда и генерация когерентного излучения
фемтосекундными лазерными полями
в газовых и конденсированных средах**

Специальность 1.3.19. Лазерная физика

Диссертация на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель:
д.ф.-м.н., доцент
С.Ю. Стремоухов

Москва – 2024

ОГЛАВЛЕНИЕ

Введение.....	4
Глава 1. Современное состояние исследований нелинейно-оптических взаимодействий фемтосекундного лазерного излучения с газовыми и конденсированными средами.....	11
1.1. Генерация суперконтинуума.....	11
1.2. Генерация гармоник, нелинейная восприимчивость.....	13
1.3. Генерация гармоник высокого порядка.....	15
1.4. Особенности генерации когерентного излучения от источников инфракрасного диапазона.....	16
1.5. Фазовый синхронизм.....	17
1.6. Методы управления характеристиками когерентного излучения.....	18
1.7. Теоретические подходы по исследованию методов генерации когерентного излучения.....	19
1.8. Применение когерентного излучения.....	21
1.9. Возбуждение среды лазерным излучением, генерация свободных носителей заряда и их динамика.....	22
1.10. Модификация структуры вещества лазерным излучением.....	24
Глава 2. Скалярная модель распространения лазерного излучения в газовых и конденсированных средах.....	26
2.1. Уравнение однонаправленного распространения импульса (UPPE).....	26
2.2. Нелинейная поляризация среды.....	29
2.3. Многофотонная и туннельная ионизация.....	32
2.4. Плазменная дефокусировка и концентрация свободных носителей заряда.....	35
2.5. Метод численного решения.....	37
2.6. Основные выводы по главе 2.....	40
Глава 3. Возбуждение свободных носителей заряда в конденсированных средах фемтосекундным лазерным полем.....	42
3.1. Существующие методы описания динамики свободных носителей заряда в газовых и конденсированных средах.....	42
3.2. Уточненная модель динамики свободных носителей заряда EMRE.....	47
3.3. Применение модели EMRE для расчета объемной плотности энергии, переданной конденсированной среде.....	53
3.4. Повышение точности модели EMRE путем учета дисперсионного слагаемого уравнения Фоккера-Планка.....	65
3.5. Основные выводы по главе 3.....	76
Глава 4. Генерация когерентного излучения при распространении лазерного излучения в газовых и конденсированных средах.....	78
4.1. Условия внешней фокусировки лазерного излучения как способ управления спектром когерентного излучения конденсированной среды.....	78

4.2. Генерация гармоник низкого порядка в газовой среде при изменении условий фазового синхронизма вследствие распространения лазерного излучения	87
4.3. Непертурбативный подход к описанию возбуждения атомов среды лазерным полем .	96
4.4. Вычисление нелинейной восприимчивости газовой среды.....	100
4.5. Основные выводы по главе 4	109
Заключение	111
Список литературы	113

Введение

Диссертационная работа посвящена исследованию нелинейно-оптических взаимодействий фемтосекундного лазерного излучения с газовыми и конденсированными средами. Как аналитически, так и численно изучаются процессы возбуждения и динамики связанных и свободных носителей заряда, а также генерация гармоник и суперконтинуума под действием интенсивного (10^{12} – 10^{14} Вт/см²) фемтосекундного лазерного излучения. Исследуется влияние эффектов распространения лазерного излучения на особенности генерации излучения гармоник и суперконтинуума.

В последние несколько десятилетий накоплен большой объем знаний о механизмах возбуждения связанных и свободных носителей заряда и их последующей динамики в лазерном поле, о механизмах генерации когерентного излучения в газовых и конденсированных средах [1, 2].

Проанализированы механизмы сверхуширения спектра когерентного излучения и генерации суперконтинуума, в том числе в режиме аномальной дисперсии групповых скоростей, предложены способы управления шириной спектра и увеличения яркости отдельных областей спектра [3, 4]. Обнаружены и изучены различные режимы фазового синхронизма при генерации гармоник [5]. Предложены способы компенсации падения эффективности генерации гармоник высокого порядка при увеличении длины волны лазерного излучения, в том числе путем применения двухцветного лазерного излучения и использования эффекта квазифазового согласования [6, 7].

Появление новых мультиспектральных перестраиваемых по длине волны лазерных систем, работающих в ближнем и среднем инфракрасном диапазонах [8], способствует повышенному интересу к изучению особенностей динамики свободных носителей заряда и генерации когерентного излучения в газовых и конденсированных средах под действием лазерного излучения этого диапазона длин волн. Экспериментально достигнуты беспрецедентные результаты по микроструктурированию объема полупроводников, в частности кремния. Очерчены области параметров лазерного излучения, позволяющие достичь этого результата [9].

Вместе с тем, развиваются и теоретические подходы к изучению механизмов нелинейно-оптических взаимодействий. Предложены эффективные теоретические модели динамики свободных носителей заряда, позволяющие воспроизводить экспериментальные результаты [10, 11]. Подробно изучен целый ряд моделей, описывающих распространение лазерного излучения в среде с различной степенью точности, в том числе в параксиальном приближении, с учетом векторных эффектов и продольной составляющей электрического поля [12].

Развиваются аналитические методы исследования распространения лазерного излучения в среде [13, 14, 15]. Получают дальнейшее развитие теоретические подходы по описанию отклика одиночных атомов и кристаллической среды на внешнее электрическое поле [16].

Таким образом, **актуальность выбранной темы** обусловлена большим интересом к изучению механизмов нелинейно-оптического взаимодействия лазерного излучения с веществом. Научные исследования в этой области обусловлены, с одной стороны, разработкой лазерных систем с новыми характеристиками (средний инфракрасный диапазон, возможность перестройки по длине волны, однопериодная длительность импульсов), и, с другой стороны, увеличением вычислительных мощностей расчетных машин, что открывает возможность моделирования с беспрецедентной степенью точности нелинейно-оптических взаимодействий лазерного излучения с веществом.

Значительный объем проведенных теоретических и экспериментальных исследований, посвященных проблеме взаимодействия лазерного излучения с веществом, характеризует **высокую степень разработанности этой тематики**. Вместе с тем, остается ряд не до конца решенных вопросов, связанных с объединением вместе различных подходов к описанию нелинейно-оптических взаимодействий (микроскопическая теория отклика атома на лазерное поле и макроскопическая модель распространения лазерного излучения через среду), модернизацией разработанных и предложением новых моделей нелинейно-оптических взаимодействий вещества с лазерным излучением ближнего и среднего инфракрасного диапазонов длин волн, а также учета трансформации свойств лазерного поля при его распространении в среде в задаче генерации когерентного излучения.

Цель диссертационной работы состоит в исследовании механизмов возбуждения и динамики связанных и свободных носителей заряда, а также генерации гармоник и суперконтинуума при нелинейном режиме распространения интенсивного (10^{12} – 10^{14} Вт/см²) фемтосекундного лазерного излучения в газовых и конденсированных средах.

В соответствии с поставленной целью **сформулированы и решены следующие задачи**:

1. Изучение динамики свободных носителей заряда в диэлектриках и полупроводниках под действием лазерного излучения, в том числе среднего инфракрасного диапазона, и вычисление объемной плотности энергии, доставленной в среду при распространении в ней лазерного излучения.

2. Выяснение роли дисперсионного вклада кинетической модели динамики свободных носителей заряда в воздействии лазерного излучения на газовые и конденсированные среды.

3. Изучение особенностей управления спектром когерентного излучения путем изменения условий внешней фокусировки лазерного излучения и давления газовой среды.

4. Изучение фазового синхронизма при генерации гармоник низкого порядка в газовой среде с учетом изменения расстройки волновых векторов вследствие модуляции интенсивности лазерного излучения при его распространении в среде.

3. Аналитический расчет нелинейной восприимчивости газовой среды с помощью непертурбативной теории отклика одиночного атома на лазерное поле для учета динамики связанных носителей заряда в классических моделях распространения лазерного излучения.

Объектом исследования диссертационной работы является высокоинтенсивное фемтосекундное лазерное излучение и среда (отдельные атомы, газовая среда с различным давлением, прозрачный диэлектрик, полупроводник), через которое распространяется это излучение.

Предметом исследования являются особенности нелинейно-оптических взаимодействий лазерного излучения с газовыми и конденсированными средами при распространении в них высокоинтенсивного фемтосекундного лазерного излучения.

Научная новизна проведенных исследований определяется результатами, полученными в диссертации впервые, и состоит в следующем:

1. Предложена усовершенствованная модель динамики свободных носителей заряда (Extended Multiple Rate Equation, EMRE) в диэлектриках и полупроводниках под действием лазерного излучения. Продемонстрирована необходимость применения модели в среднем инфракрасном диапазоне длин волн. На основе этой модели теоретически обоснована возможность микромодификации объема кремния одиночными лазерными импульсами.

2. Показано, что в режиме лавинной ионизации формируется распределение свободных носителей заряда по энергии, форма которого не зависит от флюенса лазерного излучения и ширины запрещенной зоны среды. При этом средняя кинетическая энергия свободных носителей после действия импульса составляет 0,56 от ширины запрещенной зоны. Учет дисперсионного слагаемого в усовершенствованной модели динамики свободных носителей заряда (EMRE) позволяет, с одной стороны, уточнить значение их средней кинетической энергии, приблизившись к точности кинетической модели Фоккера-Планка, и, с другой стороны, существенно сократить (\sim в 20 раз) время проведения расчетов (по сравнению с кинетической моделью Фоккера-Планка).

3. Показана возможность управления положением коротковолновой границы спектра суперконтинуума (антистоксова крыла спектра), генерируемого в среде при распространении лазерного излучения путем изменения жесткости внешней фокусировки. Получено аналитическое выражение, позволяющее рассчитать это положение.

4. Проанализированы условия фазового синхронизма при генерации третьей гармоники в газовой среде с учетом изменения расстройки волновых векторов основной частоты и

гармоники вследствие модуляции интенсивности лазерного излучения при его распространении. Выявлены законы масштабирования фазовой модуляции и поглощения лазерного излучения в газовой среде при изменении макропараметров взаимодействия (давление, интенсивность, степень ионизации среды), которые позволяют предложить способы увеличения эффективности генерации гармоник.

5. С помощью непертурбативной теории отклика одиночного атома на лазерное поле получено аналитическое выражение нелинейной восприимчивости произвольного порядка газовой среды, которая необходима для учета нелинейности среды в классических моделях распространения лазерного излучения.

Теоретическая и практическая значимость проведенных исследований заключается в выявлении новых способов управления шириной спектра суперконтинуума в диэлектриках; способов повышения эффективности генерации гармоник низкого порядка при распространении лазерного излучения в газовой среде; в использовании аналитического выражения нелинейной восприимчивости взамен феноменологически вводимой величины; в уточнении модели динамики свободных носителей заряда под действием лазерного излучения среднего инфракрасного диапазона, при этом величины, определяемые ранее феноменологически, заменяются величинами, рассчитываемыми аналитически.

Методология диссертационного исследования основана на современных методах компьютерного моделирования распространения лазерного излучения в нелинейных диспергирующих средах, решения системы уравнений, описывающих динамику свободных носителей заряда и населенности связанных состояний атома под действием лазерного поля, а также аналитического исследования математических выражений. Вычисления проводились на высокопроизводительных расчетных машинах по программам, написанным на языке программирования C/C++, а также с помощью технологии параллельного программирования OpenCL.

Защищаемые положения:

1. Усовершенствованная модель динамики свободных носителей заряда (EMRE) позволяет исследовать взаимодействие полупроводников и диэлектриков с лазерным излучением среднего инфракрасного диапазона благодаря учету нагрева свободных носителей выше критической энергии, необходимой для ударной ионизации.

2. В режиме лавинной ионизации формируется распределение свободных носителей заряда по энергии, форма которого не зависит от флюенса лазерного излучения и ширины запрещенной зоны среды, а средняя кинетическая энергия свободных носителей составляет 0,56 от ширины запрещенной зоны.

3. Учет дисперсионного слагаемого в усовершенствованной модели динамики свободных носителей заряда (EMRE) увеличивает точность расчетов концентрации носителей зарядов и их средней кинетической энергии, приближая к значениям, полученным по кинетической модели Фоккера-Планка, при 20-кратном ускорении проводимых расчетов.

4. При увеличении жесткости фокусировки лазерного излучения среднего инфракрасного диапазона в прозрачных диэлектриках положение антистоксова крыла суперконтинуума смещается в длинноволновую область спектра благодаря влиянию фазовой самомодуляции и плазменной фазовой модуляции.

5. Расстройка волновых векторов гармоники и основной частоты изменяется в несколько раз при распространении в газовой среде вследствие модуляции интенсивности лазерного излучения и тока свободных носителей заряда при таком распространении. Установленные законы масштабирования фазовой модуляции и поглощения лазерного излучения в газовой среде при изменении макропараметров взаимодействия (давление, интенсивность, степень ионизации среды) демонстрируют способы увеличения эффективности генерации третьей гармоники.

Достоверность полученных результатов подтверждается повторяемостью результатов при изменении используемого метода численного решения и согласованностью полученных результатов с экспериментальными данными. Все основные результаты, представленные в диссертационной работе, прошли проверку во время рецензирования при публикации в рецензируемых журналах и в процессе обсуждения с ведущими мировыми специалистами на тематических конференциях.

Материалы диссертационной работы представлены в 8 статьях общим объемом 4,94 печ.л., опубликованных в рецензируемых журналах:

1. K. V. Lvov, S. Y. Stremoukhov, F. V. Potemkin, E. A. Migal. Asymmetric temporal splitting of laser pulse and broad supercontinuum generation under femtosecond filamentation in yag crystal // Laser Physics Letters. — 2018. — Vol. 15, no. 8. — P. 085402.

2. E. I. Mareev, K. V. Lvov, B. V. Rumiantsev et al. Effect of pulse duration on the energy delivery under nonlinear propagation of tightly focused cr:forsterite laser radiation in bulk silicon // Laser Physics Letters. — 2020. — Vol. 17, no. 1. — P. 015402.

3. Lvov K., Stremoukhov S., Potemkin F. The role of external focusing in spectral enrichment under mid-ir laser filamentation in dielectrics // Journal of optics. — 2021. — Vol. 23, no. 6. — P. 065502.

4. Mareev E.I., Pushkin A.V., Migal E.A., Lvov K.V., Stremoukhov S.Yu, Potemkin F.V. Single-shot femtosecond bulk micromachining of silicon with mid-ir tightly focused beams // Scientific reports. — 2022. — Vol. 12. — P. 7517.

5. Lvov K. V., Potemkin F. V., Stremoukhov S. Y. Extension of the multiple rate equation model for conduction band dynamics under near- and mid-ir femtosecond excitation of dielectrics and semiconductors // *Materials Today Communications*. — 2023. — Vol. 35. — P. 105594.

6. Львов К. В., Стремоухов С. Ю. Учет энергетического распределения свободных носителей в скоростных уравнениях, описывающих их динамику при взаимодействии диэлектриков с мощным лазерным излучением // *Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики*. — 2023. — Т. 117, № 12. — С. 904–911.

Переводная версия: Lvov K. V., Stremoukhov S. Y. Inclusion of the energy distribution of free carriers in the rate equations describing their dynamics at the interaction of dielectrics with intense laser radiation // *JETP Letters*. — 2023. — Vol. 117, no. 12. — P. 908–915.

7. К. В. Львов, С. Ю. Стремоухов. Учет энергетического дисперсионного расплывания свободных носителей, индуцированных мощным фемтосекундным лазерным излучением в диэлектриках // *Известия РАН. Серия Физическая*. — 2024. — Т. 88, № 1.

Переводная версия: Lvov K. V., Stremoukhov S. Y. Allowing for the energy dispersion spreading of free carriers induced by high-power femtosecond laser radiation in dielectrics // *Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics*. — 2024. — Vol. 88, no. 1. — P. 44–48.

8. Львов К.В., Стремоухов С.Ю. Фазовый синхронизм при генерации гармоник в газе с учетом изменения расстройки волновых векторов при распространении интенсивного фемтосекундного лазерного импульса // *Квантовая электроника*. — 2024. — Т. 54, № 2. — С. 113–118.

Результаты диссертационного исследования прошли апробацию на всероссийских и международных конференциях и научных школах:

Международная научная конференция студентов, аспирантов и молодых ученых «Ломоносов» (Москва, Россия, 2017, 2018, 2019, 2020), Progress In Electromagnetics Research Symposium (Санкт-Петербург, Россия, 2017), Всероссийский молодежный научный форум «Наука будущего – наука молодых» (Россия, 2017, 2020), Курчатовская междисциплинарная молодежная научная школа (Москва, Россия, 2017, 2019), Международная конференция по фотонике и информационной оптике (Москва, Россия, 2018, 2019, 2022), International Conference on Ultrafast Optical Science (UltrafastLight) (Москва, Россия, 2020, 2021, 2022, 2023), International Conference on Laser Optics (ICLO) (Санкт-Петербург, Россия, 2020, 2022), Всероссийская научная конференция МФТИ (Москва, Россия, 2020), X Конгресс молодых ученых (онлайн, 2020), XXIII межвузовская молодежная научная школа-конференция «Концентрированные потоки энергии в космической технике, электронике, экологии и медицине» (онлайн, 2022), Всероссийская школа-семинар «Волновые явления: физика и применения» им. А.П. Сухорукова (Красновидово, Россия, 2022, 2023, 2024), I Самарцевские

Чтения (ФЭКС/IWQO) (Светлогорск, Россия, 2023), International Workshop Complex Systems of Charged Particles and Their Interactions with Electromagnetic Radiation (Москва, Россия, 2024).

Личный вклад автора состоит в постановке задач исследования (участие), в разработке расчетных программ, проведении вычислений и обработке полученных данных, в проведении аналитических исследований, в обсуждении и интерпретации полученных результатов (участие). Все представленные в диссертационной работе численные результаты получены автором лично.

Глава 1. Современное состояние исследований нелинейно-оптических взаимодействий фемтосекундного лазерного излучения с газовыми и конденсированными средами

С работ Таунса, Басова и Прохорова об усилении вынужденным излучением [17, 18] и первых экспериментов в 1960 году по квантовой генерации излучения оптического диапазона [19] начался бурный рост исследований по взаимодействию лазерного излучения с газовыми и конденсированными средами, по изучению нелинейно-оптических свойств этих сред. Усилия ученых были направлены как на развитие экспериментальных методов генерации лазерного излучения, повышения его интенсивности, реализации различных схем воздействия на вещество, регистрации генерируемого излучения, диагностики состояния вещества, так и на разработку теоретических подходов к описанию возбуждения среды лазерным излучением, трансформации свойств лазерного излучения при его распространении через среду, генерации когерентного излучения и оптимизации параметров лазерного излучения (длина волны, длительность, чирп, условия фокусировки) и среды (энергетическая (зонная) структура, потенциал ионизации (ширина запрещенной зоны), нелинейная восприимчивость, давление, материальная дисперсия) для управляемого взаимодействия лазерного излучения со средой.

Круг нелинейно-оптических взаимодействий чрезвычайно широк и активно исследуется – ежегодно публикуется несколько десятков тысяч научных работ по лазерной физике. Остановимся подробнее на обсуждении таких нелинейно-оптических взаимодействий, как трансформация спектра лазерного излучения при его распространении через среду, генерация гармоник, генерация суперконтинуума, а также возникновение в объеме материала свободных носителей заряда и поглощение ими лазерной энергии – нелинейно-оптических взаимодействий, имеющих прямое практическое применение в вопросах создания новых материалов с заданными свойствами и методов их обработки, хирургии, диагностики атмосферы, повышения безопасности на транспорте, развития систем передачи информации.

1.1. Генерация суперконтинуума

Одним из наиболее ярких нелинейных явлений в лазерной физике является филаментация. Долгое время считалось, что высокоинтенсивный лазерный импульс не может распространяться на большие расстояния в газовой и, тем более, в конденсированной среде. Однако впервые в работе [20] было показано обратное: интенсивность возрастала при распространении лазерного импульса ближнего инфракрасного диапазона. Высокоинтенсивное лазерное излучение испытывает самофокусировку, которая уменьшает поперечный размер пучка и еще больше увеличивает интенсивность излучения. Но коллапса

не происходит, потому что в определенный момент запускаются процессы плазмообразования и формируются тонкие (шириной в несколько длин волн) нитеобразные плазменные каналы, в которых излучение частично поглощается и дефокусируется, компенсируя нарастание интенсивности за счет самофокусировки. Динамическое равновесие между самофокусировкой и дефокусировкой в плазме определяет особый тип распространения импульса в среде – филаментационный, или режим самоканалирования [21]. Позже филаментацию наблюдали и в конденсированных средах [22], обычно для этого требуется достижения интенсивностей 10^{13} - 10^{14} Вт/см². Самофокусировка определяется как добавка к линейному показателю преломления, которая пропорциональна интенсивности излучения: $n = n_0 + n_2 I$. Для того, чтобы началась самофокусировка, «фокусирующая сила» должна преодолеть дифракционную расходимость пучка, поэтому существует критическая мощность излучения $P_{cr} = \alpha \frac{\lambda^2}{n_0 n_2}$ (числовой коэффициент α зависит от временного профиля импульса) [23], выше которой возможна самофокусировка.

Прогресс в области лазерной физики сделали возможным получение, изучение и всестороннее применение разнообразных нелинейных процессов, сопутствующих филаментации, наиболее важным из которых является генерация когерентного излучения. К нему можно отнести излучение суперконтинуума, оптических гармоник, гармоник высокого порядка, терагерцовое излучение [3, 24, 25].

Генерация суперконтинуума представляет собой нелинейный процесс, в котором спектр излучения существенно уширяется, покрывая весь видимый и ближний инфракрасный диапазоны длин волн. Суперконтинуум наблюдали в газах [26, 27], диэлектриках [28, 29], полупроводниках [30, 31], фотонных кристаллах [32, 33], микроструктурированных волокнах [34]. Как считается в настоящее время, основным механизмом, обеспечивающим генерацию суперконтинуума является фазовая самомодуляция (ФСМ) [35]. Фазовый набег в определенный момент времени пропорционален интенсивности излучения, поэтому вдоль импульса фаза меняется нелинейным образом. В силу этого, на переднем фронте импульса происходит положительная модуляция частоты, а на заднем – отрицательная, и спектр импульса уширяется в обе стороны.

Материальная дисперсия нелинейной среды накладывает свои особенности на распространение фемтосекундного лазерного излучения. Так, ненулевая дисперсия групповой скорости (ДГС) $\frac{\partial^2 k}{\partial \omega^2}$ в линейной среде приводит к расплыванию импульса. В нелинейной же среде при положительной ДГС импульс расщепляется на два субимпульса [36, 37], причем

задний субимпульс более интенсивный, чем передний. Такое асимметричное расщепление происходит за счет эффекта самоукручения, когда создаваемая кубичной нелинейностью добавка к показателю преломления выше для центральной части импульса (поскольку она наиболее интенсивная), и излучение с большим показателем преломления распространяется с меньшей скоростью и оказывается у заднего фронта. При отрицательной ДГС происходит компрессия импульса, причем как по временной оси, так и по пространственной, и образуется «световая пуля» [38, 39]. Особенности такого режима является уменьшение длительности вплоть до нескольких десятков фемтосекунд и появление в спектре характерного пика в синей части спектра (антистоксова крыло) [40, 41]. Его положение не зависит от энергии импульса, но коротковолновая граница определяется порядком многофотонности. В работе [4] была предложена аналитическая формула, описывающая положение антистоксова крыла в спектре на основе представления об интерференции излучения от большого числа точечных источников, расположенных на оси распространения импульса.

1.2. Генерация гармоник, нелинейная восприимчивость

Проведено много исследований генерации гармоник низкого порядка как экспериментально [42, 43], так и теоретически [35, 44]. Их появление феноменологически описывается тензорами нелинейной восприимчивости различных рангов. Например, генерация третьей гармоники является процессом 4-х-волнового смешения:

$$P_i(3\omega) = \chi_{ijkl}^{(3)}(3\omega; \omega, \omega, \omega) E_j(\omega) E_k(\omega) E_l(\omega).$$

Нелинейная восприимчивость среды определяется, как правило, феноменологически, путем согласования теоретической модели с полученными экспериментальными данными. Так, в работах [45, 46, 47] приведены значения нелинейной восприимчивости третьего порядка атомарного водорода, благородных газов и диатомных молекул в различных спектральных диапазонах, полученные путем измерения сигнала третьей гармоники, спектрального уширения основной гармоники и др. экспериментальными техниками.

Помимо чисто экспериментальных методов определения нелинейной восприимчивости, разработано также несколько теоретических подходов. Модель классического ангармонического осциллятора применялась в ранних фундаментальных работах [35, 48]. Однако ее использование требует также определения каким-либо другим способом таких параметров как время релаксации и сила осциллятора. Схожая идея ангармонического осциллятора использована в работе [49], в которой проводится расчет безынерционного нелинейного отклика диэлектрических сред в приближении трехуровневой и четырехуровневой энергетической структуры среды, приводится закон дисперсии

нелинейного показателя преломления, а также собраны многочисленные экспериментальные данные по измерению нелинейного показателя преломления различных диэлектрических сред. В терагерцовом спектральном диапазоне теоретически предсказаны и экспериментально зарегистрированы экстремально высокие колебательные вклады молекул в нелинейной показатель преломления [50, 51].

Путем измерения двухфотонного поглощения и использования соотношений Крамерса-Кронига удастся определить дисперсию нелинейного показателя преломления [52], находящуюся в полном соответствии с указанными выше экспериментальными данными.

Большое распространение получил метод расчета нелинейной восприимчивости свободных атомов с помощью теории возмущения, где в качестве возмущения рассматривается внешнее электрическое поле. Рассчитанные по теории возмущений дисперсионные зависимости для N и N_e приведены в работах [53] и [54] соответственно. Однако, как правило, границы применимости такого подхода и условия сходимости теории возмущений остаются за рамками исследований. В работе [55] метод теории возмущения был сравнен с прямым расчетом нелинейной восприимчивости путем численного решения нестационарного уравнения Шредингера. Существенно непертурбативный режим формирования нелинейной восприимчивости наблюдался при интенсивностях лазерного излучения выше $1-10 \text{ ТВт/см}^2$ (для атома водорода). При интенсивностях лазерного излучения более 40 ТВт/см^2 (для атома водорода) наблюдается сначала насыщение, а затем уменьшение нелинейной восприимчивости, что подтверждается также экспериментальными данными [52, 56]. Данный факт свидетельствует о непертурбативном взаимодействии атома с лазерным полем при таких интенсивностях.

Помимо теории возмущения, существуют и методы, основанные на разложении волновой функции электрона в условиях действия лазерного поля по базису волновых функций невозмущенной задачи. Так, большое распространение получили методы квазиэнергетических состояний [57] и адиабатических состояний [58]. Все указанные выше теоретические подходы используют дипольное приближение при учете взаимодействия атома с лазерным полем. Непертурбативный подход позволяет рассчитать населенность энергетических уровней атома с учетом произвольного порядка мультипольности взаимодействия атома с лазерным полем [59]. Этот подход позволил проанализировать поляризационные и спектральные особенности генерируемого атомом когерентного излучения (как гармоник высокого порядка, так и терагерцового излучения) [6, 60, 61], а также предложить способы фазового согласования излучения гармоник высокого порядка терагерцового излучения в газовых средах [7].

В силу малости значений тензоров нелинейной восприимчивости, процессы конверсии частоты требуют высокой интенсивности воздействующего излучения. В средах, обладающих центром инверсии, генерация четных гармоник запрещена. Из-за того, что среда обладает дисперсией, условие фазового синхронизма при генерации гармоник выполняется не полностью, в результате чего при распространении эффективность генерации гармоник меняется периодически. Гармоники 5-го, 7-го и более высоких порядков возникают преимущественно в результате каскадных процессов 4-х-волнового смещения на тензоре $\chi^{(3)}$, а не на тензорах более высокого ранга [62]. В работе [63] было показано, что импульс третьей гармоники состоит из свободного и «ведомого» компонентов, которые распространяются с разными групповыми скоростями. Генерация гармоник совместно с действием фазовой самомодуляции и кросс-модуляции позволяет существенно обогатить спектр суперконтинуума. Так, в работе [42] был продемонстрирован спектр суперконтинуума шириной в 4 октавы, получаемый при фазовой самомодуляции гармоник.

Понимание процессов, лежащих в основе генерации когерентного излучения, и управление этой генерацией позволяет управляемым образом создавать импульсы с определенной длительностью (в том числе аттосекундной [1, 64]), фазовой модуляцией, временным и пространственным профилем, определенного спектрального состава. Параметры, определяющие интенсивность нелинейных процессов и их особенности, являются либо параметрами среды (ширина запрещенной зоны, линейный и нелинейный показатель преломления), либо параметрами лазерного излучения (длина волны, энергия, длительность, чирп, числовая апертура). К примерам изменения параметров среды можно отнести допирование кристаллов ионами, что повышает нелинейный показатель среды [65], а также внедрение наночастиц в нелинейную среду [66]. Но такие подходы требуют выполнения сложной процедуры синтеза образцов.

1.3. Генерация гармоник высокого порядка

Генерация гармоник высокого порядка при воздействии фемтосекундного лазерного излучения на вещество плодотворно изучалась в газовых средах [67, 68], в электронной плазме [69], на границе раздела двух сред [70], а также в объеме конденсированных сред [71]. Обзор современных методов повышения эффективности генерации гармоник высокого порядка в сплошных газовых средах представлен в [72], в плазменных – в [73].

Генерация гармоник высокого порядка в объеме конденсированных сред получила мощный импульс для развития после экспериментальной регистрации в 2011 году излучения 25-й гармоники в кристалле ZnO при длине волны лазерного излучения 3,25 мкм [74]. По

сравнению с остальными способами, генерация в твердых телах требует более низкой интенсивности лазерного излучения (порядка 1 ТВт/см^2) в силу больших значений нелинейных коэффициентов и меньшего потенциала ионизации (ширины запрещенной зоны) конденсированной среды по сравнению с газовой средой [75]. Использование отдельных наноструктур и гетероструктур в качестве среды для генерации гармоник высокого порядка существенным образом усиливает эффективность этого нелинейного процесса [76, 77]. Поляризационное состояние гармоник высокого порядка можно контролировать путем выбора направления распространения лазерного излучения в кристаллической среде благодаря ее анизотропии [78]. Конечно же, наряду с перечисленными преимуществами генерации в твердых телах существуют и недостатки. Так, в диэлектриках излучение с длиной волны меньше 100-200 нм, а в полупроводниках – с длиной волны меньше 800-1000 нм будет эффективно поглощаться на длине порядка нескольких десятков микрометров [79]. Эффективная генерация таких гармоник будет возможна, только если когерентная длина будет меньше длины поглощения [79]. В противном случае сигнал гармоник будет создаваться только на выходной границе среды. Кроме того, ширина спектра генерации гармоник, зависящий от интенсивности лазерного поля, ограничена оптическим пробоем материала и составляет порядка 40 эВ [75]. Использование сверхкоротких лазерных импульсов может помочь решить эту проблему за счет увеличения порога оптического пробоя.

1.4. Особенности генерации когерентного излучения от источников инфракрасного диапазона

В настоящее время стремительными темпами развивается фотоника среднего инфракрасного (ИК)-диапазона, создаются новые лазерные системы на длине волны 2 мкм [80], 3,9 мкм [81], 5 мкм [82], 7 мкм [83], в том числе перестраиваемые по длине волны, 4-6 мкм [8]. Масштабирование пондеромоторной энергии электронов как квадрат длины волны $\sim \lambda^2$ повышает частоту отсечки генерируемых гармоник делает возможным генерацию яркого рентгеновского излучения с энергией несколько килоэлектронвольт, что востребовано в рентгеновской спектроскопии поглощения [84]. Вместе с тем, при увеличении длины волны лазерного источника эффективность генерации гармоник масштабируется как $\lambda^{-5,5}$ [85]. Для преодоления такого значительного уменьшения эффективности генерации гармоник при увеличении λ можно использовать двухчастотные лазерные поля [86], молекулярные резонансы, расположенные вблизи спектра накачки [87], а также квазифазовое согласование [7]. Использование лазерного излучения среднего ИК-диапазона позволяет получить многооктавный спектр суперконтинуума, который после стадии компрессии может создать

импульсы длительностью в несколько циклов поля [88]. Эффективность терагерцового излучения в двухцветной схеме генерации также можно увеличить в два раза с помощью импульсов среднего ИК-диапазона, достигая гигаВольтных лазерных полей и открывая эпоху терагерцовой нелинейной оптики [89]. Кроме того, смещение длины волны лазерного излучения в средний ИК-диапазон может изменить режимы динамики свободных носителей заряда в облучаемом материале: сделать процесс фотоионизации доминирующим в полупроводниках [90], повысить порядок многофотонности процесса фотоионизации, увеличить скорость нагрева свободных носителей заряда лазерным полем.

1.5. Фазовый синхронизм

Генерация гармоник происходит эффективно только при выполнении условий фазового синхронизма. Традиционно фазовый синхронизм описывается такими вкладками в расстройку волновых векторов основной частоты и гармоники, как атомная (дипольная) фаза, геометрическая фаза, фаза вследствие материальной дисперсии, фазовой самомодуляции и генерации свободных носителей заряда [72]. Большую популярность получила модель, впервые предложенная в работе Константа [91], с помощью которой был продемонстрирован максимум сигнала гармоник высокого порядка при давлении порядка десятков миллибар. При этом различаются несколько режимов фазового согласования и законов увеличения интенсивности гармоники с расстоянием в зависимости от соотношения между когерентной длиной, длиной поглощения, нелинейной и дифракционной длин. Недавно был предложен еще один режим фазового согласования, в условиях высокой концентрации свободных носителей заряда, где решающее значение имеет длина распространения, на которой максимум спектра излучения сдвигается в коротковолновую область (blue-shifting) [92]. Генерация гармоник высокого порядка намного более чувствительна к расстройке волновых векторов, поскольку она оказывается пропорциональной порядковому номеру генерируемой гармоники [1]. Помимо указанных выше вкладов в фазовый синхронизм, при генерации гармоник высокого порядка важным может оказаться учет градиента атомной фазы вследствие того, что в центре пучка интенсивность излучения выше, чем на периферии [93]. Наличие большого количества различных факторов, влияющих на фазовый синхронизм, мотивировало на поиск законов масштабирования параметров среды и лазерного излучения, при которых наблюдается неизменный сигнал генерируемых гармоник [94].

Существует и другой режим усиления сигнала гармоник при распространении через среду – квазифазовое согласование, когда свойства среды периодически меняются, так что происходит «ступенчатое» усиление сигнала. Эффекты квазифазового согласования активно

изучались в газах [95, 96], плазменных средах [6, 73], фотонных кристаллах [97]. Было исследовано явление квазифазового согласования, возникающее при распространении двухчастотного лазерного поля в газовой среде, представляющей собой набор газовых струй, разделенных вакуумными промежутками [7]. Было показано, что как параметры среды взаимодействия (ширина газовых струй, их количество), так и параметры двухчастотного поля (в первую очередь, длина волны) позволяют существенным образом управлять как эффективностью квазифазового усиления и порядковым номером усиленных гармоник, так и их угловым спектром.

1.6. Методы управления характеристиками когерентного излучения

Наиболее простые способы управления характеристиками когерентного излучения относятся к изменению параметров лазерного излучения. Эксперименты по филаментации 100-фемтосекундных импульсов ближнего инфракрасного диапазона (2,3 мкм, отрицательная дисперсия групповых скоростей) в плавленом кварце SiO_2 [98] показали, что существует оптимальная энергия падающего импульса, при котором спектр суперконтинуума наиболее широкий. Длина волны лазерного излучения также влияет на спектр когерентного излучения [99, 100]. Так, при длинах волн, соответствующих положительной дисперсии групповой скорости, спектр представляет собой яркий пик на основной частоте и два «плато» по обе стороны от этого пика. Но при длинах волн, соответствующих отрицательной дисперсии групповой скорости, спектр также содержит второй пик – антистоксово крыло, приходящееся на область длин волн 400-600 нм (точное положение зависит от нелинейной среды) [101]. Изменение чирпа лазерного импульса позволяет управлять положением коротковолновой границы спектра суперконтинуума [102]. Значительное уширение спектра и увеличение его яркости наблюдалось при двухцветной филаментации [103].

На практике изменение внешней фокусировки является одним из наиболее простых способов управления нелинейными процессами как в газовых средах [104, 105], так и в конденсированных [106, 107]. Важно отметить, что вариация внешней фокусировки приводит сразу к нескольким физическим изменениям, влияющих на эффективность нелинейных процессов. С одной стороны, увеличение жесткости фокусировки увеличивает интенсивность падающего излучения, что должно усиливать интенсивность происходящих нелинейных процессов. С другой стороны, увеличение жесткости фокусировки уменьшает длину взаимодействия, поэтому нелинейные процессы могут не успеть развиваться. Кроме того, жесткая фокусировка способна существенно изменить профиль пучка, привести к возникновению существенной продольной составляющей лазерной волны, что значительно

усложнит рассмотрение протекающих нелинейных процессов. При распространении импульса с длиной волны, соответствующей положительной дисперсии групповой скорости: [108] – 800 нм в кристалле *YAG*, [109] – 800 нм в сапфире Al_2O_3 , наиболее широкий и яркий спектр суперконтинуума в его красной части наблюдался при более мягкой фокусировке (фокусное расстояние 40 см) излучения в кристалл. Авторы работ объясняют это тем, что при таком режиме увеличивается длина, на которой протекают нелинейные процессы, так что их эффективность повышается. При достаточно жесткой фокусировке (числовая апертура больше 0,08) в точке фокуса интенсивность повышается настолько, что происходит оптический пробой материала до того, как начнут проявлять себя нелинейные эффекты [110]. Степень внешней фокусировки может определять роль кубичной нелинейности (незначительная в случае жесткой фокусировки и доминирующая в случае мягкой фокусировки) в процессе обогащения спектра суперконтинуума за счет фазовой самомодуляции и кросс-фазовой модуляции [106].

В газовых средах помимо изменения внешней фокусировки удобным способом изменения режимов взаимодействия является вариация давления и протяженности газовой струи [105, 72, 100], а также состав газа [111, 112]. Оптимальное значение давления обычно находится в области десятков миллибар при длине волны лазерного излучения 800 нм [112], а при использовании коротких лазерных импульсов с длительностью до 10 фс положение максимума смещается к единицам бар [113]. Значение оптимального давления при использовании лазерных импульсов среднего инфракрасного диапазона требует уточнения, однако была продемонстрировано насыщение интенсивности низких гармоник при увеличении давления газовой струи вплоть до 16 бар [100]. Поэтому дополнительный интерес представляет подробное исследование области давлений несколько единиц и десятков бар при использовании лазерного излучения среднего инфракрасного диапазона с целью обнаружения оптимального давления для максимизации сигнала генерируемых гармоник.

1.7. Теоретические подходы по исследованию методов генерации когерентного излучения

Численные расчеты и моделирование помогают раскрыть механизмы, лежащие в основе нелинейно-оптических процессов, протекающих при распространении фемтосекундного лазерного излучения в среде. В настоящее время разработано несколько таких моделей [12, 114, 115, 116, 14]. Чаще всего используются скалярные модели, в которых, пренебрегая второй производной по координате вдоль направления распространения импульса $\left| \frac{d^2 E}{dz^2} \right|$ по

сравнению с $k_0 \left| \frac{dE}{dz} \right|$, приходят к обыкновенному дифференциальному уравнению относительно электрического поля E . Это уравнение также часто называют уравнением распространения, поскольку оно содержит производную по z только для электрического поля E . Все такие модели отличаются друг от друга только учетом в различных приближениях дисперсии среды, а также непараксиальности распространяющегося импульса (малость поперечного составляющей волнового вектора по сравнению с продольной составляющей). Так, нелинейное уравнение огибающей (NEE) и уравнение однонаправленного распространения вектора Герца (UHPE) [117] являются как непараксиальным относительно дифракции, так и относительно волнового фронта (считается, что он плоский). Уравнение однонаправленного распространения импульса (UPPE) является непараксиальным относительно дифракции, но параксиальным относительно волнового фронта.

Для успешного применения излучения гармоник высокого порядка в различных приложениях и развития новых направлений его использования необходимо раскрыть точные механизмы микроскопического отклика атомов среды, формирования макроскопического тока свободных носителей заряда, влияния зонной структуры, электронных корреляций и эффектов распространения на свойства генерируемого когерентного излучения. Теоретическое исследование процессов генерации гармоник высокого порядка началось задолго до первых успешных экспериментов по регистрации сигнала гармоник [118], однако до сих пор ведутся научные споры о механизмах генерации гармоник высокого порядка в твердых телах. Используемая в газах трехступенчатая модель генерации [119] может быть неприменимой в твердых телах в силу того, что электроны находятся в периодическом кулоновском потенциале, и нарушается условие применимости приближения сильного поля [120]. Нет ясного понимания влияния вкладов внутрizonных и межзонных переходов (между зоной проводимости и валентной зоны) [121, 122], в также переходов между различными зонами проводимости [123]. В большинстве моделей, описывающих процесс генерации гармоник высокого порядка, используется одноэлектронное приближение, но электрон-электронное и электрон-дырочное рассеяния, а также некоторые другие корреляционные эффекты вводятся феноменологически. Однако, фемтосекундная длительность лазерного поля, сравнимая с характерным временем корреляционных эффектов, требует дальнейших исследований в этом направлении [124]. Вопрос о влиянии распространения лазерного излучения на свойства гармоник высокого порядка также остается открытым. Эффекты распространения могут приводить к дефазировке излучения гармоник [125].

Для теоретического исследования механизмов возбуждения газовых и конденсированных сред лазерным полем и генерации ими когерентного излучения

используется несколько подходов. Первый из них связан с непосредственным численным решением нестационарного уравнения Шредингера (TDSE) [126]. Вторым подходом является численное решение уравнений Блоха для полупроводников (SBE) [127], при этом рассматривается дипольное приближение, а изменяющиеся во времени матричные элементы оператора дипольного момента рассчитываются с помощью теории функционала плотности (TDF) [128]. В недавней работе [129] предложен подход, с помощью которого удается избежать расчетов матричных элементов дипольного момента, что требует больших вычислительных ресурсов, и одновременно учесть всю зонную структуру материала. Третий подход разработан для описания отклика одиночных атомов на лазерные поля [59]. Главной особенностью этого теоретического подхода является использование точных волновых функций краевой задачи «об атоме в поле», симметричные свойства которой совпадают с симметрией нестационарной задачи о валентном электроном, взаимодействующим с лазерными полями в дорелятивистском приближении. Результатом использования базиса волновых функций краевой задачи «об атоме в поле», является учет нелинейности отклика атома произвольного порядка, что позволяет непertурбативным образом полностью квантово-механически описывать указанное явление.

1.8. Применение когерентного излучения

Когерентное излучение, возникающее при распространении лазерного излучения через среду широко используется в спектроскопии, фотонике, нелинейной оптике, фемтосекундных лазерных системах. Техника «z-scan» с использованием излучения суперконтинуума позволяет наиболее полно охарактеризовать нелинейный спектр поглощения [130]. Параметрически усиленные части спектров суперконтинуума используют для создания частотных гребенок и измерения частоты сигналов [131]. В настоящее время излучение суперконтинуума широко используется в качестве затравочного в параметрических усилителях чирпированных импульсов [132] и в лазерах на свободных электронах [133], улучшая их яркость, стабильность и когерентные свойства. Излучение гармоник в объеме твердого тела является одним из возможных способов создания компактных источников когерентного излучения в ультрафиолетовом диапазоне, излучение которых будет стабильно относительно фазовых и амплитудных флуктуаций лазера [134]. Также излучение второй гармоники используется для измерения длительности фемтосекундных лазерных импульсов [135]. Излучение гармоник высокого порядка находит свое применение в качестве источника когерентного излучения аттосекундной длительности [136], которое может использоваться для изучения миграции зарядов в молекулах [137], переноса зарядов в органических

солнечных панелях [138], сверхбыстрого контроля диэлектрических свойств материалов [139] и других практических задач фотохимии, биологии и материаловедения. Фундаментальный интерес также представляет восстановление по интенсивностям регистрируемых высоких гармоник и их поляризационного состояния зонной структуры материала [140, 141]. Терагерцовое излучение идеально подходит для идентификации многих как органических, так и неорганических молекул [142], поскольку является неразрушающим методом, а колебательные и вращательные моды молекул лежат в терагерцовой области частот. Этот диапазон излучения позволяет изучать коллективные возбуждения в конденсированной среде [143] и распределение и плотность плазменных источников [144]. Также терагерцовое излучение можно использовать в зонах досмотра [145], при восстановлении объектов культурного наследия [146], в качестве инструмента для контроля качества [147].

1.9. Возбуждение среды лазерным излучением, генерация свободных носителей заряда и их динамика

Первым этапом воздействия лазерного излучения на среду является возбуждение связанных и свободных носителей заряда и их динамика под действием лазерного поля. При высокой интенсивности лазерного излучения существенно повышается вероятность фотоионизации. Наиболее простое описание процессов ионизации предложил Л. В. Келдыш [148]. Он рассмотрел взаимодействие монохроматической электромагнитной волны с одиночным атомом, а также с кристаллической решеткой и объединил в рамках одного подхода два механизма ионизации: многофотонный (переход электрона из зоны проводимости в валентную зону происходит при поглощении нескольких фотонов, число которых равно порядку многофотонности) и туннельный (переход электрона в свободное состояние происходит за счет туннельного эффекта). Соотношение вероятности ионизации по этим двумя каналам определяется параметром $\gamma = \frac{\omega}{e|E|} \sqrt{mE_g}$. В случае сильных полей, либо малых частот $\gamma \ll 1$, и преобладает туннельная ионизация. В случае слабых полей, либо высоких частот $\gamma \gg 1$, и преобладает многофотонная ионизация, когда вероятность ионизации пропорциональна интенсивности излучения в степени порядка многофотонности. Идеи Келдыша впоследствии были развиты и уточнены в работах Никишова и Ритуса [149], а также Переломова, Попова и Терентьева [150, 151]. Развитие этой теории привело к появлению приближения Аммосова-Делоне-Крайнова (АДК) для туннельной ионизации [152]. В этом приближении с помощью уточнения влияния кулоновского потенциала рассчитан предэкспоненциальный множитель в формуле Келдыша для вероятности ионизации.

Дальнейшее развитие теории описания процесса ионизации атома сильным электромагнитным полем привело к появлению более точных приближений: приближение Келдыша-Файсала-Риса (KFR) [148, 153, 154], приближение сильного поля (Strong-field approximation, SFA) [154], метод квазиэнергетических состояний [57], теория функционала плотности [155], неадиабатический подход [156], непertурбативная теория отклика атома на лазерное поле [59]. Вопрос об области применимости теории Келдыша и других приближений являлся объектом интенсивных исследований [157].

Свободные носители, возникающие при фотоионизации и движимые лазерным полем, набирают энергию за счет механизма обратного тормозного излучения, которое возникает в результате столкновений [158, 159]. Другой возможностью нагрева лазерным излучением являются прямые переходы между подзонами зоны проводимости посредством многофотонного поглощения [160]. Электроны зоны проводимости также участвуют в безызлучательных процессах, в частности, в ударной ионизации, приводящей к лавинообразному увеличению населенности зоны проводимости. Ударная ионизация осуществляется электронами с кинетической энергией, превышающей критическое значение (которое фактически представляет собой ширину запрещенной зоны, умноженную на константу порядка единицы), и ее можно оценить с помощью интегралов перекрытия [161, 162].

Существует несколько моделей динамики свободных носителей заряда, позволяющих рассчитывать населенность зоны проводимости и поглощение лазерной энергии. Их можно разделить на две крупные ветви. Первая – это кинетические модели, основанные на уравнении Больцмана [10, 163], либо его упрощении – уравнении Фоккера-Планка [164]. В этом подходе рассчитывается функция распределения электронов в зоне проводимости. Этот способ достаточно сложен для практической реализации и требует значительных вычислительных и временных ресурсов. Более простой подход заключается в применении скоростных уравнений, позволяющих рассчитать полную населенность зоны проводимости. Самой простой из них является односкоростная модель (SRE) [165], которая, по сути, представляет собой феноменологическое описание динамики свободных носителей заряда и согласуется с экспериментальными данными на временах порядка сотен фемтосекунд. Улучшение модели SRE – многоскоростная модель (MRE) [11, 166], мотивированная численным решением уравнения Больцмана [10] и учитывающая необходимость набора электронами энергии в лазерном поле перед участием в актах ударной ионизации. Также была разработана модель на основе MRE, учитывающая ионизацию из нескольких валентных зон, а также использующая уравнение Виноградова вместо модели Друде для нагрева электронов в лазерном поле [167]. Дальнейшее упрощение модели MRE с точки зрения вычислительных ресурсов приводит к

модифицированной модели SRE, которая предполагает распределение электронов Ферми-Дирака в зоне проводимости [74] или к недавно предложенной модели DRE [168], подразумевающей максвелловское распределение электронов в зоне проводимости.

1.10. Модификация структуры вещества лазерным излучением

Поглощение энергии свободными носителями, создаваемыми лазерным излучением в материале используется для модификации как поверхности (лазерная очистка поверхности [169], формирование поверхностных периодических структур [170], литография [171] и др.), так и объема материала (формирование оптических волноводов [172], диффракционных решеток [173] и др.). Достижения этой области лазерной физики собраны в обзорных работах: по диэлектрическим средам [174] и по полупроводникам [9]. Благодаря фемтосекундной длительности лазерных импульсов, можно доставлять лазерную энергию в ограниченную область с минимальным тепловым воздействием [175], открывая новые перспективы для лазерной микрообработки объема материалов. Фемтосекундная микрообработка дает уникальное пространственное разрешение: можно создавать структуры с субмикронными размерами [176]. Пространственная локализация энергии лазерного импульса достигается за счет фокусировки лазерного луча. Объемная плотность энергии излучения может превышать порог образования микромодификации в диэлектриках в несколько раз [177].

Тем не менее, чрезвычайно трудно достичь высоких значений объемной плотности энергии в объеме полупроводников из-за возникающей сильной пространственной делокализации излучения [178]. Однако создание волноводных структур в объеме полупроводников было бы чрезвычайно полезным для развития микроэлектронной техники. Пространственная делокализация излучения вызвана несколькими факторами: дефокусировка на поверхности образца за счет преломления, сильное двухфотонное поглощение в материале [179]. В результате область взаимодействия резко увеличивается, и основные преимущества фемтосекундной микрообработки (высокая пространственная разрешенность, низкий теплообмен) исчезают [180].

Для преодоления этих препятствий была предложена гиперфокусировка (метод твердотельной иммерсии) [180]. Однако этот подход сложен для дальнейшего технологического применения. Альтернативный способ – использовать затравочные электроны, созданные предшествующим фемтосекундным импульсом [181] или пико- и наносекундным пьедесталом лазерного импульса [182]. При этом локализация энергии основного лазерного импульса достигается за счет «фиксирования» первым низкоэнергетическим лазерным импульсом области плазмообразования. Другой подход

основан на увеличении длительности лазерного импульса [183, 184], что снижает интенсивность лазерного излучения и плотность генерируемой плазмы, что позволяет избежать сильного поглощения и делокализации лазерного излучения в предфокальной области. Тем не менее, порядок многофотонности остается равным 2 или 3, что приводит к плазменному экранированию лазерного импульса даже при энергиях менее мкДж.

В последние годы благодаря созданию лазерных систем в среднем ИК-диапазоне объемное микроstructuring полупроводниковых материалов, в частности, кремния получило новый импульс для развития [9, 182, 185, 186]. Успехи в экспериментальной демонстрации микроstructuring объема кремния и быстрое развитие лазерных технологий в этой области должно способствовать реализации микроstructuring объема и других важных для микроэлектроники полупроводников, таких как селенид и сульфид цинка, фосфид галлия. Вместе с тем, по-прежнему необходимы теоретические исследования для совместного учета как локального воздействия на материал лазерного излучения, так и эффектов нелинейного распространения в материале.

Таким образом, область лазерной физики, посвященная нелинейно-оптическим взаимодействиям интенсивного лазерного излучения с веществом, активно развивается в настоящее время, предлагая новые подходы к созданию перспективных источников когерентного излучения и развитию новых методов управления свойствами такого излучения и свойствами материалов, с которыми взаимодействует лазерное излучение. Далее, в главе 2, приводится методологическая основа теоретических исследований нелинейно-оптических процессов, происходящих при распространении лазерного излучения. В главах 3 и 4 диссертации изложены оригинальные результаты, касающиеся возбуждения среды лазерным излучением и генерации когерентного излучения.

Глава 2. Скалярная модель распространения лазерного излучения в газовых и конденсированных средах

Взаимодействие лазерного излучения со средой и результаты такого взаимодействия носят комплексный характер. Лазерное поле, действуя на заряженные частицы (прежде всего на электроны, как на самые легкие частицы), возбуждает атомы среды, приводя к целому каскаду процессов поглощения лазерной энергии. В результате такого возбуждения, а также коллективных эффектов (столкновения электронов с другими частицами и квазичастицами) формируется макроскопический ток среды, который описывает как поглощение лазерной энергии средой, так и генерацию когерентного излучения. Однако по мере распространения лазерного излучения через среду его свойства (интенсивность, длительность, спектральный состав, пространственный размер) претерпевают изменения, вследствие чего изменяются и характеристики результатов взаимодействия лазерного излучения со средой (объемная плотность поглощенной энергии, яркость и спектральный состав генерируемого когерентного излучения). В конечном итоге, экспериментальному наблюдению и последующему практическому применению доступны только «усредненные» последствия взаимодействия.

Обе стороны такого взаимодействия – возбуждение среды и трансформация свойств лазерного излучения и генерируемого когерентного излучения при распространении в среде – доступны для теоретического исследования в рамках уравнений Максвелла и различных приближений, позволяющих решить систему дифференциальных уравнений. На основе значения лазерного поля определяется макроскопический ток (ток свободных носителей заряда и поляризация), а на основе макроскопического тока – изменение свойств лазерного и генерируемого излучения.

В данной главе подробно описана модель однонаправленного распространения лазерного импульса (UPPE) через среду и модель динамики свободных носителей заряда, а также описан способ численного решения полученной самосогласованной системы дифференциальных уравнений.

2.1. Уравнение однонаправленного распространения импульса (UPPE)

Теоретическое описание процесса распространения импульса в нелинейной диспергирующей среде основано на уравнениях Максвелла (в системе СИ):

$$\left\{ \begin{array}{l} \operatorname{rot} \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t}, \\ \operatorname{div} \vec{D} = \rho, \\ \operatorname{rot} \vec{H} = \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} + \vec{j}, \\ \operatorname{div} \vec{B} = 0, \end{array} \right. \quad (1)$$

где вектора \vec{E} и \vec{D} обозначают напряженность и индукцию электрического поля, а \vec{H} и \vec{B} – напряженность и индукцию магнитного поля, ρ – объемную плотность свободных носителей заряда, \vec{j} – объемную плотность свободных токов в среде. Все поля зависят от времени t и пространственных переменных $\vec{r} = \{x, y, z\}$.

Для немагнитной среды ($\vec{B} = \mu_0 \vec{H}$) и в отсутствии свободных носителей заряда ($\rho = 0$, $\operatorname{grad} \cdot \operatorname{div} \vec{E} = 0$) из уравнений Максвелла следует уравнение:

$$\Delta \vec{E} = \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{D}}{\partial t^2} + \mu_0 \frac{\partial \vec{j}}{\partial t}, \quad (2)$$

Материальное уравнение связывает вектора индукции и напряженности электрического поля через вектор поляризации \vec{P} , который можно разделить на линейную и нелинейную части:

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P}_l + \vec{P}_{nl} = \int_0^\infty dt_1 \varepsilon(t_1) \varepsilon_0 \vec{E}(t-t_1) + \vec{P}_{nl}. \quad (3)$$

Подставив (3) в (2), получим векторное волновое уравнение с нелинейным источником, описывающее процесс распространения импульса в нелинейной диспергирующей среде:

$$\Delta \vec{E} - \frac{\partial^2}{\partial t^2} \int_0^\infty dt' \varepsilon(t') \varepsilon_0 \vec{E}(t-t') = \frac{\partial^2 \vec{P}_{nl}}{\partial t^2} + \frac{\partial \vec{j}}{\partial t}. \quad (4)$$

Вектор нелинейной поляризации $\vec{P}_{nl} = \{P_{nl}^i\}$ в общем случае можно представить в виде ряда по степеням поля $\vec{E} = \{E^i\}$, коэффициентами разложения при этом являются тензоры нелинейной восприимчивости $\chi^{(n)}$ [35]:

$$\begin{aligned} P_{nl}^i(t) = & \varepsilon_0 \int_0^\infty dt' \int_0^\infty dt'' \chi_{ijk}^{(2)}(t', t'') E^j(t-t') E^k(t-t'-t'') + \\ & + \varepsilon_0 \int_0^\infty dt' \int_0^\infty dt'' \int_0^\infty dt''' \chi_{ijkl}^{(3)}(t', t'', t''') E^j(t-t') E^k(t-t'-t'') E^l(t-t'-t''-t''') + \dots \end{aligned} \quad (5)$$

Пусть электромагнитная волна является линейно поляризованной и поперечной, т.е. все вектора, введенные ранее, направлены вдоль фиксированного направления,

перпендикулярного направлению распространения волны $\vec{E} = E\vec{e}_s$, $\vec{D} = D\vec{e}_s$, $\vec{P} = P\vec{e}_s$, $\vec{j} = j\vec{e}_s$. Дальнейшие преобразования уравнения (4) и получения того уравнения, на основе которого будет строиться численная схема, можно проводить разными способами, с различной степенью приближения. Будем считать, что лазерный пучок обладает аксиальной симметрией, либо он является щелевым, т.е. имеет размерность $2D+1$ (2 пространственные координаты r и z и временная координата t). Для более простого анализа и интерпретации результатов расчетов видится наиболее удачным получение информации как о динамике самого поля в импульсе, так и его огибающей. Поэтому представим поле в комплексном виде:

$$E(t, r, z) = \frac{1}{2} \mathcal{E}(t, r, z) + \text{к.с.} \quad (6)$$

Здесь и далее под $\mathcal{E}, \mathcal{P}, \mathcal{J}$ понимаются комплекснозначные величины. Модуль $|\mathcal{E}|$ является огибающей импульса, а вещественная часть $\text{Re}(\mathcal{E})$ – электрическим полем. В таком же виде представим нелинейную поляризацию и плотность тока.

Если лазерный пучок обладает аксиальной симметрией, то удобно перейти от координат $\{t, r, z\}$ к координатам $\{\omega, k_\perp, z\}$ с помощью преобразования Фурье по координате t и Ханкеля по координате r :

$$\begin{aligned} \mathcal{E}(t, r, z) &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-i\omega t} d\omega \int_0^{+\infty} J_0(k_\perp r) k_\perp dk_\perp \mathcal{E}(\omega, k_\perp, z), \\ \mathcal{E}(\omega, k_\perp, z) &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{i\omega t} dt \int_0^{+\infty} J_0(k_\perp r) r dr \mathcal{E}(t, r, z). \end{aligned} \quad (7)$$

Если лазерный пучок является щелевым, то удобно перейти от координат $\{t, r, z\}$ к координатам $\{\omega, k_\perp, z\}$ с помощью преобразования Фурье по координате t и Фурье по координате r :

$$\begin{aligned} \mathcal{E}(t, r, z) &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-i\omega t} d\omega \int_{-\infty}^{+\infty} e^{ik_\perp r} dk_\perp \mathcal{E}(\omega, k_\perp, z), \\ \mathcal{E}(\omega, k_\perp, z) &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{i\omega t} dt \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-ik_\perp r} dr \mathcal{E}(t, r, z). \end{aligned} \quad (8)$$

Аналогичные преобразования выполняются над комплекснозначными поляризацией $\mathcal{P}_\perp, \mathcal{P}_{\text{нл}}$ и плотностью тока \mathcal{J} и их производными. Тогда, например, $\frac{\partial^2 \mathcal{E}(t, r, z)}{\partial t^2}$ заменится на $-\omega^2 \mathcal{E}(\omega, k_\perp, z)$, $\Delta_r \mathcal{E}(t, r, z)$ – на $-k_\perp^2 \mathcal{E}(\omega, k_\perp, z)$, а $\frac{\partial \mathcal{J}}{\partial t}(t, r, z)$ – на $-i\omega \mathcal{J}(\omega, k_\perp, z)$. С учетом (6), уравнение (4) переписется в виде:

$$\frac{\partial^2 \mathcal{E}}{\partial z^2} - k_{\perp}^2 \mathcal{E} = -\frac{\varepsilon(\omega)\omega^2}{c^2} \mathcal{E} - \omega^2 \mu_0 \mathcal{P}_{nl} - i\omega \mu_0 \mathcal{J}. \quad (9)$$

Обозначим $k_z = \sqrt{k^2(\omega) - k_{\perp}^2} = \sqrt{\frac{\varepsilon(\omega)\omega^2}{c^2} - k_{\perp}^2}$, где $k(\omega)$ – волновое число. Будем

рассматривать преимущественное распространение импульса в положительном направлении оси z . Выполним следующее преобразование:

$$\frac{\partial^2}{\partial z^2} + k_z^2 = \left(\frac{\partial}{\partial z} + ik_z \right) \left(\frac{\partial}{\partial z} - ik_z \right) \approx 2ik_z \left(\frac{\partial}{\partial z} - ik_z \right).$$

Перейдем в бегущую систему отсчета $z \rightarrow z, t \rightarrow t - \frac{z}{v_g}$, которая движется вдоль оси z с

групповой скоростью $v_g = \frac{1}{k'_0}$, $k'_0 = \left. \frac{\partial k(\omega)}{\partial \omega} \right|_{\omega_0}$. Производные по времени останутся

неизменными, а производная по z изменится: $\frac{\partial}{\partial z} \rightarrow \frac{\partial}{\partial z} + i\omega k'_0$.

Тогда окончательно получим уравнение, известное в литературе как UPPE (Unidirectional Pulse Propagation Equation) [115] – уравнение, описывающее распространение импульса в одном направлении:

$$\frac{\partial \mathcal{E}(\omega, k_{\perp}, z)}{\partial z} = i(k_z - k'_0 \omega) \mathcal{E} + i \frac{\omega^2 \mu_0}{2k_z} \mathcal{P}_{nl} - \frac{\omega \mu_0}{2k_z} \mathcal{J}. \quad (10)$$

Это уравнение учитывает все порядки дисперсии. Данное уравнение является непараксиальным в том смысле, что точно описывает дифракцию при распространении, т.е. не делается предположения о малости отклонения k_z от $k(\omega)$. Однако для того, чтобы описывать распространение импульса с произвольной поляризацией, необходимо переходить к 3D+1-схеме, в которой добавляется еще одна размерность в перпендикулярном направлении. Для того, чтобы проводить расчеты в случае с жесткой фокусировкой ($k_{\perp} \sim k(\omega)$), необходимо также модифицировать начальные условия, учитывая тот факт, что волновой фронт волны не является плоским.

2.2. Нелинейная поляризация среды

В кубичной среде, обладающей центром инверсии, $\chi^{(2)} = 0$, поскольку в противном случае при операции инверсии получим, что $\vec{P}(\vec{r}) = \vec{P}(-\vec{r}) = -\vec{P}(\vec{r})$, т.е. $\vec{P}(\vec{r}) = 0$. Поэтому самый сильный вклад в нелинейную поляризацию даст тензор четвертого ранга $\chi^{(3)}$. Будем

считать, что тензор имеет временную зависимость типа дельта-функции $\delta(t)$, т.е. не обладает «релаксационными» свойствами. Такой особенностью обладает электронный отклик, поскольку масса электрона достаточно мала. Кроме того, в случае линейной поляризации поля нелинейная поляризация будет определяться только главной составляющей тензора $\chi^{(3)}$. Тогда уравнение (5) переписывается в следующем виде:

$$P_{нл}(t, r, z) = \varepsilon_0 \chi^{(3)} E^3(t, r, z) = \varepsilon_0 \chi^{(3)} \left(\frac{1}{2} \mathcal{E} + \text{к.с.} \right)^3 = \frac{\varepsilon_0 \chi^{(3)}}{8} \left(\mathcal{E}^3 + 3|\mathcal{E}|^2 \mathcal{E} \right) + \text{к.с.} \quad (11)$$

Следовательно,

$$\mathcal{P}_{нл}(t, r, z) = \frac{\varepsilon_0 \chi^{(3)}}{4} \left(\mathcal{E}^3 + 3|\mathcal{E}|^2 \mathcal{E} \right). \quad (12)$$

Первый член в уравнении (12) обеспечивает генерацию нечетных гармоник. Действительно, если поле представляет собой монохроматическую волну $\mathcal{E} = Ae^{-i\omega_0 t}$, то нелинейная поляризация будет иметь компоненту на утроенной частоте: $\mathcal{E}^3 = A^3 e^{-3i\omega_0 t}$. Поляризация на частоте $3\omega_0$ создает поле на частоте $3\omega_0$, которое при сложении с волнами на частоте ω_0 создает поляризацию на частоте $5\omega_0$ и $7\omega_0$: $(Ae^{-i\omega_0 t} + Be^{-3i\omega_0 t})^3 = 3A^2 B e^{-5i\omega_0 t} + 3AB^2 e^{-7i\omega_0 t} + \dots$. Таким же образом создается поляризация на более высоких частотах.

Второй член в уравнении (12) представляет собой поляризацию на частоте ω_0 . Он обеспечивает изменение вещественной части показателя преломления и обуславливает фазовую самомодуляцию. В литературе этот эффект также называют нелинейным эффектом Керра [35]. На практике этот эффект описывают как нелинейную добавку к показателю преломления $n = n_0 + n_2 I$, где n_0 – линейный показатель преломления, n_2 – нелинейный показатель преломления, $I(t, r, z) = \frac{1}{2} c n_0 \varepsilon_0 |\mathcal{E}(t, r, z)|^2$ – интенсивность излучения. Считая нелинейную добавку малой, можно приближенно найти вектор электрической индукции $\mathcal{D} = n_0^2 \varepsilon_0 \mathcal{E} + \mathcal{P}_{нл}$, $\mathcal{D} = (n_0 + n_2 I)^2 \varepsilon_0 \mathcal{E} \approx n_0^2 \varepsilon_0 \mathcal{E} + 2n_0 n_2 I \varepsilon_0 \mathcal{E}$. Поэтому керровская нелинейность определяется через интенсивность излучения следующим образом:

$$\mathcal{P}_{нл} = c n_0^2 n_2 \varepsilon_0^2 |\mathcal{E}|^2 \mathcal{E}. \quad (13)$$

Сравнивая это выражение со вторым членом в уравнении (12), можно выразить нелинейную восприимчивость 3-го порядка через нелинейный показатель преломления:

$$\chi^{(3)} = \frac{4}{3} c n_0^2 n_2 \varepsilon_0. \quad (14)$$

Подставим это выражение в уравнение (12) и получим конечное выражение для нелинейной поляризации:

$$\mathcal{P}_{nl}(t, r, z) = cn_0^2 n_2 \varepsilon_0^2 \left(\frac{1}{3} \mathcal{E}^3 + |\mathcal{E}|^2 \mathcal{E} \right). \quad (15)$$

Электронный отклик считается почти мгновенным, поэтому нелинейная восприимчивость имеет поведение во времени, похожее на дельта-функцию. Но в среде возможно также возбуждение внешним полем колебательных и вращательных степеней свободы атомов и молекул. Такой релаксационный, или задержанный, отклик называется комбинационным, или рамановским. Любые малые колебания в первом приближении можно считать гармоническими, поэтому рамановскую нелинейность можно описать уравнением гармонического осциллятора:

$$\frac{\partial^2 Q}{\partial t^2} + 2\Gamma \frac{\partial Q}{\partial t} + (\omega_R^2 + \Gamma^2) Q = (\omega_R^2 + \Gamma^2) |\mathcal{E}|^2, \quad (16)$$

где $Q(t)$ – обобщенная координата, ω_R – собственная частота колебаний, Γ – показатель затухания.

Используя граничные условия $\frac{\partial Q}{\partial t}(-\infty) = 0$, $Q(-\infty) = 0$, получим решение уравнения (16):

$$Q(t) = \int_{-\infty}^t \frac{\omega_R^2 + \Gamma^2}{\omega_R} e^{-\Gamma(t-t')} \sin \omega_R (t-t') |\mathcal{E}(t')|^2 dt'. \quad (17)$$

Относительный вклад рамановской составляющей в суммарную нелинейность определяется параметром θ . Тогда суммарная нелинейность, с учетом генерации гармоник, керровской и рамановской составляющих, будет равна:

$$\mathcal{P}_{nl}(t, r, z) = cn_0^2 n_2 \varepsilon_0^2 \left(\frac{1}{3} \mathcal{E}^3 + (1-\theta) |\mathcal{E}|^2 \mathcal{E} + \theta \mathcal{E} \int_{-\infty}^t \mathcal{R}(t-t') |\mathcal{E}(t')|^2 dt' \right), \quad (18)$$

где функция $\mathcal{R}(t) = \frac{\omega_R^2 + \Gamma^2}{\omega_R} e^{-\Gamma t} \sin \omega_R t$ называется функцией отклика.

Стоит отметить, что если длительность импульса меньше времени отклика рамановской нелинейности $\frac{1}{\Gamma}$, то только электронная («мгновенная») составляющая вносит вклад в суммарную нелинейность.

2.3. Многофотонная и туннельная ионизация

Воздействие электрического поля на среду приводит с определенной вероятностью к частичной ионизации вещества, т.е. переносу электрона из связанного состояния (валентной зоны) в свободное состояние (зону проводимости). Газовые среды имеют потенциал ионизации порядка 14-30 эВ. Полупроводники имеют запрещенную зону порядка 0,1-4 эВ, а диэлектрики – 4-12 эВ. При этом энергия кванта с длиной волны 1 мкм составляет 1,2 эВ, что сравнимо с или меньше ширины запрещенной зоны классических полупроводников (*Si*, *ZnO*, *FeZnSe*, *CdTe* и др.) и диэлектриков (*SiO₂*, *CaF₂*, *YAG* и др.), используемых в лазерной технике, и в несколько раз меньше потенциала ионизации газовых сред. Поэтому вероятность многофотонной ионизации (преодоление электроном потенциального барьера за счет энергии нескольких фотонов) и туннельной ионизации – основных механизмов ионизации среды – довольно низка. Благодаря высокой интенсивности лазерного излучения становятся возможными эти процессы. Вероятность таких процесса была исследована Келдышем [148], затем Никишовым и Ритусом [149], а также Переломовым, Поповым и Терентьевым [150, 151] и Аммосовым, Делоне и Крайновым [152].

Для одиночного атома скорость ионизации (вероятность ионизации в единицу времени), усредненная по периоду лазерного поля, с уровня энергии с квантовыми числами $\{l, m\}$ дается следующим выражением:

$$W = \frac{U_{ion}}{\hbar} |C_{kl}|^2 \left(\frac{6}{\pi} \right)^{1/2} \frac{(2l+1)(l+|m|)!}{2^{|m|} |m|!(l-|m|)!} \left(\frac{|\mathcal{E}|}{2\mathcal{E}_0} \sqrt{1+\gamma^2} \right)^{|m|+3/2} A_m(\omega, \gamma) \exp\left(-\frac{2\mathcal{E}_0}{3|\mathcal{E}|} g(\gamma) \right). \quad (19)$$

Здесь

$$A_m(\omega, \gamma) = \frac{4}{\sqrt{3\pi}} \frac{1}{|m|!} \frac{\gamma^2}{1+\gamma^2} \sum_{n \geq K} e^{-\alpha(\gamma)(n-K)} D_m \left(\sqrt{\frac{2\gamma}{\sqrt{1+\gamma^2}}} (n-N) \right),$$

$$D_m(x) = e^{-x^2} \int_0^x e^{t^2} (x^2 - t^2)^{|m|} dt,$$

$$\alpha(\gamma) = 2 \operatorname{arcsinh}(\gamma) - \frac{2\gamma}{\sqrt{1+\gamma^2}},$$

$$g(\gamma) = \frac{3}{2\gamma} \left(\left(1 + \frac{1}{2\gamma^2} \right) \operatorname{arcsinh}(\gamma) - \frac{\sqrt{1+\gamma^2}}{2\gamma} \right), \quad (20)$$

$$C_{kl}^2 = \frac{2^{2n^*-2}}{n^*(n^*+l)!(n^*-l-1)!},$$

$$n^* = Z \sqrt{\frac{me^4}{2\hbar^2 U_{ion}}},$$

$$\gamma = \omega \frac{\sqrt{2mU_{ion}}}{e|\mathcal{E}|},$$

где m, e – масса и заряд электрона, U_{ion} – потенциал ионизации атома, Z – заряд атомного или ионного остова, ω – частота лазерного поля. Величина $|\mathcal{E}|/\mathcal{E}_0$ равна отношению амплитуды лазерного поля \mathcal{E} и характерного поля $\mathcal{E}_0 = \frac{\sqrt{m}}{\hbar e} (2U_{ion})^{3/2}$. Величина $N = \frac{U_{ion}}{\hbar\omega} \left(1 + \frac{1}{2\gamma^2}\right)$ является минимальным числом фотонов, необходимых для преодоления ионизационного барьера, и называется порядком многофотонности [148]. Параметр γ , называемый параметром Келдыша, определяет режим фотоионизации (многофотонный или туннельный).

Для кристаллических сред для случая параболического закона дисперсии валентной зоны и зоны проводимости выражение для скорости фотоионизации немного изменяется [148]:

$$W = \frac{2\omega}{9\pi} \left(\frac{\sqrt{1+\gamma^2}}{\gamma} \frac{m\omega}{\hbar} \right)^{3/2} Q(\omega, \gamma) \exp\left(-\pi N \frac{K(\gamma_1) - E(\gamma_1)}{E(\gamma_2)}\right). \quad (21)$$

Здесь

$$Q(\omega, \gamma) = \sqrt{\frac{\pi}{2K(\gamma_2)}} \sum_{n=0}^{\infty} \exp\left(-\pi n \frac{K(\gamma_1) - E(\gamma_1)}{E(\gamma_2)}\right) \cdot \Phi\left(\pi \sqrt{\frac{2N + n - 2\tilde{E}_g / (\hbar\omega)}{2E(\gamma_2)K(\gamma_2)}}\right),$$

$$\tilde{E}_g = E_g \frac{2}{\pi\gamma_1} E(\gamma_2),$$

$$\Phi(x) = e^{-x^2} \int_0^x e^{t^2} dt,$$

$$K(x) = \int_0^{\pi/2} \frac{d\varphi}{\sqrt{1-x^2 \sin^2 \varphi}}, \quad (22)$$

$$E(x) = \int_0^{\pi/2} d\varphi \sqrt{1-x^2 \sin^2 \varphi},$$

$$\gamma_1 = \frac{\gamma}{\sqrt{1+\gamma^2}},$$

$$\gamma_2 = \frac{1}{\sqrt{1+\gamma^2}},$$

где E_g – ширина запрещенной зоны, \tilde{E}_g – эффективная ширина запрещенной зоны, $m = \frac{m_e m_h}{m_e + m_h}$ – приведенная масса электрона и дырки, m_e, m_h – масса электрона и дырки, N – порядок многофотонности, $\Phi(x)$ – интеграл Доусона, $K(x)$ и $E(x)$ – полные нормальные эллиптические интегралы Лежандра 1-го и 2-го рода соответственно.

Формулы (19), (21) описывают как многофотонную, так и туннельную ионизацию, параметр γ показывает, какой канал ионизации преобладает. Когда $\gamma \ll 1$, т.е. при сильных полях либо низких частотах преобладает туннельная ионизация. В другом предельном случае $\gamma \gg 1$, т.е. при слабых полях либо высоких частотах преобладает многофотонная ионизация. К примеру, для излучения хром-форстеритового фемтосекундного лазера ($\lambda = 1240$ нм), распространяющегося в кристалле CaF_2 ($E_g = 12$ эВ), при интенсивности $I \approx 30$ МВт/см² параметр многофотонности $\gamma = 1000$ (режим многофотонной ионизации). Пограничный случай $\gamma = 1$, требующий учета как туннельного, так и многофотонного каналов ионизации, реализуется при интенсивности $I \approx 30$ ТВт/см².

Стоит указать на особенности теории Келдыша. Во-первых, предполагается, что излучение является плоской монохроматической волной. В большинстве случаев интенсивность основной частоты больше интенсивности всего остального спектра как минимум на 2-3 порядка, однако при использовании двухцветного лазерного излучения приведенные скорости фотоионизации становятся неприменимыми. Во-вторых, теория Келдыша допускает ионизацию лишь по одному каналу многофотонности. Другими словами, если ширина запрещенной зоны 2 эВ, а энергия кванта 1.5 эВ, то многофотонная ионизация будет исключительно двухфотонной. В реальности же работает несколько каналов одновременно. Также важно отметить, что ширина запрещенной зоны в модели Келдыша не является постоянной величиной, а изменяется на величину пондеромоторной энергии электрона в поле. В-третьих, вероятность ионизации определяется интенсивностью излучения, которая равна усредненной по периоду плотности мощности излучения. Поэтому формула Келдыша способна описывать лишь ионизацию среды при прохождении через нее импульсов с большим числом циклов поля.

2.4. Плазменная дефокусировка и концентрация свободных носителей заряда

Обозначим за ρ плотность электронной плазмы (объемную плотность электронов, находящихся в свободном состоянии). Плотность тока \vec{j} определяется скоростью движения свободных электронов \vec{v} : $\vec{j} = -e\rho\vec{v}$. Эти величины подчиняются уравнениям гидродинамики [187]:

$$\begin{cases} \frac{\partial \rho}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (\rho \vec{v}) = S, \\ \frac{\partial \vec{v}}{\partial t} + (\vec{v} \cdot \vec{\nabla}) \vec{v} = -\frac{e}{m_e} (\vec{E} + \vec{v} \times \vec{B}) - \nu_e \vec{v} - \frac{S \vec{v}}{\rho}, \end{cases} \quad (23)$$

где S – мощность внешних плазменных источников, $\nu_e = \frac{1}{\tau_e}$ – частота электрон-ионных столкновений. Комбинируя уравнения в (23), получим:

$$\frac{\partial \vec{j}}{\partial t} + \nu_e \vec{j} = \frac{e^2 \rho}{m_e} \vec{E} - \frac{e}{m_e} \vec{j} \times \vec{B} + \frac{\vec{j}}{\rho e} (\vec{\nabla} \cdot \vec{j}) - (\vec{j} \cdot \vec{\nabla}) \vec{v}. \quad (24)$$

Тремя последними членами в правой части (24), согласно численным расчетам [188], можно пренебречь вплоть до интенсивностей 10^{15} Вт/см². Перейдем к комплексной амплитуде плотности тока \mathcal{J} :

$$(-i\omega + \nu_e) \mathcal{J} = \frac{e^2}{m_e} (\rho \mathcal{E}). \quad (25)$$

Выразим плотность тока:

$$\mathcal{J}(\omega, k_{\perp}, z) = \frac{e^2}{m_e (-i\omega + \nu_e)} (\rho \mathcal{E})(\omega, k_{\perp}, z). \quad (26)$$

После преобразований выражение (26) примет вид:

$$\mathcal{J} = \frac{e^2 (\nu_e + i\omega)}{m_e (\nu_e^2 + \omega^2)} (\rho \mathcal{E}) = \sigma(\omega) \frac{cn_0 \varepsilon_0}{2} (\rho \mathcal{E}) + i \frac{e^2 \omega}{m_e (\nu_e^2 + \omega^2)} (\rho \mathcal{E}). \quad (27)$$

где $\sigma(\omega) = \frac{2e^2 \nu_e}{cn_0 \varepsilon_0 m_e (\nu_e^2 + \omega^2)}$ – сечение обратного рассеяния, показывающее скорость

лавинной ионизации. Впервые это выражение было получено в работе Яблоновича и Бломбергена [189]. Вещественная часть плотности тока (27) обеспечивает поглощение излучения при лавинной ионизации, а мнимая часть – дефокусировку излучения в образовавшейся плазме.

Чтобы определить плотность тока, необходимо рассчитать значение плотности электронной плазмы $\rho(t, r, z)$.

Рассмотрим лавинную ионизацию. Обратимся к закону сохранения энергии в дифференциальной форме: $-\frac{\partial w}{\partial t} = \frac{1}{2} \text{Re}(\mathcal{J})\mathcal{E}^*$, где w – объемная плотность энергии электрического поля. Будем считать, что электрон при ионизации переходит с потолка валентной зоны на дно зоны проводимости, т.е. для этого процесса необходима энергия, равная ширине запрещенной зоны E_g , а также, что основной вклад в ионизацию вносит излучение на основной частоте ω_0 . Тогда изменение плотности энергии электрического поля прямо пропорционально изменению плотности электронной плазмы: $\frac{\partial w}{\partial t} = -E_g \frac{\partial \rho}{\partial t} \Big|_{aval}$.

Поэтому

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} \Big|_{aval} = \frac{\text{Re}(\mathcal{J})\mathcal{E}^*}{2E_g} = \frac{\sigma(\omega_0)}{E_g} \rho I. \quad (28)$$

Скорость роста плотности электронной плазмы за счет фотоионизации определяется вероятностью ионизации $W(I)$:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} \Big|_{phion} = W(I)(\rho_{at} - \rho), \quad (29)$$

где ρ_{at} – концентрация атомов.

Помимо процессов генерации свободных носителей заряда, происходит их рекомбинация, т.е. возвращение обратно в валентную зону и высвобождение энергии. Обычно в диэлектриках рекомбинация носителей снижает рост плотности плазмы пропорционально ρ в первой степени [190]:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} \Big|_{recomb} = -\frac{\rho}{\tau_r}, \quad (30)$$

а время рекомбинации τ_r обычно составляет 50-150 фс.

Объединим все рассмотренные выше процессы динамики численности носителей и запишем итоговое выражение для скорости изменения плотности электронной плазмы:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = W(I)(\rho_{at} - \rho) + \frac{\sigma(\omega_0)}{E_g} \rho I - \frac{\rho}{\tau_r}. \quad (31)$$

Процессы фотоионизации являются источниками свободных электронов и одновременно способствуют «перекачке» энергии от электромагнитного поля в среду. Потери энергии на фотоионизацию можно описывать плотностью тока \mathcal{J}_{phion} , который вычисляется с помощью закона сохранения электромагнитной энергии в дифференциальной форме:

$$\frac{1}{2} \mathcal{J}_{phion} \mathcal{E}^* = -\frac{\partial w}{\partial t} = E_g W(I) (\rho_{at} - \rho). \quad (32)$$

Из этого выражения можно получить плотность тока, ассоциированную с поглощением вследствие фотоионизации:

$$\mathcal{J}_{phion} = cn_0 \varepsilon_0 E_g \frac{W(I)}{I} (\rho_{at} - \rho) \mathcal{E}. \quad (33)$$

2.5. Метод численного решения

Подставим выражения нелинейной поляризации \mathcal{P}_{nl} (15) и плотности тока \mathcal{J} (27) и (33) в уравнение URPE (10). Добавим к нему уравнение, описывающее динамику плотности электронной плазмы ρ (31). Тогда получим согласованную систему из двух уравнений, описывающих распространение лазерного импульса через среду:

$$\begin{cases} \frac{\partial \mathcal{E}(\omega, k_{\perp}, z)}{\partial z} = i(k_z - k'_0 \omega) \mathcal{E} + i \frac{\omega^2 n_0^2 n_2 \varepsilon_0}{2k_z c} \left(\frac{1}{3} \mathcal{E}^3 + |\mathcal{E}|^2 \mathcal{E} \right) - \frac{\omega \mu_0}{2k_z} \frac{e^2}{m_e (v_e - i\omega)} (\rho \mathcal{E}) - \frac{\omega \mu_0}{2k_z} \mathcal{J}_{phion}, \\ \frac{\partial \rho(t, r, z)}{\partial t} = W(I) (\rho_{at} - \rho) + \frac{\sigma(\omega_0)}{E_g} \rho I - \frac{\rho}{\tau_r}, \end{cases} \quad (34)$$

Перейдем от размерных физических величин к безразмерным. Координату z будем выражать в единицах дифракционной длины $z_d = k_0 r_0^2$ (где k_0 – волновой вектор на основной частоте, r_0 – радиус пучка), координату r в r_0 , время в длительностях лазерного импульса t_p ,

мощность в $P_{unit} = \frac{\lambda^2}{4\pi n_0 n_2}$, интенсивность в $I_{unit} = \frac{\lambda^2}{4\pi^2 n_0 n_2 r_0^2}$, электрическое поле в

$\mathcal{E}_{unit} = \sqrt{\frac{\lambda^2}{2\pi^2 \varepsilon_0 c n_0^2 n_2 r_0^2}}$, плотность электронной плазмы в ρ_{at} . Система уравнений (34) в

безразмерных единицах примет следующий вид:

$$\begin{cases} \frac{\partial \mathcal{E}(\omega, k_{\perp}, z)}{\partial z} = i\alpha(\omega) \mathcal{E} + F(\mathcal{E}, \omega, k_{\perp}, z), \\ F(\mathcal{E}, \omega, k_{\perp}, z) = i\beta(\omega) FFT \left(\frac{1}{3} \mathcal{E}^3 + |\mathcal{E}|^2 \mathcal{E} \right) - \gamma(\omega) FFT(\rho \mathcal{E}) - \delta(\omega) FFT \left(\frac{W(I)}{|\mathcal{E}|^2} (1 - \rho) \mathcal{E} \right), \\ \frac{\partial \rho(t, r, z)}{\partial t} = \epsilon(I) (1 - \rho) + \zeta \rho |\mathcal{E}|^2 - \eta \rho, \end{cases} \quad (35)$$

где $\alpha(\omega) = (k_z - k_0' \omega) z_d$, $\beta(\omega) = \frac{k_0}{k_z} \left(\frac{\omega}{\omega_0} \right)^2$, $\gamma(\omega) = \frac{\omega \mu_0 e^2 z_d \rho_{at}}{2k_z m_e (v_e - i\omega)}$, $\delta(\omega) = \frac{k_0}{2k_z} \frac{\omega}{\omega_0} \frac{z_d E_g \rho_{at}}{I_{unit}}$
, $\epsilon(I) = W(I) t_p$, $\zeta = \frac{\sigma(\omega_0) I_{unit} t_p}{E_g}$, $\eta = \frac{t_p}{\tau_r}$, $FFT(\cdot)$ обозначает Фурье-преобразование.

Для решения 1-го уравнения системы (35) применяется явно-неявная разностная схема и метод итераций. Конечная разность, записанная для точки $z_{n+1/2}$, позволяет на s -той итерации определить поле в точке z_{n+1} :

$$\mathcal{E}_{n+1}^{(s)} \left(1 - \frac{i\alpha(\omega)\Delta z}{2} \right) = \mathcal{E}_n \left(1 + \frac{i\alpha(\omega)\Delta z}{2} \right) + \frac{1}{2} F(\mathcal{E}_n, \omega, k_{\perp}, z) + \frac{1}{2} F(\mathcal{E}_{n+1}^{(s-1)}, \omega, k_{\perp}, z). \quad (36)$$

Как правило, достаточно выполнить 3-4 итерации, чтобы получить заданную точность δ_{LE} , которая определяется из условия малости отклонения решения на очередной итерации от решения на предыдущей итерации:

$$\frac{\int_0^{\infty} |\mathcal{E}_{n+1}^{(s)} - \mathcal{E}_{n+1}^{(s-1)}|^2 d\omega}{\int_0^{\infty} |\mathcal{E}_{n+1}^{(s)}|^2 d\omega} \leq \delta_{LE}. \quad (37)$$

Последнее уравнение системы (35) может быть сведено к задаче Коши. Действительно, обозначив через $a(t) = \zeta |\mathcal{E}(t)|^2 - \epsilon(I(t)) - \eta$, а через $b(t) = \epsilon(I(t))$, получим задачу Коши:

$$\begin{cases} \frac{\partial \rho}{\partial t} = a(t)\rho(t) + b(t), \\ \rho(-\infty) = \rho_0, \end{cases} \quad (38)$$

где ρ_0 – плотность носителей заряда в материале в отсутствие воздействия электрического поля. Решение однородного уравнения равно $\rho_{одн}(t) = \rho_0 \exp\left(\int_{-\infty}^t a(t') dt'\right)$.

Решение неоднородного уравнения, согласно методу Лагранжа, может быть найдено путем вариации по времени постоянной $\rho_0 \rightarrow \rho_0(t)$. Проведя соответствующие подстановки и дифференцирование, получим решение задачи Коши:

$$\rho(t) = \rho_0 \exp\left(\int_{-\infty}^t a(t') dt'\right) + \int_{-\infty}^t b(t') \exp\left(\int_{t'}^t a(t'') dt''\right) dt'. \quad (39)$$

Численно будем решать это уравнение методом конечных разностей. Оставим только члены, пропорциональные Δt . Получим:

$$\rho(t + \Delta t) = \exp\left(\frac{a(t) + a(t + \Delta t)}{2} \Delta t\right) \left(\rho(t) + \frac{\Delta t}{2} b(t) \right) + \frac{\Delta t}{2} b(t + \Delta t). \quad (40)$$

В качестве начального условия, если это не оговорено отдельно, будем выбирать гауссов импульс длительностью t_p (полная ширина на полувысоте равна $FWHM = 2\sqrt{\ln 2}t_p$) и радиусом r_0 (полная ширина на полувысоте равна $FWHM = 2\sqrt{\ln 2}r_0$) на частоте ω_0 . Для того, чтобы «завести» излучение в среду и существенно повысить интенсивность излучения, необходимо сфокусировать пучок. Для этого смоделируем собирающую тонкую линзу с фокусным расстоянием f , помещенную на расстоянии z_l перед передней гранью кристалла. Поле непосредственно после линзы имеет следующий вид [191]:

$$\mathcal{E}(t, r, 0) = \mathcal{E}_0 \frac{r_0}{r_0'} \exp\left(-\frac{t^2}{2t_p^2} - \frac{r^2}{2r_0'^2} + i\frac{k_0 r^2}{2R} - i \arctan \frac{z_l}{z_d(1-z_l/f)} - i\omega_0 t\right), \quad (41)$$

где $z_d = k_0 r_0^2$ – дифракционная длина, $r_0' = \sqrt{\left(1 - \frac{z_l}{f}\right)^2 + \left(\frac{z_l}{z_d}\right)^2}$ – радиус пучка на входе в

среду, $R = \frac{\left(1 - \frac{z_l}{f}\right)^2 + \left(\frac{z_l}{z_d}\right)^2}{\frac{z_l}{z_d} - \frac{z_d}{f} \left(1 - \frac{z_l}{f}\right)}$ – радиус кривизны волнового фронта. Дополнительная фаза

$\arctan \frac{z_l}{z_d(1-z_l/f)}$ в формуле выше называется геометрической фазой (фазой Гойю).

Определим безразмерную постоянную \mathcal{E}_0 , которая определяется энергией импульса E_p .

Если импульс имеет гауссову форму, то его энергия равна:

$$E_p = \int_{-\infty}^{+\infty} dt \int_0^{+\infty} 2\pi r dr I_{unit} |\mathcal{E}(r, t)|^2 = (\pi)^{3/2} t_p r_0^2 I_{unit} \mathcal{E}_0^2 = \sqrt{\pi} t_p P_{unit} \mathcal{E}_0^2. \quad (42)$$

Тогда безразмерная постоянная \mathcal{E}_0 должна иметь значение

$$\mathcal{E}_0 = \sqrt{\frac{E_p}{\sqrt{\pi} t_p P_{unit}}}. \quad (43)$$

Приведенные выше методы решения системы (35) и начальное поле (41) позволяют сформулировать общую схему решения системы уравнений в модели URPE:

- 1) Расчет значений функций $\alpha(\omega)$, $\beta(\omega)$, $\gamma(\omega)$, $\delta(\omega)$, $\epsilon(I)$ и постоянных $\zeta, \eta, \mathcal{E}_0$, запись их в память компьютерной программы;
- 2) Задание начальных условий $\mathcal{E}(t, r, 0)$ согласно (41);
- 3) Преобразование Фурье $\mathcal{E}(\omega, k_{\perp}, 0) = FFT(\mathcal{E}(t, r, 0))$;
- 4) Расчет плотности электронной плазмы $\rho(t, r, z)$ согласно (40);

- 5) Расчет нелинейной поляризации $\left(\frac{1}{3}\mathcal{E}^3 + |\mathcal{E}|^2 \mathcal{E}\right)(t, r, z)$;
- 6) Расчет плотности тока поглощения вследствие фотоионизации \mathcal{J}_{phion} согласно (33);
- 7) Преобразование Фурье $FFT(\rho\mathcal{E})$, $FFT\left(\frac{1}{3}\mathcal{E}^3 + |\mathcal{E}|^2 \mathcal{E}\right)$ и $FFT\left(\frac{W(I)}{|\mathcal{E}|^2}(1-\rho)\mathcal{E}\right)$;
- 8) Расчет величины $F(\mathcal{E}, \omega, k_{\perp}, z)$ согласно (35);
- 9) Расчет поля на новом шаге $\mathcal{E}(\omega, k_{\perp}, z + \Delta z)$ согласно (36);
- 10) Обратное преобразование Фурье $\mathcal{E}(t, r, z + \Delta z) = FFT^{-1}(\mathcal{E}(\omega, k_{\perp}, z + \Delta z))$;
- 11) Повторение пунктов 4-10 до тех пор, пока лазерное излучение не распространится на всю заданную длину.

Величина шага Δz должна выбираться, с одной стороны, достаточно малой, чтобы уменьшить ошибки, связанные с численным решением системы уравнений, а с другой стороны, достаточно большой, чтобы провести вычисления с минимальной затратой временных ресурсов. Рассчитаем относительное изменение флюенса лазерного поля (плотности энергии по сечению пучка) на n -м шаге:

$$\delta_n = \frac{\int_0^{\infty} |\mathcal{E}_{n+1} - \mathcal{E}_n|^2 d\omega}{\int_0^{\infty} |\mathcal{E}_n|^2 d\omega}. \quad (44)$$

Применяя идею по выбору шага из работы [192], будем выбирать шаг так, чтобы относительное изменение δ_n оставалось в пределах от $\delta_{\max}/2$ до δ_{\max} . Если $\delta_n > 2\delta_{\max}$, то \mathcal{E}_{n+1} следует отбросить, шаг Δz уменьшить в 2 раза и повторить процедуру расчета \mathcal{E}_{n+1} . Если $\delta_{\max} < \delta_n < 2\delta_{\max}$, то шаг Δz следует уменьшить в $\sqrt[3]{2}$ раз. Если $\delta_{\max}/2 < \delta_n < \delta_{\max}$, то шаг Δz следует увеличить в $\sqrt[3]{2}$ раз.

2.6. Основные выводы по главе 2

Уравнение однонаправленного распространения лазерного импульса URPE вместе с моделью динамики свободных носителей заряда образуют самосогласованную систему дифференциальных уравнений, позволяющую описать как возбуждение среды, так и трансформацию свойств лазерного и генерируемого когерентного излучения при распространении в среде. Уравнение URPE позволяет учесть такие факторы как фокусировка излучения, произвольный закон материальной дисперсии среды, пространственные и

временные нелинейные эффекты (самофокусировка, частотная модуляция, компрессия и удлинение импульса и др.). Результаты расчетов используются для исследования физических механизмов трансформации лазерного излучения при его распространении в среде, генерации когерентного излучения (гармоник, суперконтинуума, терагерцового излучения) и поиска способов усиления этого излучения и управление его свойствами, исследования механизмов воздействия лазерного излучения на среду.

Стоит отметить возможность выполнения параллельных вычислений по модели URPE, что позволяет в несколько раз сократить время проведения расчетов.

Безусловно, существуют и ограничения данной модели распространения. Так, жесткая внешняя фокусировка, при которой существенной становится продольная компонента поля, требует учета векторного характера лазерного поля и расчета всех его пространственных компонент [193]. Высокие интенсивности лазерного излучения, при которых формируется плотность свободных носителей заряда, в несколько раз превосходящая критическую плотность (когда лазерная частота сравнивается с плазменной частотой), требуют учета распространения отраженной волны [194].

В последующих главах представлены оригинальные результаты, касающиеся отдельно отклика среды на лазерное поле и отдельно генерации когерентного излучения при распространении излучения в среде, рассчитанного по модели URPE.

Глава 3. Возбуждение свободных носителей заряда в конденсированных средах фемтосекундным лазерным полем

Воздействие лазерного излучения на вещество состоит в возбуждении электронной подсистемы, которое представляет собой совокупность нескольких процессов: динамика связанных носителей заряда под действием лазерного поля, перенос носителей заряда из связанного состояния в свободное (фотоионизация), динамика свободных носителей заряда под действием лазерного поля, процессы излучательного и безызлучательного переноса энергии от свободных носителей заряда к связанным (рекомбинация, ударная ионизация).

Существует множество теоретических подходов к описанию происходящих процессов возбуждения электронной подсистемы. Среди них выделяются квантово-механические подходы, позволяющие рассчитать волновую функцию атома или кристаллической решетки, а также получить аналитические выражения для измеряемых в экспериментах величин: теория Келдыша фотоионизации переменным электрическим полем [148], впоследствии развитая в работах Никишова и Ритуса [149], а также Переломова, Попова и Терентьева [150, 151]; теория туннельного механизма фотоионизации Аммосова, Делоне и Крайнова [152]; метод квазиэнергетических состояний [195], теория функционала плотности [155], неадиабатический подход [156], непертурбативная теория отклика атома на лазерное поле [59]; теория ударной ионизации [161]. Также большое развитие и популярность приобрели классические модели динамики свободных носителей заряда: теория нагрева носителей в лазерном поле вследствие их столкновений (обратное тормозное излучение); кинетический подход, основанный на уравнении переноса Больцмана [10, 163] и его упрощении – уравнении Фоккера-Планка [164]; скоростные модели динамики свободных носителей заряда: односкоростная [165], многоскоростная [11, 166] и ее модификации [168, 196].

В последующих разделах дается детальное описание некоторых методов расчета динамики свободных носителей заряда и их преимуществ и недостатков по сравнению с другими методами, а также предлагается усовершенствование существующих методов, которое со значительно более высокой степенью точности применимо при использовании лазерных источников ближнего и среднего инфракрасного диапазонов.

3.1. Существующие методы описания динамики свободных носителей заряда в газовых и конденсированных средах

Наиболее корректными с физической точки зрения методами описания динамики свободных носителей заряда в газовых и плазменных средах являются статистические модели,

основанные на уравнении Больцмана [10, 163], либо его упрощении – уравнении Фоккера-Планка [164]. Согласно последнему, плотность распределения свободных носителей $f(\varepsilon, t)$ изменяется по следующему закону:

$$\frac{\partial f}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial \varepsilon} \left(\frac{1}{3} \sigma(\varepsilon) I(t) f(\varepsilon, t) \right) + \frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial \varepsilon^2} \left(\frac{4}{3} \varepsilon \sigma(\varepsilon) I(t) f(\varepsilon, t) \right) + S_\varepsilon(\varepsilon, t), \quad (45)$$

где $S_\varepsilon(\varepsilon, t)$ – плотность генерации (или рекомбинации) носителей, $I(t)$ – интенсивность лазерного поля, ε – кинетическая энергия носителей, $\sigma(\varepsilon) = \frac{e^2}{m_e} \frac{v_c(\varepsilon)}{(v_c^2(\varepsilon) + \omega_0^2)}$ – проводимость носителей, e – заряд электрона, m_e – эффективная масса носителей, $v_c(\varepsilon)$ – частота столкновений носителей, ω_0 – частота лазерного поля.

Правая часть уравнения (45) – первые два слагаемых в разложении уравнения Больцмана по полиномам Лежандра. Первое слагаемое описывает нагрев свободных носителей под действием лазерного поля, второе слагаемое – дисперсию плотности распределения носителей по энергии. Второе слагаемое может быть истолковано как диффузия носителей по энергетическому спектру при наличии локальных градиентов в плотности распределения свободных носителей, возникающих, например, при фотоионизации или ударной ионизации.

Несмотря на высокую точность расчетов по уравнению Фоккера-Планка, этот подход может быть достаточно сложным для применения в задаче распространения лазерного излучения, поскольку расчеты становятся длительными и требуют больших вычислительных ресурсов. Тем не менее, доступность в настоящее время мощных вычислительных систем и технологий параллельных вычислений все же позволяет использовать этот подход в некоторых исследовательских задачах.

Альтернативой статистическим моделям служат скоростные модели динамики свободных носителей заряда, в которых вместо плотности распределения носителей по энергии $f(\varepsilon, t)$ прослеживается динамика населенностей уровней энергии. В самой простой односкоростной модели (SRE – Single Rate Equation) используется всего один уровень энергии, поэтому плотность распределения носителей по энергии $f(\varepsilon, t)$ заменяется полной

плотностью носителей $\rho(t) = \int_0^\infty f(\varepsilon, t) d\varepsilon$:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = W(I) + \alpha(I) \rho - \frac{\rho}{\tau_r}, \quad (46)$$

где ρ_{at} – плотность атомов, $W(I)$ – скорость фотоионизации, α – скорость лавинной ионизации, I – интенсивность лазера, τ_r – время рекомбинации.

Модель SRE предлагает феноменологическое описание динамики населенности зоны проводимости (концентрации свободных носителей заряда) под действием лазерного поля. В рамках этой модели предполагается, что каждый электрон, возникающий в зоне проводимости за счет фотоионизации, участвует в акте ударной ионизации. В результате происходит лавинообразный, экспоненциальный рост концентрации свободных носителей $\rho(t)$ с коэффициентом:

$$\alpha(I) = \frac{E_p}{\hbar\omega_0} \cdot \frac{v_{SRE}\omega_0^2}{v_{SRE}^2 + \omega_0^2}, \quad (47)$$

где $E_p = \frac{e^2 I}{2\epsilon_0 c n_0 m_r \omega_0^2}$ – средняя энергия осцилляций свободных носителей в лазерном поле (пондеромоторная энергия) [163], E_g – ширина запрещенной зоны, ϵ_0 – диэлектрическая проницаемость вакуума, n_0 – линейный показатель преломления, $m_r = \frac{m_e m_h}{m_e + m_h}$ – приведенная масса носителей, m_e – масса электрона, m_h – масса дырки. Нагрев свободных носителей заряда лазерным полем происходит посредством механизма обратного тормозного излучения с феноменологической частотой столкновений v_{SRE} , установленной по экспериментальным данным. Скорость фотоионизации $W(I)$ традиционно определяют по формуле Келдыша [148] с уточнением предэкспоненциального множителя по формуле Переломова-Попова-Терентьева [150, 151]. Время рекомбинации τ_r также является феноменологическим параметром, определяемым по экспериментальным данным.

Односкоростная модель SRE успешно применяется для описания динамики носителей, индуцированной действием лазерных импульсов длительностью несколько сотен фемтосекунд, когда в одном импульсе укладывается несколько десятков осцилляций лазерного поля [115, 178, 184, 197]. Также накладываются ограничения на степень ионизации среды – она должна быть незначительной. Иначе необходимо дополнительно учитывать насыщение ионизации при истощении валентной зоны, например, путем добавления множителя $(\rho_{at} - \rho)$ перед скоростью фотоионизации.

В модели SRE предполагается, что все носители в зоне проводимости участвуют в ударной ионизации, поэтому практически сразу после возникновения носителей в зоне проводимости их концентрация нарастает экспоненциально $\sim e^{\alpha(I)t}$. Однако для того, чтобы

участвовать в актах ударной ионизации, электрон должен набрать энергию, равную критической, получаемой из совместного учета законов сохранения энергии и импульса [10]:

$$\varepsilon_{cr} = \left(1 + \frac{m_r}{m_h}\right) (E_g + E_p). \quad (48)$$

Здесь первый множитель обусловлен выполнением закона сохранения импульса [161], а второй – увеличением запрещенной зоны за счет осцилляций носителей в лазерном поле. Поэтому развитие лавинообразного, экспоненциального нарастания концентрации свободных носителей в зоне проводимости должно быть отложено по времени. Учет этого факта особенно важен при использовании ультракоротких (несколько десятков фемтосекунд) лазерных импульсах. Метод многоскоростных уравнений (MRE – Multiple Rate Equation) как раз направлен на учет этой особенности.

Плотность распределения свободных носителей $f(\varepsilon, t)$, полученная при использовании кинетического подхода (уравнение Больцмана) [10], имела максимумы при значениях энергии, отделенных друг от друга энергией фотона лазерного излучения. Поэтому в работе [11] было предложено рассматривать зону проводимости как конечный набор энергетических уровней, отделенных друг от друга энергией фотона:

$$\varepsilon_i = \varepsilon_0 + i\hbar\omega_0. \quad (49)$$

Количество уровней выбирается таким образом, чтобы только самый высокий уровень имел энергию выше критического значения:

$$N = \left\lceil \frac{\varepsilon_{cr} - \varepsilon_0}{\hbar\omega_0} \right\rceil + 1, \quad (50)$$

где $\lceil \cdot \rceil$ обозначает целую часть числа. Полная населенность зоны проводимости

$\rho(t) = \int_0^\infty f(\varepsilon, t) d\varepsilon$ разделяется на населенности отдельных уровней энергии:

$$\rho_i(t) = \int_{\varepsilon_i - \hbar\omega_0/2}^{\varepsilon_i + \hbar\omega_0/2} f(\varepsilon, t) d\varepsilon. \quad (51)$$

Динамика населенностей уровней энергии описывается системой обыкновенных дифференциальных уравнений (рекомбинация носителей может быть учтена путем добавления слагаемых ρ_i/τ_r):

$$\begin{aligned}
\frac{\partial \rho_0}{\partial t} &= (\rho_{at} - \rho) W_{FI}(I) - \alpha_{1ph}(I) \rho_0 + 2\alpha_{imp} \rho_N, \\
\frac{\partial \rho_i}{\partial t} &= \alpha_{1ph}(I) (\rho_{i-1} - \rho_i), \quad i = \overline{1, N-1}, \\
\frac{\partial \rho_N}{\partial t} &= \alpha_{1ph}(I) \rho_{N-1} - \alpha_{imp} \rho_N, \\
\rho &= \sum_{i=0}^N \rho_i.
\end{aligned} \tag{52}$$

В результате ионизации полем заселяется только нулевой уровень с энергией ε_0 . Лазерный нагрев состоит в переходе электронов на более высокий уровень со скоростью $\alpha_{1ph}(I) = \beta_{1ph} I$, где β_{1ph} – некоторая постоянная величина, а ударная ионизация происходит только с верхнего уровня со скоростью α_{imp} , что приводит к удвоению концентрации электронов на нулевом уровне энергии.

Стоит отметить, что пондеромоторная энергия пропорциональна интенсивности лазерного излучения и потому изменяется в процессе действия лазерного импульса. По этой причине нулевой уровень имеет, строго говоря, ненулевую энергию. Но в подавляющем большинстве случаев модель MRE применялась для расчета динамики свободных носителей под действием лазерного излучения видимого диапазона длин волн или для случая слабого поля и широкозонных диэлектриков [166, 168], так что пондеромоторная энергия была в несколько раз меньше ширины запрещенной зоны. Поэтому энергию нулевого уровня можно считать малой и положить равной нулю: $\varepsilon_0 \approx 0$.

Ключевой особенностью модели MRE является условие $\alpha_{imp} \gg \alpha_{1ph}$, т.е. как только электрон «доходит» до верхнего уровня, он практически сразу участвует в акте ударной ионизации. Поэтому результаты, демонстрируемые этой моделью, практически полностью определяются скоростью фотоионизации $W_{FI}(I)$ и скоростью однофотонного поглощения α_{1ph} , определяемой феноменологически.

Экспоненциальный рост концентрации свободных носителей получается также и в модели MRE, только при временах, значительно больших характерного времени

$$t_{MRE} = \frac{1}{(\sqrt[N]{2} - 1) \alpha_{1ph}} :$$

$$\rho(t) \sim e^{(\sqrt[N]{2} - 1) \alpha_{1ph} t}, \quad t \gg t_{MRE}. \tag{53}$$

Таким образом, модель MRE позволяет учитывать необходимость набора энергии свободными носителями для участия в ударной ионизации, вследствие чего точнее описывает динамику свободных носителей на первых десятках фемтосекунд воздействия лазерного

излучения на среду. Тем не менее, в этой модели также используется несколько упрощений. Во-первых, скорость однофотонного поглощения и скорость ударной ионизации принимаются постоянными величинами, не зависящими от номера уровня (от энергии носителей). Во-вторых, набор энергетических уровней ограничен сверху критической энергией, необходимой для ударной ионизации. При тех длинах волн лазерного излучения, когда скорость ударной ионизации значительно превышает скорость однофотонного поглощения $\alpha_{imp} \gg \alpha_{1ph}$, а также в случае неширокой запрещенной зоны и слабых электрических полей, так что α_{1ph} изменяется незначительно в пределах рассчитываемых энергий носителей (от 0 до ε_{cr}), указанные упрощения оказываются справедливыми. Однако, как будет показано ниже, существуют режимы взаимодействия лазерного излучения со средой (например, средний ИК-диапазон лазерного излучения), при которых эти предположения оказываются неприменимыми.

3.2. Уточненная модель динамики свободных носителей заряда EMRE

Модель MRE предполагает, что скорость ударной ионизации значительно превышает скорость однофотонного поглощения $\alpha_{imp} \gg \alpha_{1ph}$, так что как только электрон «добрался» до верхнего уровня энергии, его нагрев лазерным полем прекращается, и он участвует в акте ударной ионизации. При этом скорость однофотонного поглощения определяется только интенсивностью лазерного излучения: $\alpha_{1ph}(I) = \beta_{1ph}I$, а β_{1ph} и скорость ударной ионизации α_{imp} являются феноменологическими константами, которые необходимо определить по экспериментальным данным.

В подавляющем большинстве случаев модель MRE применялась для расчета динамики свободных носителей под действием лазерного излучения видимого диапазона длин волн или для случая слабого поля и широкозонных диэлектриков [166, 168], так что пондеромоторная энергия была в несколько раз меньше ширины запрещенной зоны. Переход в ближний и средний ИК-диапазон длин волн приводит к увеличению пондеромоторной энергии, поскольку она пропорциональна квадрату длины волны лазерного излучения:

$$E_p = \frac{e^2 I}{2\varepsilon_0 c n_0 m_r \omega_0^2}.$$

Этот факт приводит к нескольким следствиям, которые следует принять во внимание. Во-первых, в процессе воздействия лазерного импульса изменяется значение критической энергии и изменяется число уровней энергии в зоне проводимости, которые необходимо учитывать. Во-вторых, начальная кинетическая энергия, которую имеют электроны после перехода в зону проводимости, отлична от нуля и, более того, может быть сравнима с шириной

запрещенной зоны в узкозонных полупроводниках. Наконец, в модели MRE подразумевается, что скорость ударной ионизации значительно больше скорости однофотонного поглощения $\alpha_{imp} \gg \alpha_{1ph}$, поэтому не учитывается нагрев электронов выше критического уровня энергии. Но скорость однофотонного поглощения α_{1ph} увеличивается с увеличением длины волны [198], тогда как скорость ударной ионизации α_{imp} можно рассматривать как независящую от длины волны [161]. Поэтому в ближнем и среднем ИК диапазоне скорость однофотонного поглощения может превышать скорость ударной ионизации $\alpha_{1ph} > \alpha_{imp}$, и для предотвращения накопления электронов на верхнем (критическом) уровне важно учитывать дополнительные уровни выше критического. Все эти аспекты, несомненно, свидетельствуют о необходимости модификации стандартной модели MRE.

Уточненная модель динамики свободных носителей заряда (EMRE – Extended Multiple Rate Equation) принимает во внимание возможность нагрева носителей лазерным полем до энергий выше критической, а также позволяет аналитически рассчитывать скорости однофотонного поглощения и скорости ударной ионизации, тем самым избавившись от их феноменологического определения.

Предлагаемая уточненная модель EMRE основана на стандартной модели MRE (52), обсуждавшейся в предыдущих разделах. Схема энергетических уровней и процессов, составляющих динамику носителей в модели EMRE, представлена на Рисунке 3.1. Энергетические уровни разделены энергией фотона, а нулевой уровень имеет нулевую энергию:

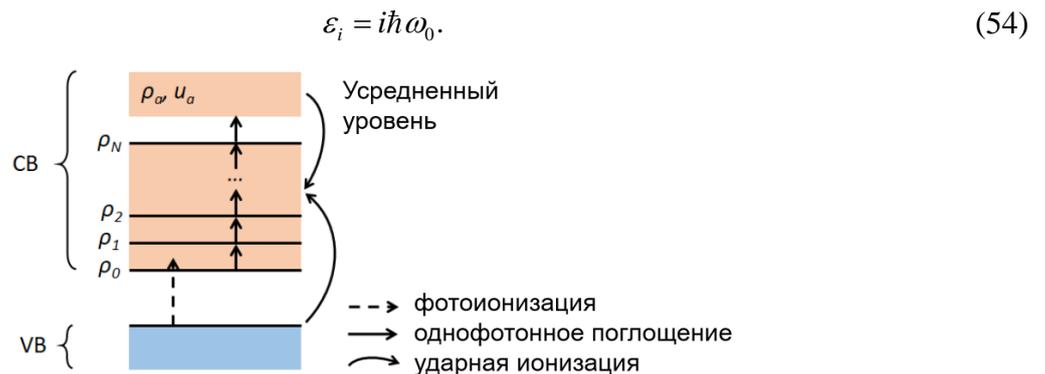


Рисунок 3.1. Схема энергетических уровней и процессов, составляющих динамику носителей в модели EMRE.

Особенности модели EMRE следующие:

1) Процесс фотоионизации переносит электроны из валентной зоны в зону проводимости на уровень с ненулевой энергией:

$$\varepsilon_{phion} = \left(K_{phion} \hbar \omega_0 - E_g \right) \frac{m_r}{m_e}, \quad (55)$$

где K_{phion} – минимальное количество фотонов, необходимое для фотоионизации. Поскольку эта энергия не всегда кратна энергии фотона, разделим порцию электронов, поступивших в зону проводимости между двумя уровнями K и $K+1$:

$$\begin{cases} \left(\frac{\partial \rho_K}{\partial t} \right)_{phion} = \left(1 - \frac{\rho}{\rho_{at}} \right) W_{phion}(I) \left(1 - \frac{\varepsilon_{phion}}{\hbar \omega_0} + K \right) \\ \left(\frac{\partial \rho_{K+1}}{\partial t} \right)_{phion} = \left(1 - \frac{\rho}{\rho_{at}} \right) W_{phion}(I) \left(\frac{\varepsilon_{phion}}{\hbar \omega_0} - K \right) \end{cases}, K = \left[\frac{\varepsilon_{phion}}{\hbar \omega_0} \right]. \quad (56)$$

2) Скорость однофотонного поглощения α_{1ph} определяется частотой столкновений электронов ν_c , приводящих к сбивке фазы при осцилляциях в лазерном поле и набору энергии. В моделях SRE и MRE эта частота столкновений принимается постоянной и обычно равной $0,3-1 \text{ фс}^{-1}$ [11, 115, 165, 167, 178, 184]. Тем не менее, она зависит от средней кинетической энергии электронов E_k и меняется во время прохождения лазерного импульса. Примем во внимание электрон-электронные столкновения с частотой ν_{ee} и столкновения электронов с нейтральными частицами с частотой ν_{en} :

$$\alpha_{1ph}(\varepsilon_i) = \frac{E_p}{\hbar \omega_0} \cdot \frac{\nu_c(\varepsilon_i)}{1 + (\nu_c / \omega_0)^2}, \nu_c = \nu_{ee} + \nu_{en}. \quad (57)$$

В терминах классического электронного газа частота электрон-электронных столкновений равна [198]:

$$\nu_{ee}(\varepsilon_i) = \rho \langle \nu \rangle \sigma_{ee} = \frac{32 \varepsilon_0}{3 e^2} \sqrt{\frac{2 \pi \varepsilon_i}{3 m_e}} E_k. \quad (58)$$

Здесь $\langle \nu \rangle$ обозначает среднюю скорость электронов, обусловленную тепловым движением, σ_{ee} – сечение электрон-электронных столкновений, ε_0 – диэлектрическая проницаемость вакуума, а E_k – средняя кинетическая энергия электронов (по всем уровням энергии в зоне проводимости).

Частота электрон-нейтральных столкновений определяется следующим образом, $\sigma_{en} \approx 3 \cdot 10^{-16} \text{ см}^2$:

$$\nu_{en}(\varepsilon_i) = (\rho_{at} - \rho) \langle \nu \rangle \sigma_{en} \approx \sqrt{\frac{16 \varepsilon_i}{3 \pi m_e}} (\rho_{at} - \rho) \sigma_{en}. \quad (59)$$

Численные оценки частот столкновений электронов дают следующие значения:

$$v_{ee} \approx 0,36 \cdot E_k [\text{эВ}] \sqrt{\varepsilon_i [\text{эВ}]} \phi c^{-1}, v_{en} \approx 0,82 \cdot \left(1 - \frac{\rho}{\rho_a}\right) \sqrt{\varepsilon_i [\text{эВ}]} \phi c^{-1}. \quad (60)$$

3) Для учета возможного нагрева электронов выше критической энергии, что соответствует случаю $\alpha_{1ph} > \alpha_{imp}$, и предотвращения накопления электронов на верхнем уровне ε_N вводится усредненный энергетический уровень, характеризующийся населенностью ρ_a и плотностью энергии u_a . Такой подход дает простой способ учета уровней энергии выше критического, отслеживая только две переменные вместо нескольких (населенности каждого уровня энергии выше критического). Когда электрон с верхнего дискретного уровня энергии ε_N за счет однофотонного поглощения переходит на усредненный уровень, населенность усредненного уровня ρ_a и его плотность энергии u_a повышаются:

$$\begin{aligned} \left(\frac{\partial \rho_a}{\partial t}\right)_{1ph} &= \alpha_{1ph}(I, \varepsilon_N) \rho_N, \\ \left(\frac{\partial u_a}{\partial t}\right)_{1ph} &= \alpha_{1ph}(I, \varepsilon_N) \rho_N (N+1) \hbar \omega_0 + \alpha_{1ph}(I, \varepsilon_N) \rho_a \hbar \omega_0. \end{aligned} \quad (61)$$

Первое слагаемое в правой части второго равенства описывает увеличение энергии за счет переходов электронов с верхнего дискретного уровня энергии ε_N на усредненный уровень, а второе слагаемое – за счет нагрева лазерным полем электронов, находящихся внутри усредненного уровня.

Второй множитель для критической энергии (48) обусловлен эффективным увеличением запрещенной зоны за счет осцилляций носителей заряда в лазерном поле. Эта эффективная запрещенная зона была введена Келдышем для описания скорости полевой ионизации, усредненной по периоду поля [148]. Но учет законов сохранения энергии и импульса при ударной ионизации требует ненулевые значения начальной и конечной энергии перехода электрона из валентной зоны в зону проводимости. Например, когда массы электрона и дырки равны между собой $m_e = m_h$, начальная и конечная энергии равны $E_g/6$ [199]. Другими словами, формула для критической энергии (48) должна быть свободна от пондеромоторной энергии. Поэтому число дискретных уровней энергии становится равным:

$$N = \left[\left(1 + \frac{m_r}{m_h}\right) \frac{E_g}{\hbar \omega_0} \right]. \quad (62)$$

До этого уровня включительно происходит только однофотонное поглощение и рекомбинация (при необходимости ее учитывать), а ударная ионизация происходит исключительно с усредненного уровня (Рисунок 3.1).

4) Ударная ионизация происходит только с усредненного уровня, средняя энергия которого $\varepsilon_a = u_a / \rho_a$ всегда остается больше критической $\varepsilon_{cr} = \left(1 + \frac{m_r}{m_h}\right) E_g$. Скорость ударной ионизации α_{imp} можно оценить по формуле Келдыша [161], основанной на квантово-механических расчетах, согласно которой скорость ударной ионизации пропорциональна квадрату превышения кинетической энергии ε_a над критической (или пороговой) энергией ε_{cr} :

$$\alpha_{imp}(\varepsilon_a) = P \cdot \left(\frac{\varepsilon_a}{\varepsilon_{cr}} - 1\right)^2, \varepsilon_a \geq \varepsilon_{cr}. \quad (63)$$

Числовой коэффициент P можно оценить следующим образом [162]:

$$P = \frac{m_e / m_0 + \mu}{n_0^4 (1 + \mu)(1 + 2\mu)^{1/2}} \cdot \frac{m_e}{\hbar^3} \left(\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0}\right)^2. \quad (64)$$

Здесь m_0 – масса покоя электрона, m_e и m_h – эффективные массы электрона и дырки соответственно, $\mu = \frac{m_e}{m_h}$, n_0 – показатель преломления материала. Типичные значения этого коэффициента для полупроводников (например, для кремния $m_e = 0,28m_0$, $m_h = 0,41m_0$, $n_0 = 3,4$) составляют около $P \approx 0,115 \text{ фс}^{-1}$.

Полезно сравнить α_{1ph} и α_{imp} для электрона с критической энергией (т.е. электрона на верхнем уровне в модели MRE) при лазерном излучении среднего инфракрасного диапазона. Для простоты предположим, что $\varepsilon_{cr} \approx 1,4E_g \approx 1,4\text{эВ}$ (соответствует кремнию) и пиковая интенсивность лазерного излучения $I = 10^{11} \text{ Вт/см}^2$. Используя численные оценки скорости однофотонного поглощения (60) при длине волны лазерного излучения 1,24 мкм получаем $\alpha_{1ph} \approx 0,025 \text{ фс}^{-1}$, а при длине волны 4,5 мкм – $\alpha_{1ph} \approx 1,2 \text{ фс}^{-1}$, тогда как даже для $\varepsilon_a = 1,5\varepsilon_{cr}$ скорость ударной ионизации равна $\alpha_{imp} \approx 0,029 \text{ фс}^{-1}$. Значит, если длина волны лазерного излучения лежит в области ближнего и тем более среднего ИК-диапазона, то выполняется условие $\alpha_{1ph} > \alpha_{imp}$, и необходимо учитывать нагрев электронов выше критического значения энергии.

Из законов сохранения энергии и импульса следует, что два электрона, возникающие в результате ударной ионизации, должны приобрести энергию ε_{imp} :

$$\varepsilon_{imp} = \frac{\varepsilon_a}{\left(\frac{1}{m_h} + \frac{1}{m_r}\right)^2} \left(\frac{1}{m_h} \pm \sqrt{\frac{1}{2m_e m_r} - \frac{E_g}{2m_e \varepsilon_a} \left(\frac{1}{m_h} + \frac{1}{m_r}\right)} \right)^2. \quad (65)$$

Если эта энергия обоих электронов не кратна энергии фотона и меньше или равна энергии верхнего дискретного уровня $\varepsilon_{imp} < \varepsilon_N$, то она делится между двумя дискретными уровнями K и $K+1$:

$$\left\{ \begin{array}{l} \left(\frac{\partial \rho_a}{\partial t}\right)_{imp} = -\alpha_{imp}(\varepsilon_a) \rho_a, \\ \left(\frac{\partial u_a}{\partial t}\right)_{imp} = -\alpha_{imp}(\varepsilon_a) u_a, \\ \left(\frac{\partial \rho_K}{\partial t}\right)_{imp} = 2\alpha_{imp}(\varepsilon_a) \rho_a \left(1 - \frac{\varepsilon_{imp}}{\hbar \omega_0} + K\right), \\ \left(\frac{\partial \rho_{K+1}}{\partial t}\right)_{imp} = 2\alpha_{imp}(\varepsilon_a) \rho_a \left(\frac{\varepsilon_{imp}}{\hbar \omega_0} - K\right) \end{array} \right., K = \left[\frac{\varepsilon_{imp}}{\hbar \omega_0} \right]. \quad (66)$$

Если $\varepsilon_{imp} > \varepsilon_N$, то оба электрона принадлежат усреднённому уровню, и его плотность энергии уменьшается:

$$\left\{ \begin{array}{l} \left(\frac{\partial \rho_a}{\partial t}\right)_{imp} = \alpha_{imp}(\varepsilon_a) \rho_a, \\ \left(\frac{\partial u_a}{\partial t}\right)_{imp} = -\alpha_{imp}(\varepsilon_a) u_a \left(1 - \frac{2\varepsilon_{imp}}{\varepsilon_a}\right). \end{array} \right. \quad (67)$$

Полную населенность зоны проводимости ρ и среднюю кинетическую энергию электронов E_k , необходимую для расчета скорости однофотонного поглощения, определяется как сумма по всем дискретным уровням энергии, а также усредненному уровню:

$$\begin{aligned} \rho &= \sum_{i=0}^N \rho_i + \rho_a, \\ E_k &= \frac{\sum_{i=0}^N i \hbar \omega_0 \rho_i + u_a}{\rho}. \end{aligned} \quad (68)$$

Таким образом, основными отличительными особенностями предложенной модели EMRE, являются: 1) введение дополнительного усредненного уровня энергии выше критического, так что свободные заряды могут приобретать кинетическую энергию, превышающую критическое значение, необходимое для участия в ударной ионизации; 2) учет зависимости скорости однофотонного поглощения и скорости ударной ионизации от энергии свободных носителей, что позволяет избавиться от необходимости определения

феноменологических параметров, управляющих динамикой свободных носителей. Благодаря этим особенностям, модель EMRE способна показывать результаты, согласующиеся с экспериментальными данными, в частности, по возбуждению кристаллических тел лазерным излучением среднего инфракрасного диапазона, что будет показано далее.

3.3. Применение модели EMRE для расчета объемной плотности энергии, переданной конденсированной среде

Лазерное излучение необратимо передает часть своей энергии среде, в которой распространяется, несколькими способами. Во-первых, посредством фотоионизации энергия нескольких фотонов затрачивается на преодоление связанным электроном потенциального барьера и переходом в свободное состояние. Во-вторых, свободные электроны за счет столкновений с различными частицами и квазичастицами сбивают фазу своих осцилляций в лазерном поле, в результате чего постепенно увеличивают свою кинетическую энергию (механизм обратного тормозного излучения). Оба этих канала передачи лазерной энергии в среду позволяют рассчитать скорость роста объемной плотности энергии $W_{abs}(t)$, запасенной в материале:

$$W_{abs}(t) = K_{phion} \hbar \omega_0 \left(\frac{\partial \rho}{\partial t} \right)_{phion} + \hbar \omega_0 \left(\frac{\partial \rho}{\partial t} \right)_{1ph}, \quad (69)$$

где K_{phion} – порядок многофотонности процесса фотоионизации (минимальное число фотонов, необходимых для одного акта фотоионизации), $\hbar \omega_0$ – энергия фотона лазерного поля, $\frac{\partial \rho}{\partial t}$ – скорость изменения концентрации свободных носителей.

Конечно же только часть лазерной энергии, переданной материалу в какой-то его области, остается в этой же области и накапливается. Часть этой энергии излучается в виде когерентного излучения, а часть рассеивается за счет теплопроводности. Первой частью энергии будем пренебрегать в данном разделе. Вторая часть энергии также может быть удалена из рассмотрения при использовании фемтосекундных лазерных импульсов, поскольку процессы тепловой диффузии происходят на временах порядка пико- и наносекунд [165], т.е. на намного более крупных временных масштабах по сравнению с теми, которые будут исследоваться в этом разделе. Поэтому можно считать, что вся переданная энергия $W_{abs}(t)$ будет запасаться в материале локально, создавая к концу действия лазерного излучения объемную плотность энергии (DED – Deposited Energy Density):

$$DED = \int_{-\infty}^{\infty} W_{abs}(t) dt. \quad (70)$$

Если эта величина окажется выше порога плавления кристаллической решетки материала DED_{melt} , который является табличной величиной, то будем считать, что кристаллическая решетка материала расплавляется, и происходит микромодификация объема материала.

Ниже представлены результаты численных расчетов по модели EMRE динамики свободных носителей заряда, индуцированных лазерным излучением длительностью 200 фс (на полувысоте) и длиной волны, принадлежащей ближнему и среднему ИК-диапазону (1,25 – 4,5 мкм). Для исследований выбрано две среды: первая с узкой запрещенной зоной – кремний (Si), а вторая с широкой запрещенной зоной – флюорит (CaF_2). Такой выбор кристаллических сред дает возможность проанализировать с помощью модели EMRE динамику свободных носителей при различном соотношении времени, необходимого носителям для набора критической энергии, и длительности лазерного импульса (в среде с широкой запрещенной зоной электронам необходимо приобретать больше энергии в течение более длительного времени, чтобы внести свой вклад в ударную ионизацию). При этом расчеты, выполненные по усовершенствованной модели EMRE для различных длин волн лазерного излучения, полезно сравнить с результатами расчетов по традиционно используемой модели MRE и выявить ту область параметров лазерного излучения (интенсивность и длину волны), при которой необходимо применять усовершенствованную модель.

Для сравнения результатов этих двух моделей, их необходимо согласовать в том смысле, что MRE имеет феноменологические параметры $\alpha_{1ph} = \beta_{1ph} I$ и α_{imp} , которые необходимо задать. Используя выражение (47) для скорости однофотонного поглощения, получим зависимость коэффициента β_{1ph} от длины волны лазерного излучения:

$$\beta_{1ph} = \frac{e^2}{2\epsilon_0 c n_0 m_r \hbar \omega_0^3} \cdot \frac{v_c}{1 + (v_c / \omega_0)^2}, \quad (71)$$

где v_c – константа, заданная таким образом, чтобы динамика свободных носителей при низкой интенсивности (незначительном электронном возбуждении, населенность верхнего дискретного уровня исчезающе мала), демонстрируемая обеими моделями, была одинаковой для режима низкого электронного возбуждения, т.е. обе модели бы не отличались друг от друга.

Скорость ударной ионизации α_{imp} в модели MRE не является строго фиксированной, она просто должна быть значительно больше скорости однофотонного поглощения: $\alpha_{imp} \gg \alpha_{1ph}$.

Поэтому для оценки α_{imp} будем использовать аналитическое выражение (63), взятое для энергии $\varepsilon_i = \varepsilon_{cr} + \hbar\omega_0$. Заданные таким образом параметры ν_c и α_{imp} , а также параметры среды приведены в Таблице 1.

Таблица 1. Параметры сред, используемые для исследования динамики свободных носителей заряда в них.

Параметр	Кремний (<i>Si</i>)	Флюорит (<i>CaF₂</i>)
$\nu_c, \text{фс}^{-1}$	1,4	10,3
$\alpha_{imp}, \text{фс}^{-1}$	0,046	0,020
m_e, m_0	0,28 [200]	0,6 [201]
m_h, m_0	0,41 [200]	1,0 [201]
$E_g, \text{эВ}$	1,12 [200]	12,0 [201]
$\varepsilon_{cr}, \text{эВ}$	1,57	16,5
$\rho_{at}, \text{см}^{-3}$	$5,0 \cdot 10^{22}$	$5,6 \cdot 10^{22}$
$DED_{melt}, \text{Дж/см}^3$	$4,2 \cdot 10^3$	0,095

Уравнения, составляющие модель EMRE, представляют собой систему обыкновенных дифференциальных уравнений первого порядка (F_i, F_a, F_u – некоторые функции):

$$\begin{cases} \frac{\partial \rho_i}{\partial t} = F_i(\rho_0, \dots, \rho_N, \rho_a, \rho, E_k, I), \\ \frac{\partial \rho_a}{\partial t} = F_a(\rho_N, \rho_a, \rho, E_k, I), \\ \frac{\partial u_a}{\partial t} = F_u(\rho_N, \rho_a, \rho, u_a, E_k, I). \end{cases} \quad (72)$$

Система уравнений (72) может быть эффективно решена методом конечных разностей и метода последовательных приближений. Алгоритм решения этой системы уравнений следующий:

1) Вычисление значений функций F_i, F_a, F_u по уравнениям (52), (56), (61), (66), (67) с использованием данных, полученных в момент времени t .

2) Вычисление ρ_i, ρ_a, u_a в момент времени $t + \Delta t$ по уравнению (72).

3) Итеративное выполнение п. 1 и 2 алгоритма, пока очередные получаемые значения ρ_i, ρ_a, u_a не перестанут изменяться на заранее установленную относительную величину δ_{iter} . Как правило, достаточно, 3-4 итераций.

4) Вычисление полной населенности зоны проводимости ρ и средней кинетической энергии свободных носителей E_k в момент времени $t + \Delta t$ по уравнению (68).

5) Повторение п. 1-4 алгоритма, пока не будет пройден заранее установленный временной интервал $[0, t_{\max}]$.

Величина шага по времени Δt должна выбираться, с одной стороны, достаточно малой, чтобы уменьшить ошибки, связанные с численным решением системы уравнений, а с другой стороны, достаточно большой, чтобы провести вычисления с минимальной затратой временных ресурсов. Рассчитаем относительное изменение населенностей уровней энергии за временной шаг Δt и выберем максимальное значение:

$$\delta = \max_i \frac{|\rho_i(t + \Delta t) - \rho_i(t)|}{\rho_i(t)}. \quad (73)$$

Применяя идею по выбору шага из работы [192], будем выбирать шаг Δt так, чтобы относительное изменение δ оставалось в пределах от $\delta_{\max}/2$ до δ_{\max} . Если $\delta > 2\delta_{\max}$, то вычисленные значения в момент времени $t + \Delta t$ следует отбросить, шаг Δt уменьшить в 2 раза и повторить процедуру расчета. Если $\delta_{\max} < \delta < 2\delta_{\max}$, то шаг Δt следует уменьшить в $\sqrt[3]{2}$ раз. Если $\delta_{\max}/2 < \delta < \delta_{\max}$, то шаг Δt следует увеличить в $\sqrt[3]{2}$ раз.

Наконец, после численного решения системы уравнений (72) для оценки накопления материалом лазерной энергии на каждом временном шаге рассчитываются скорость поглощения лазерной энергии $W_{abs}(t)$ и плотность поглощенной энергии DED по уравнениям (69) и (70).

Рассмотрим материал с узкой запрещенной зоной – кремний. На Рисунке 3.2 изображена зависимость рассчитанной объемной плотности поглощенной энергии DED от флюенса F лазерного излучения в диапазоне от 0 до 0,1 Дж/см². Пунктирная горизонтальная линия указывает на объемную плотность энергии DED_{melt} , необходимую для плавления кристаллической решетки, т.е. микромодификации объема материала. Как следует из результатов исследований, при лазерных флюенсах менее 0,02 – 0,03 Дж/см² обе модели (MRE и EMRE) дают близкие значения DED , но с увеличением флюенса лазерного излучения разница между результатами становится более выраженной. DED , рассчитанная по усовершенствованной модели EMRE, достигает порогового значения при флюенсах, примерно равных $F_{melt} \approx 0,05$ Дж/см² и незначительно различающихся при изменении длины волны лазерного излучения в ближнем и среднем ИК-диапазонах.

Напротив, плотность поглощенной энергии DED , рассчитанная по обычной модели MRE, не достигает порога плавления даже при флюенсах лазерного излучения менее $0,1 \text{ Дж/см}^2$. Но, согласно многочисленным экспериментальным данным по объемной микромодификации кремния с использованием фемтосекундных лазерных импульсов с длиной волны $1,2-4,5 \text{ мкм}$ [180, 181, 182, 184, 186], повреждение объема материала должно происходить при интенсивностях лазерного излучения менее 10^{12} Вт/см^2 , т.е. при флюенсе $F < 0,1 \text{ Дж/см}^2$. При этом пороговые значения флюенсов лазерного излучения, варьируются в диапазоне от $0,005$ до $0,1 \text{ Дж/см}^2$ [184, 185, 202, 203]. Столь широкий диапазон возможных лазерных флюенсов обусловлен различными значениями длин волн лазерных систем, используемых в экспериментах, числовой апертуры и длительности лазерных импульсов, а также сложностью экспериментальной оценки флюенса лазерного излучения.

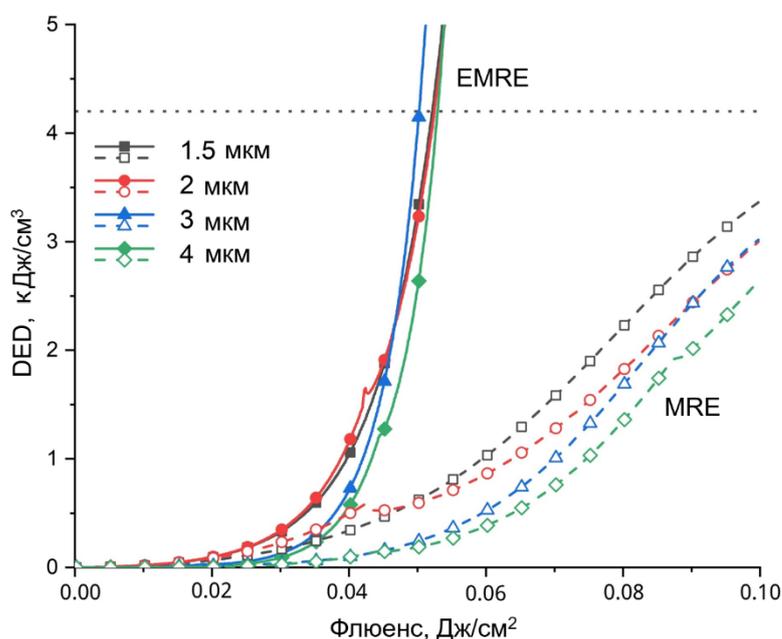


Рисунок 3.2. Объемная плотность поглощенной энергии DED в кремнии в зависимости от длины волны лазерного излучения, рассчитанная с использованием моделей EMRE (сплошные линии) и MRE (пунктирные линии). Горизонтальным пунктиром отмечен порог плавления кристаллической решетки кремния $4,2 \text{ кДж/см}^3$.

Тот факт, что пороговое значение флюенса, полученное с использованием модели EMRE, соответствует экспериментальному диапазону значений, прямо указывает на необходимость использования модели EMRE для корректного описания возбуждения материала лазерным излучением.

Рассчитаем максимальный флюенс лазерного излучения F_{\max} , при котором значения DED , получаемые с использованием моделей EMRE и MRE, заметно отличаются друг от

друга (на 10%), в зависимости от длины волны лазерного излучения. Из качественных соображений становится ясно, что эти отличия начнут проявляться, когда скорости однофотонного поглощения α_{1ph} и ударной ионизации α_{imp} будут одинаковыми для электронов, находящихся на верхнем дискретном уровне. Поскольку скорость однофотонного поглощения α_{1ph} увеличивается как с ростом флюенса лазерного излучения, так и с ростом длины волны:

$$\alpha_{1ph} = \frac{E_p}{\hbar\omega_0} \cdot \frac{v_c}{1+(v_c/\omega_0)^2} \sim F\lambda^3 \cdot \frac{v_c(I)}{1+(v_c(I)\lambda/2\pi c)^2},$$

а скорость ударной ионизации α_{imp} не зависит от флюенса и длины волны лазерного излучения, то, как правило, чем больше длина волны лазерного излучения, тем ниже максимальный флюенс F_{max} , при котором проявляются особенности модели EMRE.

Этот качественный вывод подтверждается результатами численного исследования (Рисунок 3.3). Зависимость F_{max} от длины волны лазерного излучения не является монотонной. Причину можно пояснить следующим образом. При увеличении флюенса лазерного излучения для определенной длины волны существует значение флюенса, при котором в середине лазерного импульса порядок многофотонности увеличивается на единицу (по сравнению с фронтами импульса), а вероятность фотоионизации и поглощения лазерной энергии снижается. Когда флюенс, при котором порядок многофотонности увеличивается на единицу, совпадает с флюенсом, при котором накапливается 10%-ное отклонение между моделями MRE и EMRE, то на зависимости F_{max} от длины волны лазерного излучения наблюдается максимум.

Тем не менее, максимальное значение флюенса, для которого проявляются особенности модели EMRE, в целом уменьшается с длиной волны. Как следует из Рисунка 3.3, F_{max} для длин волн ближнего ИК диапазона (3,5 – 4,5 мкм) составляет около 0,01 Дж/см², что соответствует пиковой интенсивности лазерного излучения 5·10¹⁰ Вт/см². Расчеты динамики свободных носителей заряда, индуцированных лазерным полем такой интенсивности, показывают, что плотность генерируемых свободных носителей не превышает 5·10¹⁸ см⁻³ (10⁻⁴ от плотности атомов). Это означает, что даже для слабого электронного возбуждения в Si в среднем ИК-диапазоне стандартная модель MRE становится неприменимой, и приходится использовать EMRE или другие модели (например, основанные на кинетических уравнениях [10, 163, 164]).

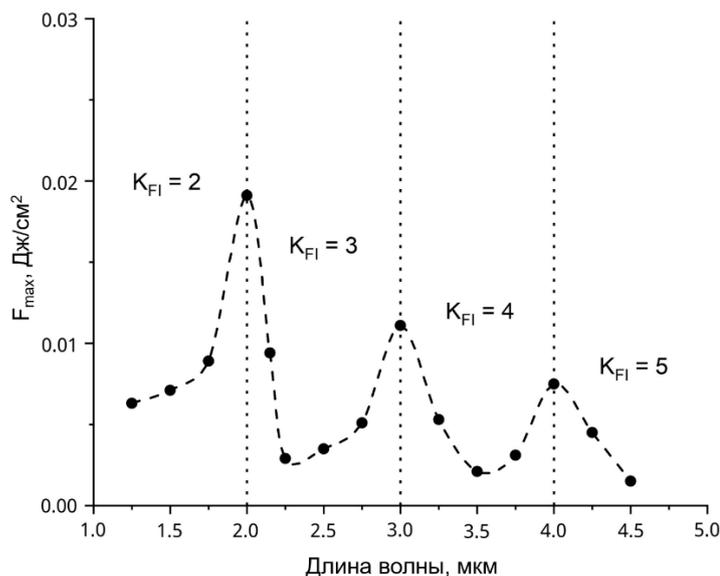


Рисунок 3.3. Максимальный флюенс лазерного излучения F_{\max} , при котором разница между DED, полученными с использованием моделей MRE и EMRE, составляет 10%.

Вертикальные пунктирные линии разграничивают диапазоны длин волн с разным порядком многофотонности процесса фотоионизации (на рисунке он отмечен как K_{FI}).

Причина различий в результатах моделей MRE и EMRE состоит в двух особенностях. Во-первых, в модели EMRE учитывается зависимость частоты столкновений от энергии электронов, в результате чего более энергичные электроны на более высоких уровнях в зоне проводимости приобретают дополнительный «импульс» к увеличению своей энергии за счет однофотонного поглощения. Во-вторых, в модели EMRE электроны могут набирать кинетическую энергию выше критического уровня, начиная с которого происходит ударная ионизация.

Эти особенности продемонстрированы на Рисунке 3.4а, где показано отношение населенности верхнего дискретного уровня ρ_N (в модели MRE) или населенности усредненного уровня ρ_a (в модели EMRE) и полной населенности зоны проводимости ρ_N . При флюенсе лазерного излучения 0,005 Дж/см², который ниже F_{\max} , это отношение не превышает 0,02, и обе модели демонстрируют примерно одинаковую скорость поглощения лазерной энергии W_{abs} (Рисунок 3.4б). Напротив, при флюенсе лазерного излучения 0,04 Дж/см², значительно превышающем F_{\max} , в модели MRE это отношение достигает 0,35. Тот факт, что 35% всех носителей в зоне проводимости накопились на верхнем дискретном уровне, указывает на необходимость учета переходов на вышележащие уровни энергии.

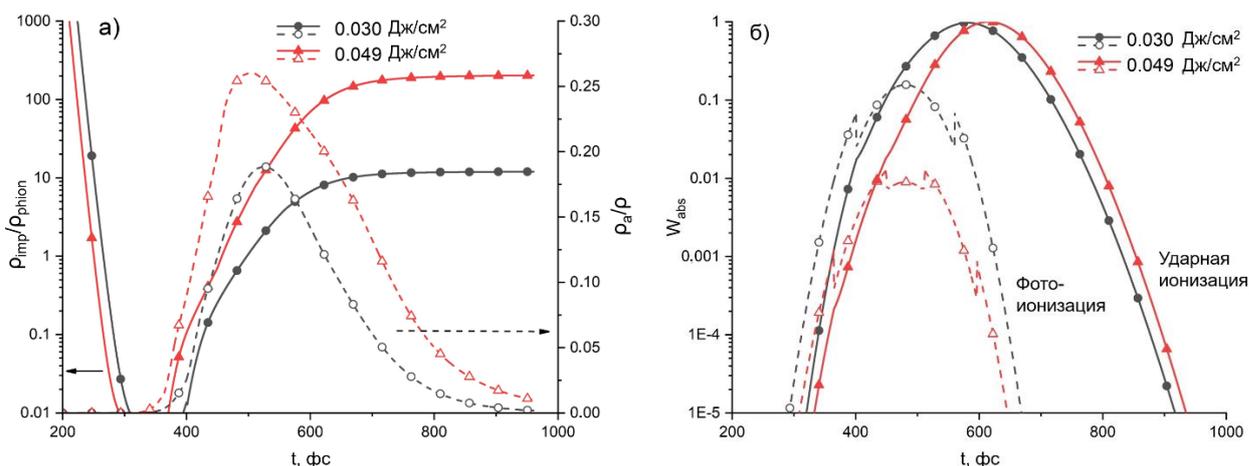


Рисунок 3.4. а) Отношение населенности верхнего дискретного уровня ρ_N (в модели MRE) или населенности усредненного уровня ρ_a (в модели EMRE) и полной населенности зоны проводимости ρ_N . б) Скорость поглощения лазерной энергии W_{abs} . Расчеты проведены для кремния и длины волны лазерного излучения 4 мкм. Черные линии (флюенс $F = 0,005$ Дж/см² < F_{max}) соответствуют случаю, когда модели EMRE и MRE дают схожие результаты, красные линии (флюенс $F = 0,04$ Дж/см² > F_{max}) соответствуют противоположному случаю. Центр лазерного импульса расположен на 480 фс.

Также при любом значении флюенса лазерного излучения (как больше, так и меньше F_{max}) модель EMRE показывает более высокую населенность усредненного уровня (по сравнению с населенностью верхнего дискретного уровня в модели MRE), область $t > 700$ фс на Рисунке 3.4а. Это обусловлено большей скоростью однофотонного поглощения на усредненном уровне, чем на дискретных уровнях, вследствие более высокой энергии электронов на нем. Также из-за этого скорость поглощения энергии W_{abs} в модели EMRE становится значительно выше на заднем фронте импульса. Отметим, что резкое уменьшение W_{abs} при 350 фс вызвано изменением порядка многофотонности с 4 до 5 (длина волны лазерного излучения 4 мкм).

Исследуем более подробно возбуждение Si лазерным излучением среднего ИК диапазона (4,5 мкм) и возможность микромодификации объема материала этим излучением. Как отмечалось выше, критерием микроструктурирования является превышение порогового значения плотности поглощенной энергии DED_{melt} , соответствующего плавлению кристаллической решетки [177, 184, 188], которое происходит при флюенсе лазерного излучения $F_{thr} \approx 0,049$ Дж/см² для длины волны 4,5 мкм (Рисунок 3.2).

На Рисунке 3.5 показано сравнение динамики населенности зоны проводимости ρ и скорости поглощения лазерной энергии W_{abs} (оба значения нормированы на максимальные значения) для подпорогового ($F = 0,030 \text{ Дж/см}^2$) и порогового ($F = 0,049 \text{ Дж/см}^2$) режимов. Увеличение населенности зоны проводимости происходит как за счет фотоионизации, так и за счет ударной ионизации. Как следует из Рисунка 3.5, по мере приближения флюенса лазерного излучения к пороговому значению, вклад ударной ионизации увеличивается, и около 26% всех электронов переходят на усредненный уровень ρ_a , тем самым усиливая ударную ионизацию. Стоит отметить, что общая населенность зоны проводимости достигает значения $3,95 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$ при пороговом флюенсе, которое в 2500 раз превышает критическую плотность свободных носителей заряда при длине волны 4,5 мкм. Сверхкритическая населенность зоны проводимости также ранее демонстрировала в некоторых работах по микромодификации объема кремния лазерным излучением среднего инфракрасного диапазона [132, 186, 188].

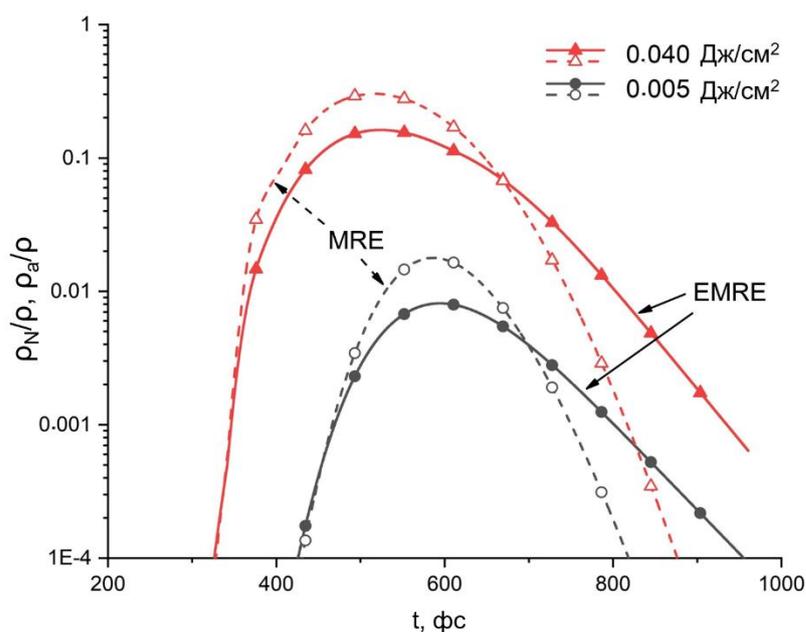


Рисунок 3.5. Сплошные кривые: соотношение населенности зоны проводимости ρ , обусловленной ударной ионизацией и фотоионизацией. Пунктирные линии: отношение населенности усредненного уровня и полной населенности зоны проводимости ρ_a/ρ . Расчеты проведены для кремния и длины волны лазерного излучения 4,5 мкм. Черные линии соответствуют подпороговому флюенсу лазерного излучения ($0,030 \text{ Дж/см}^2$), а красные линии – пороговому флюенсу ($0,049 \text{ Дж/см}^2$). Центр лазерного импульса расположен на 480 фс.

Лазерная энергия передается электронам посредством двух механизмов: фотоионизации и однофотонного поглощения (нагрева электронов лазерным полем). При приближении флюенса лазерного излучения к пороговому значению вклад однофотонного поглощения увеличивается (Рисунок 3.6). Отметим, что ступеньки на кривых, соответствующих фотоионизации, связаны с изменением порядка многофотонности процесса. Таким образом, микромодификация объема кремния под действием лазерного излучения среднего ИК-диапазона, обусловлена относительно высоким нагревом электронов в зоне проводимости и значительной степенью ионизации. Численные исследования показывают, что нагрев электронов выше критического уровня имеет решающее значение для микромодификации объема кремния.

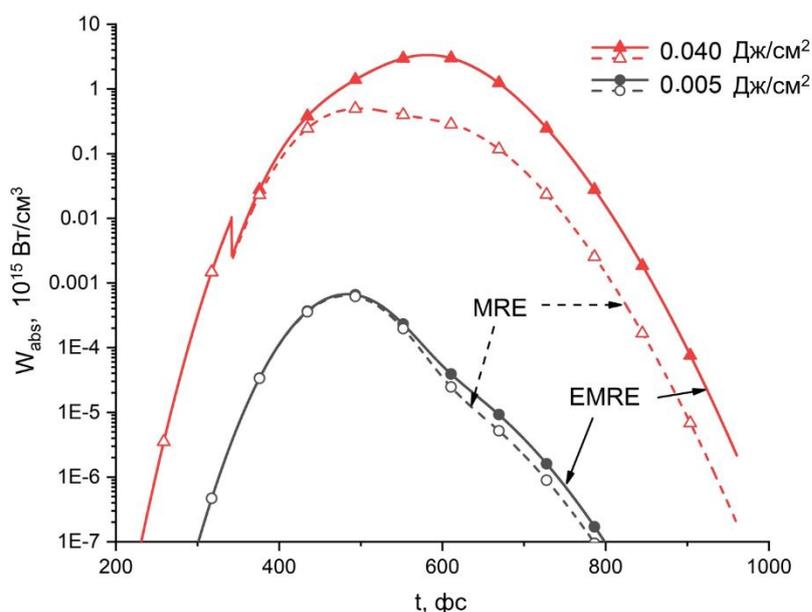


Рисунок 3.6. Вклад ударной ионизации (сплошные линии) и фотоионизации (штриховые линии) в скорость поглощения лазерной энергии W_{abs} . Расчеты проведены для кремния и длины волны лазерного излучения 4,5 мкм. Черные линии соответствуют подпороговому флюенсу лазерного излучения (0,030 Дж/см²), а красные линии – пороговому флюенсу (0,049 Дж/см²). Центр лазерного импульса расположен на 480 фс.

Рассмотрим теперь диэлектрическую среду, т.е. среду с широкой запрещенной зоной (флюорит CaF_2). Динамика населенности зоны проводимости в широкозонных материалах во многом зависит от частоты столкновений ν_c . Как следует из выражения (58), частота электрон-электронных столкновений в приближении слабого поля масштабируется со средней кинетической энергией электронов как $E_k^{3/2}$. Поскольку в модели MRE уровни энергии занимают диапазон энергий, сравнимый с запрещенной зоной (12 эВ для CaF_2), частота

электрон-электронных столкновений варьируется в широких пределах. Частота электрон-нейтральных столкновений больше частоты электрон-электронных столкновений только для кинетической энергии меньше $0,2E_g$ и может быть исключена из рассмотрения. Тот факт, что частота столкновений ν_c варьируется в широких пределах, делает затруднительным выбор какого-то одного значения, которое и будет использоваться в качестве феноменологического в модели MRE. В Таблице 1 он рассчитан по формуле (58) для кинетической энергии, равной половине ширины запрещенной зоны.

Как показывают численные исследования, даже при флюенсах лазерного излучения ниже порога пробоя $F < F_{thr}$, плотность поглощенной энергии DED , рассчитанная с использованием модели MRE, существенно отличается от результатов модели EMRE (Рисунок 3.7). Относительная разница составляет около 40% для $F = 0,5$ Дж/см². Исследования динамики населенности зоны проводимости показывает, что пробой в широкозонном материале вызван сильным электронным нагревом, а не образованием плотной электронной плазмы, поскольку концентрация свободных носителей заряда даже при F_{thr} составляет всего $5,5 \cdot 10^{-7}$ от концентрации атомов.

Исследование динамики свободных носителей заряда $F = F_{thr}$ представлено на Рисунке 3.8. Скорости поглощения лазерной энергии W_{abs} , рассчитанные с помощью моделей MRE и EMRE, становятся разными вблизи вершины лазерного импульса (при $t = 470$ фс), когда формируется пиковая населенность усредненного уровня ρ_a (в модели EMRE), и населенность ρ_N верхнего дискретного уровня (в модели MRE) становится сравнимой с полной населенностью ρ зоны проводимости. Другими словами, в этом режиме в полной мере проявляется ограничение модели MRE, связанное с конечным числом дискретных уровней. В результате, для создания пробоя в модели MRE необходимо увеличить флюенс лазерного излучения до $3,2$ Дж/см², когда $\frac{\rho_N}{\rho} \approx 0,55$.

Уточненная модель EMRE намного в большей степени подходит для исследования динамики свободных носителей заряда, вызванной фемтосекундным лазерным полем ближнего и среднего ИК диапазона. Применение этой модели указывает на возможность микромодификации объема кремния при значениях флюенса лазерного излучения, согласующихся с экспериментальными исследованиями [186].

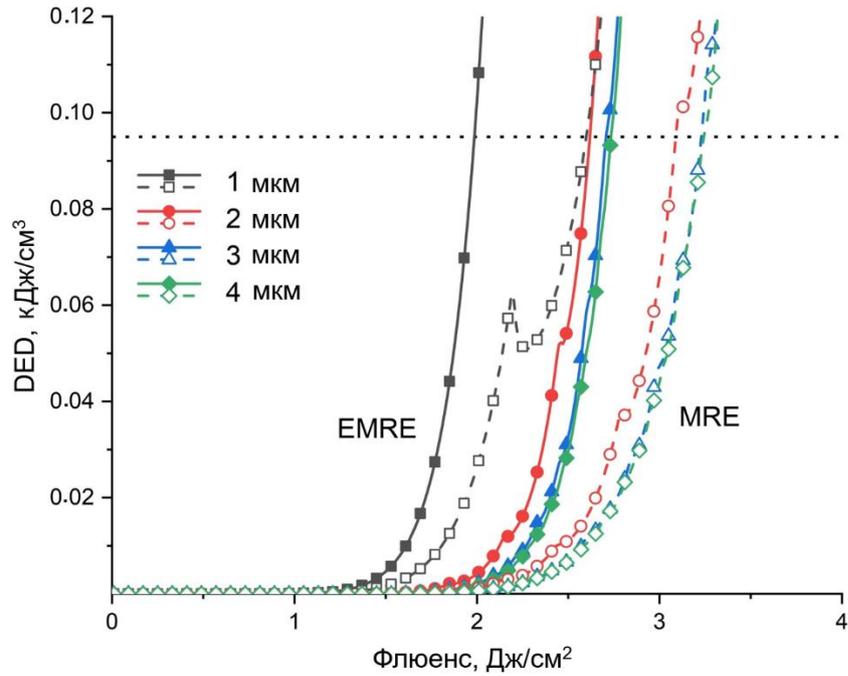


Рисунок 3.7. Плотность поглощенной энергии DED во флюорите для различных длин волн лазерного излучения, рассчитанная с использованием моделей EMRE (сплошные линии) и MRE (пунктирные линии). Горизонтальной пунктирной линией отмечен порог плавления флюорита $0,095 \text{ Дж/см}^3$. Расчеты выполнены для флюорита, длина волны лазерного излучения 4 мкм , флюенс $2,7 \text{ Дж/см}^2$, центр лазерного импульса расположен на 480 фс .

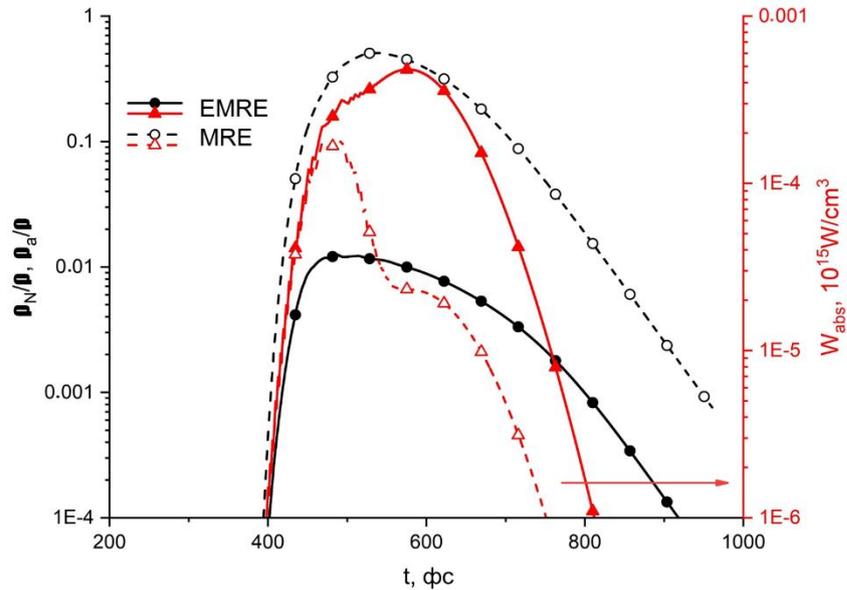


Рисунок 3.8. Отношение населенности усредненного уровня (в модели EMRE, черная сплошная линия) или верхнего дискретного уровня (в модели MRE, черная пунктирная линия) и полной населенности зоны проводимости. Скорость поглощения энергии в моделях EMRE (красная сплошная линия) и MRE (красная пунктирная линия). Расчеты выполнены для флюорита, длина волны лазерного излучения 4 мкм , флюенс $2,7 \text{ Дж/см}^2$, центр лазерного импульса расположен на 480 фс .

Важно отметить, что модель EMRE не содержит каких-либо феноменологических параметров, но может демонстрировать несколько иные результаты, при модификации зависимостей скоростей однофотонного поглощения и ударной ионизации от энергии свободных носителей заряда. Например, формула Келдыша (63) для скорости ударной ионизации справедливо только для энергий, близких к критической. Также такие «тонкие» эффекты, как электрон-фононная релаксация [159, 204], оже-рекомбинация [205, 206], дисперсия зонной структуры, фотоионизация из нескольких валентных зон [167], однофотонное поглощение с участием фононов [90], многофотонное обратное тормозное излучение [158] и некоторые другие действительно влияют на динамику зоны проводимости. Существуют более сложные модели, например, основанные на кинетическом подходе [10, 160, 207], которые считаются более подходящими для учета этих эффектов, чем модели, основанные на скоростных уравнениях. Тем не менее простота реализации и скорость вычислений делают скоростные модели незаменимым инструментом для численного исследования динамики свободных носителей заряда в задаче о распространении лазерного излучения.

3.4. Повышение точности модели EMRE путем учета дисперсионного слагаемого уравнения Фоккера-Планка

Наиболее корректными с физической точки зрения моделями динамики свободных носителей заряда являются статистические модели, основанные на уравнении Больцмана [10, 163], либо его упрощении – уравнении Фоккера-Планка [165, 164]. Согласно последнему, динамика плотности распределения свободных носителей заряда $f(\varepsilon, t)$ в зоне проводимости описывается уравнением:

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \frac{\partial J}{\partial \varepsilon} = S_\varepsilon(\varepsilon, t), \quad (74)$$

где $S_\varepsilon(\varepsilon, t)$ – плотность генерации (или рекомбинации) носителей, $J(\varepsilon, t)$ – поток плотности носителей:

$$J(\varepsilon, t) = \frac{\sigma(\varepsilon)I(t)}{3} f(\varepsilon, t) - \frac{2}{3} \sigma(\varepsilon)I(t)\varepsilon \frac{\partial f}{\partial \varepsilon} = \frac{\sigma(\varepsilon)I(t)}{3} \left(f - 2\varepsilon \frac{\partial f}{\partial \varepsilon} \right), \quad (75)$$

где $I(t)$ – интенсивность лазерного поля, ε – кинетическая энергия носителей,

$$\sigma(\varepsilon) = \frac{e^2}{m_e} \frac{v_c(\varepsilon)}{(v_c^2(\varepsilon) + \omega_0^2)} - \text{проводимость носителей, } e - \text{заряд электрона, } m_e - \text{эффективная}$$

масса носителей, $v_c(\varepsilon)$ – частота столкновений носителей, ω_0 – частота лазерного поля.

Первое слагаемое правой части выражения (75) описывает нагрев свободных носителей заряда лазерным полем, а второе – дисперсию плотности распределения носителей по энергии, т.е. диффузию носителей по энергетическому спектру с характерным «коэффициентом диффузии» $D = \frac{2}{3} \varepsilon \sigma(\varepsilon) I(t)$. С физической точки зрения это означает «расплывание» плотности свободных носителей по энергетическому спектру при наличии локальных градиентов в плотности распределения свободных носителей, которые возникают, например, при фотоионизации или ударной ионизации.

В уравнении Фоккера-Планка (74) в качестве источника свободных носителей заряда рассматривается фотоионизация, скорость которой $W(I)$ определяется интенсивностью лазерного излучения $I(t)$, а также ударная ионизация, происходящая со скоростью $v_{imp}(\varepsilon)$:

$$S_\varepsilon(\varepsilon, t) = W(\varepsilon, I(t)) - v_{imp}(\varepsilon) f(\varepsilon, t) + 2\beta v_{imp}(\beta\varepsilon) f(\beta\varepsilon, t). \quad (76)$$

Скорость ударной ионизации $v_{imp}(\varepsilon)$ отлична от нуля только для тех свободных носителей заряда, чья энергия превышает критическое значение $\varepsilon_{cr} = \left(1 + \frac{m_r}{m_h}\right) E_g$, где m_r – приведенная масса носителей, m_e и m_h – масса электрона и дырки соответственно, E_g – ширина запрещенной зоны. Выражение для $v_{imp}(\varepsilon)$ было получено Келдышем в работе [161], однако только для энергий, близких к критическому значению: $\varepsilon - \varepsilon_{cr} \ll \varepsilon_{cr}$. Поскольку при численном решении уравнения (74) учитываются также области энергии, значительно превышающие критическое значение $\varepsilon \gg \varepsilon_{cr}$, то требуется использовать более общее выражение для скорости ударной ионизации, полученное в работе [208]:

$$v_{imp}(\varepsilon) = \rho_{at} \sqrt{\frac{2\varepsilon}{m_e}} \cdot 4\pi a_0^2 \left(\frac{Ry}{E_g}\right)^2 \cdot \frac{\varepsilon_{cr}}{\varepsilon} \cdot \left(\frac{\varepsilon - \varepsilon_{cr}}{\varepsilon + \varepsilon_{cr}}\right)^{3/2} \cdot \left(1 + \frac{2}{3} \left(1 - \frac{\varepsilon_{cr}}{2\varepsilon}\right) \ln\left(2.7 + \sqrt{\frac{\varepsilon}{\varepsilon_{cr}} - 1}\right)\right), \quad (77)$$

где ρ_{at} – плотность атомов, a_0 – боровский радиус, Ry – постоянная Ридберга.

Числовой коэффициент β показывает, во сколько раз уменьшается энергия электрона, участвующего в одном акте ударной ионизации. В предположении параболических зон значение этого коэффициента напрямую следует из законов сохранения энергии и импульса:

$$\beta = \left(\frac{1 - m_r / m_e}{2 - m_r / m_e} \right)^2. \quad (78)$$

Нагрев свободных носителей заряда лазерным полем определяется частотой столкновений $\nu_c(\varepsilon)$, задаваемой выражениями (58) и (59).

Уравнение Фоккера-Планка, являющееся приближением уравнения Больцмана, справедливо, если средняя энергия, полученная носителями в электрическом поле за среднее время столкновений, меньше энергии носителей [209]: $\frac{e^2 E^2 \nu_c}{m_e (\omega_0^2 + \nu_c^2)} \cdot \frac{1}{\nu_c} < \varepsilon$. Из этого условия

можно получить оценку максимальной интенсивности лазерного излучения I_{max} , при которой модель Фоккера-Планка остается справедливой:

$$I_{max} = \frac{\varepsilon m_e \omega_0^2 c n_0 \epsilon_0}{2e^2} \approx 4 \cdot 10^{12} \cdot \frac{E_g [\text{эВ}]}{\lambda^2 [\text{мкм}]} \frac{Vm}{\text{см}^2}, \quad (79)$$

где c – скорость света в вакууме, n_0 – показатель преломления среды, λ – длина волны лазерного излучения.

Несмотря на высокую точность расчетов по модели Фоккера-Планка (F-Pl), ее непосредственное применение в задаче распространения лазерного излучения через вещество, например, в модели URPE, затруднено из-за большой длительности вычислений и повышенных требований к производительности вычислительных систем.

В этом разделе исследуется влияние дисперсионного слагаемого (второе слагаемое в правой части выражения (75)), описывающее «расплывание» плотности распределения носителей по зоне проводимости, на концентрацию свободных носителей заряда в зоне проводимости и их среднюю кинетическую энергию. При этом происходит сравнение модели EMRE с внедренным в нее дисперсионным слагаемым и модели Фоккера-Планка (F-Pl).

Для численного решения уравнение Фоккера-Планка (74) введем равномерную сетку на пространстве времени $t_j = \Delta t \cdot j$, $j = \overline{0, N_t}$ и пространстве энергий $\varepsilon_n = \Delta \varepsilon \cdot n$, $n = \overline{0, N-1}$, причем время ограничено сверху только длительностью расчетов, а максимальное значение энергии выбирается исходя из условия $f(t, \varepsilon_N) = 0$. Определим проводимости на промежуточных значениях энергии $\sigma_{n+1/2} = \sigma \left(\left(n + \frac{1}{2} \right) \Delta \varepsilon \right)$, интенсивность и плотность мощности генерации свободных носителей заряда – на промежуточных значениях времени

$I_{j+1/2} = I\left(\left(j + \frac{1}{2}\right)\Delta t\right)$, $S_{\varepsilon_n}^{j+1/2} = S_{\varepsilon}(t_{j+1/2}, \varepsilon_n)$, функцию распределения – в узлах сетки $f_n^j = f(t_j, \varepsilon_n)$.

Построим 6-точечную разностную схему, явную по времени и неявную по энергии. На каждом новом шаге по времени методом прогонки будем искать значения функции распределения по энергии. Получим следующее разностное уравнение:

$$\begin{aligned} f_n^{j+1} - f_n^j + \frac{\Delta t}{\Delta \varepsilon} \cdot \frac{\sigma_{n+1/2} I_{j+1/2}}{3} \cdot \left(\frac{f_n^j + f_n^{j+1} + f_{n+1}^j + f_{n+1}^{j+1}}{4} - \left(n + \frac{1}{2}\right) (f_{n+1}^j - f_n^j + f_{n+1}^{j+1} - f_n^{j+1}) \right) - \\ - \frac{\Delta t}{\Delta \varepsilon} \cdot \frac{\sigma_{n-1/2} I_{j+1/2}}{3} \cdot \left(\frac{f_n^j + f_n^{j+1} + f_{n-1}^j + f_{n-1}^{j+1}}{4} - \left(n - \frac{1}{2}\right) (f_n^j - f_{n-1}^j + f_n^{j+1} - f_{n-1}^{j+1}) \right) = S_n^{j+1/2} \Delta t. \end{aligned} \quad (80)$$

Приведем это выражение к удобному виду:

$$\begin{aligned} f_{n-1}^{j+1} \left(-\frac{I_{j+1/2} \sigma_{n-1/2} \Delta t}{3\Delta \varepsilon} \left(n - \frac{1}{4}\right) \right) + f_n^{j+1} \left(1 + \frac{I_{j+1/2} \Delta t}{3\Delta \varepsilon} \left(\sigma_{n+1/2} \left(\frac{3}{4} + n\right) - \sigma_{n-1/2} \left(\frac{3}{4} - n\right) \right) \right) + \\ + f_{n+1}^{j+1} \left(-\frac{I_{j+1/2} \sigma_{n+1/2} \Delta t}{3\Delta \varepsilon} \left(n + \frac{1}{4}\right) \right) = f_{n-1}^j \frac{I_{j+1/2} \sigma_{n-1/2} \Delta t}{3\Delta \varepsilon} \left(n - \frac{1}{4}\right) + \\ + f_n^j \left(1 - \frac{I_{j+1/2} \Delta t}{3\Delta \varepsilon} \left(\sigma_{n+1/2} \left(\frac{3}{4} + n\right) - \sigma_{n-1/2} \left(\frac{3}{4} - n\right) \right) \right) + f_{n+1}^j \frac{I_{j+1/2} \sigma_{n+1/2} \Delta t}{3\Delta \varepsilon} \left(n + \frac{1}{4}\right) + S_{\varepsilon_n}^{j+1/2} \Delta t, \end{aligned} \quad (81)$$

или

$$c_{n-} f_{n-1}^{j+1} + (1 + c_n) f_n^{j+1} + c_{n+} f_{n+1}^{j+1} = D_n = -c_{n-} f_{n-1}^j + (1 - c_n) f_n^j - c_{n+} f_{n+1}^j + S_{\varepsilon_n}^{j+1/2} \Delta t, \quad (82)$$

где
$$c_{n-} = -\frac{\Delta t}{3\Delta \varepsilon} \left(n - \frac{1}{4}\right) I_{j+1/2} \sigma_{n-1/2}, \quad c_n = \frac{\Delta t}{3\Delta \varepsilon} I_{j+1/2} \left(\sigma_{n+1/2} \left(\frac{3}{4} + n\right) - \sigma_{n-1/2} \left(\frac{3}{4} - n\right) \right),$$

$$c_{n+} = -\frac{\Delta t}{3\Delta \varepsilon} \left(n + \frac{1}{4}\right) I_{j+1/2} \sigma_{n+1/2}.$$

Заметим, что если не учитывать в уравнении Фоккера-Планка слагаемое, описывающее диффузию свободных носителей заряда по энергии, то коэффициенты c_{n-} , c_n , c_{n+} будут равны:

$$\begin{cases} c_{n-} = -\frac{\Delta t}{12\Delta \varepsilon} I_{j+1/2} \sigma_{n-1/2}, \\ c_n = \frac{\Delta t}{12\Delta \varepsilon} I_{j+1/2} (\sigma_{n+1/2} - \sigma_{n-1/2}), \\ c_{n+} = \frac{\Delta t}{12\Delta \varepsilon} I_{j+1/2} \sigma_{n+1/2}. \end{cases} \quad (83)$$

Разностное уравнение (82) решаем методом прогонки. Пусть $f_{n+1} = a_n f_n + b_n$. Тогда

$$D_n = \frac{c_{n-}}{a_{n-1}} (f_n - b_{n-1}) + c_n f_n + c_{n+} (a_n f_n + b_n), \quad \text{откуда} \quad a_{n-1} = \frac{-c_{n-}}{c_n + c_{n+} a_n}, \quad b_{n-1} = \frac{a_{n-1}}{c_{n-}} (c_{n+} b_n - D_n),$$

$n = \overline{1, N-2}$. Граничное условие $f_N^{j+1} = 0$ дает начальные значения для рядов a и b : $a_{N-2} = 0$, $b_{N-2} = 0$.

Для расчета значений f_n^{j+1} требуется также задать граничное условие для $n=0$, с которого начнется расчет по формуле $f_{n+1} = a_n f_n + b_n$. Зададим это граничное условие из условия того, чтобы при $S=0$ (нет источников свободных носителей) суммарная плотность носителей $\rho^{j+1} = \sum_{n=0}^{N-1} f_n^{j+1} \Delta \varepsilon$ оставалась неизменной. Просуммируем слагаемые в (82):

$$\frac{\rho^{j+1} - \rho^j}{\Delta t} - \frac{f_0^{j+1} \Delta \varepsilon}{\Delta t} + \frac{f_0^j \Delta \varepsilon}{\Delta t} - \frac{\sigma_{1/2} I_{j+1/2}}{3} \left(\frac{3}{4} (f_0^j + f_0^{j+1}) - \frac{f_1^j + f_1^{j+1}}{4} \right) = 0. \quad (84)$$

Поскольку $f_1^{j+1} = a_0 f_0^{j+1} + b_0$, то:

$$f_0^{j+1} \left(1 + \frac{\sigma_{1/2} I_{j+1/2} \Delta t}{12 \Delta \varepsilon} (3 - a_0) \right) = f_0^j \left(1 - \frac{\sigma_{1/2} I_{j+1/2} \Delta t}{4 \Delta \varepsilon} \right) + \frac{\sigma_{1/2} I_{j+1/2} \Delta t}{12 \Delta \varepsilon} (f_1^j + b_0), \quad (85)$$

откуда получаем граничное условие:

$$f_0^{j+1} = \frac{f_0^j \left(1 - \frac{\sigma_{1/2} I_{j+1/2} \Delta t}{4 \Delta \varepsilon} \right) + \frac{\sigma_{1/2} I_{j+1/2} \Delta t}{12 \Delta \varepsilon} (f_1^j + b_0)}{1 + \frac{\sigma_{1/2} I_{j+1/2} \Delta t}{12 \Delta \varepsilon} (3 - a_0)}. \quad (86)$$

Если не учитывать в уравнении Фоккера-Планка слагаемое, описывающее диффузию свободных носителей по энергии, то граничное условие станет равным:

$$f_0^{j+1} = \frac{f_0^j \left(1 - \frac{\sigma_{1/2} I_{j+1/2} \Delta t}{12 \Delta \varepsilon} \right) - \frac{\sigma_{1/2} I_{j+1/2} \Delta t}{12 \Delta \varepsilon} (f_1^j + b_0)}{1 + \frac{\sigma_{1/2} I_{j+1/2} \Delta t}{12 \Delta \varepsilon} (1 + a_0)}. \quad (87)$$

По результатам расчетов динамики плотности распределения носителей в зоне проводимости вычислялись концентрация свободных носителей в зоне проводимости $\rho(t)$:

$$\rho(t) = \int_0^\infty f(\varepsilon, t) d\varepsilon \quad (88)$$

и их средняя кинетическая энергия $\varepsilon_{mean}(t)$:

$$\varepsilon_{mean}(t) = \frac{\int_0^\infty \varepsilon f(\varepsilon, t) d\varepsilon}{\rho(t)}. \quad (89)$$

Продемонстрируем способ внедрения дисперсионного слагаемого в модель EMRE. Для этого уравнение (74) проинтегрируем по интервалам энергии $[\varepsilon_k - \Delta \varepsilon / 2, \varepsilon_k + \Delta \varepsilon / 2]$:

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho_k}{\partial t} = & -\frac{1}{3} \sigma(\varepsilon) I(t) f(\varepsilon, t) \Big|_{\varepsilon_k + \Delta\varepsilon/2} + \frac{1}{3} \sigma(\varepsilon) I(t) f(\varepsilon, t) \Big|_{\varepsilon_k - \Delta\varepsilon/2} + \\ & + \frac{1}{2} \frac{\partial}{\partial \varepsilon} \left(\frac{4}{3} \varepsilon \sigma(\varepsilon) I(t) f(\varepsilon, t) \right) \Big|_{\varepsilon_k + \Delta\varepsilon/2} - \frac{1}{2} \frac{\partial}{\partial \varepsilon} \left(\frac{4}{3} \varepsilon \sigma(\varepsilon) I(t) f(\varepsilon, t) \right) \Big|_{\varepsilon_k - \Delta\varepsilon/2} + \\ & + S(\varepsilon_k, t). \end{aligned} \quad (90)$$

Применяя конечно-разностную аппроксимацию производной по энергии и оценку $f(\varepsilon_k, t) \approx \frac{\rho_k(t)}{\Delta\varepsilon}$, получим систему обыкновенных дифференциальных уравнений:

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho_k}{\partial t} = & \frac{I(t)}{3\Delta\varepsilon} \cdot \left(\left(\frac{1}{2} + \frac{2\varepsilon_{k-1}}{\Delta\varepsilon} \right) \sigma(\varepsilon_{k-1}) \rho_{k-1} + \frac{4\varepsilon_k}{\Delta\varepsilon} \sigma(\varepsilon_k) \rho_k + \left(-\frac{1}{2} + \frac{2\varepsilon_{k+1}}{\Delta\varepsilon} \right) \sigma(\varepsilon_{k+1}) \rho_{k+1} \right) + \\ & + S(\varepsilon_k, t). \end{aligned} \quad (91)$$

Совершенно аналогично модернизируется уравнение для населенности ρ_a усредненного уровня и плотности его энергии u_a . При этом, поскольку требуется учет динамики свободных носителей с энергией значительно превышающей критическую $\varepsilon \gg \varepsilon_{cr}$, сделаем предположение об экспоненциальном затухании плотности распределения при энергиях выше критической:

$$f(\varepsilon > \varepsilon_{cr}) = f(\varepsilon_{cr}) \exp\left(-\frac{\varepsilon - \varepsilon_{cr}}{\delta\varepsilon}\right) = \frac{\rho_a^2}{u_a} \exp\left(-\frac{\varepsilon - \varepsilon_{cr}}{\frac{u_a}{\rho_a} - \varepsilon_{cr}}\right), \quad (92)$$

что подтверждается результатами моделирования при решении уравнения Фоккера-Планка, представленными ниже. Величина $\delta\varepsilon$ является шириной распределения свободных носителей заряда на усредненном уровне. С учетом экспоненциального распределения свободных носителей в области $\varepsilon > \varepsilon_{cr}$, для населенности ρ_a и плотности энергии u_a усредненного уровня скоростные уравнения будут следующими:

$$\begin{cases} \frac{\partial \rho_a}{\partial t} = I(t) \sigma(\varepsilon_{cr}) \frac{\rho_a^2}{u_a - \varepsilon_{cr} \rho_a} - \frac{2}{3} I(t) \frac{\partial}{\partial \varepsilon} (\varepsilon_{cr} \sigma(\varepsilon_{cr}) f(\varepsilon_{cr})), \\ \frac{\partial u_a}{\partial t} = I(t) \rho_a \left(\sigma(\varepsilon_{cr}) \frac{\varepsilon_{cr} \rho_a}{u_a - \varepsilon_{cr} \rho_a} + \sigma\left(\frac{u_a}{\rho_a}\right) \right) + \\ + \frac{2}{3} I(t) \left(\varepsilon_{cr} \sigma(\varepsilon_{cr}) f(\varepsilon_{cr}) - \varepsilon_{cr} \frac{\partial}{\partial \varepsilon} (\varepsilon_{cr} \sigma(\varepsilon_{cr}) f(\varepsilon_{cr})) \right). \end{cases} \quad (93)$$

Динамика свободных носителей заряда исследовалась в диэлектрике CaF_2 (ширина запрещенной зоны 12 эВ, эффективная масса носителей $m_e = m_h = 9,1 \cdot 10^{-31}$ кг, плотность атомов $\rho_{at} = 5,6 \cdot 10^{22}$ см⁻³) под действием мощного фемтосекундного лазерного излучения

длительностью 170 фс (с гауссовской формой огибающей) и флюенсом до $F = 8$ Дж/см². Поскольку среда является широкозонной, то начальное распределение носителей по зоне проводимости можно считать экспоненциальным, при этом чтобы концентрация носителей оставляла величину $\rho_0 = 10^{-20} \rho_{at}$ (что обусловлено возможным наличием примесей и дефектов в решетке диэлектрика), а средняя кинетическая энергия свободных носителей – $\varepsilon_{mean} = 0.04$ эВ (соответствует комнатной температуре). Исследовалось два диапазона длин волн: ближний инфракрасный ($\lambda = 1,24$ мкм, соответствует излучению хром-форстеритового лазера) и средний инфракрасный ($\lambda = 4,4$ мкм, соответствует излучению $Fe^{2+} : ZnSe$ лазера [186]). Заметим, что, согласно (79), модель F-P1 применима при интенсивностях лазерного излучения, меньших чем 40 ТВт/см² (при $\lambda = 1,24$ мкм), что соответствует флюенсу лазерного излучения $F = 5,8$ Дж/см², и меньших 10 ТВт/см² ($F = 1,3$ Дж/см², при $\lambda = 4,4$ мкм). Полученные оценки являются немного заниженными, поскольку при разогреве свободных носителей в лазерном поле также увеличивается частота их столкновений, в результате чего уменьшается левая часть выражения (79) и максимальный флюенс лазерного излучения, при котором применима модель F-P1 только увеличивается. Поэтому будем исследовать диапазон флюенсов до $F = 8$ Дж/см² (для $\lambda = 1,24$ мкм) и до $F = 2$ Дж/см² (для $\lambda = 4,4$ мкм).

На Рисунке 3.9 показана плотность распределения носителей заряда по зоне проводимости для различных моментов времени при флюенсе лазерного излучения $F = 2$ Дж/см² и длине волны 1,24 мкм, полученная с использованием модели F-P1. Для более удобного сравнения кривых каждая из них была нормирована на свое максимальное значение. Первоначально узкое распределение вблизи дна зоны проводимости становится шире благодаря фотоионизации, создающей свободные носители с энергией $\sim 0,51$ эВ (синяя кривая) и последующему нагреву в лазерном поле индуцированных носителей заряда. Поэтому по мере прохождения лазерного импульса максимум плотности распределения носителей смещается в область больших энергий. Также этому частично способствует фотоионизация в силу эффективного уширения запрещенной зоны, происходящего из-за осцилляций валентных электронов в лазерном поле. Носители, имеющие энергию больше критической, которая для CaF_2 составляет $\varepsilon_{cr} \approx 1,5E_g = 18$ эВ, участвуют в ударной ионизации. В результате этого существенно понижается населенность области энергии выше 18 эВ, но, напротив, увеличивается населенность области 2,1 эВ.

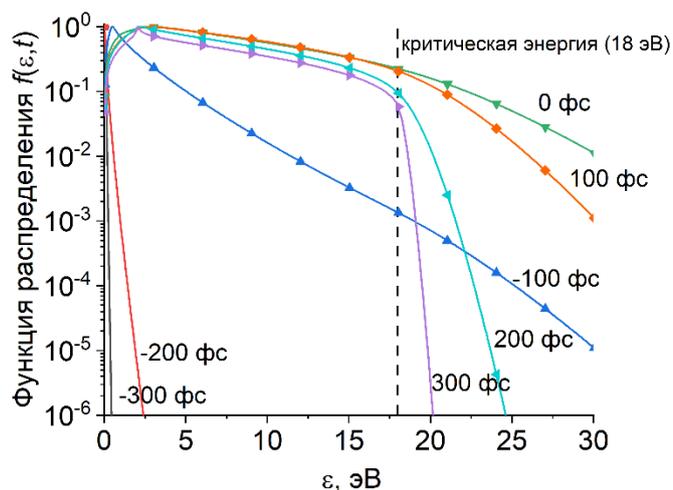


Рисунок 3.9. Плотность распределения свободных носителей заряда по зоне проводимости для разных моментов времени при прохождении через CaF_2 лазерного импульса с флюенсом $F = 2 \text{ Дж/см}^2$. Кривые нормированы на максимальное значение. Длина волны лазерного излучения $\lambda = 1,24 \text{ мкм}$.

На Рисунке 3.10 показано изменение средней кинетической энергии свободных носителей заряда при прохождении лазерного импульса с длиной волны $1,24 \text{ мкм}$. При малых флюенсах лазерного излучения ($F < 0,03 \text{ Дж/см}^2$) средняя кинетическая энергия носителей монотонно увеличивается, что свидетельствует о постепенном нагреве свободных носителей в лазерном поле (наибольший рост средней кинетической энергии наблюдается в центре импульса – при наибольшей интенсивности лазерного излучения). Однако при больших флюенсах ($F > 0,3 \text{ Дж/см}^2$) наблюдается совершенно другая динамика. Во-первых, плавный нагрев свободных носителей передним фронтом импульса сменяется падением средней кинетической энергии, вызванным активным действием ударной ионизации и переносом свободных носителей из высокоэнергетичной области ($>18 \text{ эВ}$) в низкоэнергетичную (около 2 эВ). Причина такого развития ударной ионизации состоит в том, что носители стали в значительной мере концентрироваться в области энергии выше критической (см. плотность распределения при $t = -100 \text{ фс}$ на Рисунке 3.9). В центре импульса за счет достигнувшей своего максимального значения интенсивности лазерного излучения средняя кинетическая энергия свободных носителей продолжает увеличиваться. Небольшие скачки, заметные на Рисунке 3.10 при $F = 2$ и 7 Дж/см^2 обусловлены изменением порядка многофотонности процесса фотоионизации вследствие увеличения эффективной ширины запрещенной зоны при росте интенсивности лазерного излучения.

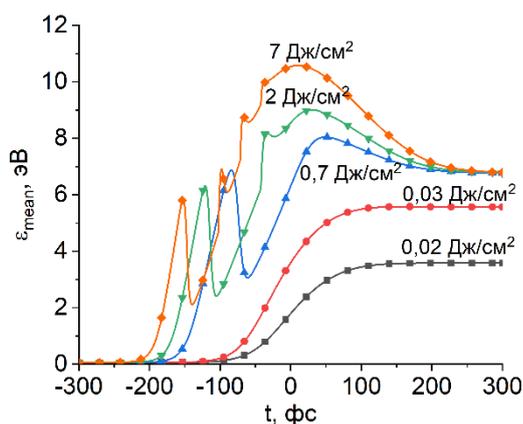


Рисунок 3.10. Динамика средней кинетической энергии свободных носителей заряда в CaF_2 при разных флюенсах лазерного излучения. Длина волны лазерного излучения $\lambda = 1,24$ мкм.

На заднем фронте импульса практически не происходит нагрева свободных носителей, однако ударная ионизация продолжает свое действие, снижая среднюю кинетическую энергию свободных носителей до значения 6,7 эВ, что составляет $0,56E_g$. Примечательным является тот факт, что вне зависимости от флюенса лазерного излучения, если он превышает определенное значение ($F > 0,05$ Дж/см²), то после прохождения лазерного импульса средняя кинетическая энергия свободных носителей принимает одно и то же значение $0,56E_g$. Расчеты, проведенные для другой длины волны (4,4 мкм), других длительностей лазерного импульса (в пределах от 80 до 400 фс), а также для модельной среды с вдвое меньшей шириной запрещенной зоны показывают, что конечное значение средней кинетической энергии остается одним и тем же ($0,56E_g$). Данный факт свидетельствует о том, что энергетическое распределение носителей в зоне проводимости после прохождения лазерного импульса имеет один и тот же вид, независимо от параметров лазерного излучения и ширины запрещенной зоны. Ключевым механизмом, формирующим распределение свободных носителей на хвосте лазерного импульса, является ударная ионизация. Наблюдаемая особенность позволяет заключить, что достигается динамический баланс между лазерным нагревом свободных носителей и ударной ионизацией: увеличение скорости лазерного нагрева вследствие роста флюенса лазерного излучения приводит к усилению ударной ионизации, которая формирует точно такое же распределение носителей по зоне проводимости, но лишь с увеличенной концентрацией носителей.

С практической точки зрения, данный факт указывает на возможность без проведения расчетов динамики свободных носителей заряда, возникающей под действием лазерного импульса, использования эффективной частоты столкновений и эффективной энергии

носителей (получаемых при усреднении этих величин по энергетическому распределению носителей) для анализа процессов, следующих за фотовозбуждением свободных носителей: электрон-фононной релаксации, люминесценции.

Применение модели F-PI, например, в задаче распространения лазерного излучения требует огромных вычислительных ресурсов, поскольку необходима достаточная степень дискретизации расчетной сетки энергии свободных носителей. Наиболее простым и логичным способом упростить расчеты является использование скоростных моделей динамики свободных носителей. Ниже представлены результаты с использованием модели EMRE с учетом дисперсионного слагаемого (на рисунках обозначена как «EMRE с дисп.») и без него (обозначена как «EMRE без дисп.»). Заметим, что, согласно Рисунку 3.9, плотность распределения носителей заряда при энергии выше критической (> 18 эВ) близка к экспоненциальной, что оправдывает сделанное в модели EMRE предположение об экспоненциально убывающем распределении свободных носителей на усредненном уровне (92).

Динамика концентрации носителей заряда в зоне проводимости (Рисунок 3.11а) демонстрирует небольшое отличие скоростных моделей от более точной модели F-PI: значения отличаются в 1,1 раза при $F = 0,7$ Дж/см², в 1,4 раза при $F = 2$ Дж/см² и в 3,1 раза при $F = 7$ Дж/см². Следует отметить, что увеличение точности расчетов при учете дисперсионного слагаемого не наблюдается. Однако динамика средней кинетической энергии свободных носителей показывает существенное количественное отличие на заднем фронте импульса (Рисунок 3.11б). Использование модели EMRE без дисперсионного слагаемого приводит к отличию в средней кинетической энергии на 2,6 эВ, что составляет около 40%. Учет же дисперсионного слагаемого сокращает это отличие до 0,7 эВ, что составляет всего 11%.

Одной из причин наблюдаемых различий в средней кинетической энергии свободных носителей и их концентрации в зоне проводимости, рассчитанных по модели EMRE и по модели F-PI, является грубость расчетной сетки, используемой в скоростных моделях (шаг сетки равен энергии фотона ~ 1 эВ для длины волны 1,24 мкм). Эти различия можно сократить при уменьшении шага расчетной сетки, т.е. при переходе в более длинноволновую область. На Рисунке 3.12 показана динамика концентрации свободных носителей и их средней кинетической энергии соответственно при длине волны лазерного излучения $\lambda = 4,4$ мкм. Отличие в плотности генерируемых свободных носителей в этом случае сокращается и составляет 1,04 раза при $F = 0,2$ Дж/см², 1,2 раза при $F = 0,8$ Дж/см² и 1,6 раза при $F = 2$ Дж/см², а средняя кинетическая энергия носителей после прохождения лазерного импульса принимает те же самые значения, что в случае длины волны 1,24 мкм, как и было отмечено

выше. При этом учет дисперсионного слагаемого позволяет заметно снизить отличие между EMRE и моделью F-PI только для динамики средней кинетической энергии свободных носителей.

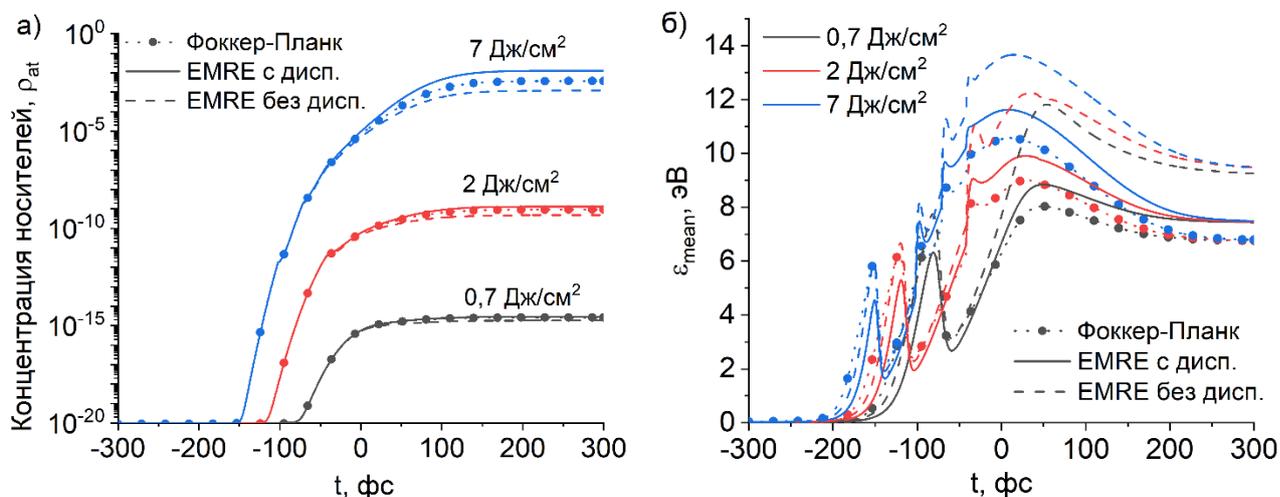


Рисунок 3.11. Динамика а) концентрации свободных носителей заряда и б) их средней кинетической энергии при различных флюенсах лазерного излучения, рассчитанных по моделям F-PI, EMRE с учетом и без учета дисперсионного слагаемого. Длина волны лазерного излучения $\lambda = 1,24$ мкм.

С точки зрения дальнейшего применения моделей динамики свободных носителей в задаче распространения лазерного излучения через среду, наиболее привлекательной является модель EMRE с добавленным дисперсионным слагаемым. Во-первых, точность расчетов с помощью этой модели позволяет использовать ее взамен статистических моделей (например, F-PI). Во-вторых, что не менее важно, длительность проводимых с ее помощью расчетов примерно в 20 раз меньше, чем при использовании модели F-PI (Рисунок 3.13). При этом коэффициент ускорения вычислений остается практически неизменным во всем диапазоне анализируемых флюенсов лазерного излучения.

Добавление к модели EMRE дисперсионного слагаемого позволяет уменьшить на 30% (для $\lambda = 1,24$ мкм) расхождение в средней кинетической энергии, рассчитываемой в рамках моделей EMRE и F-PI. Средняя кинетическая энергия отражает распределение свободных носителей по зоне проводимости, от которого зависит эффективная частота столкновения носителей с частицами (электронами и ионными остовами) и квазичастицами (фононами). Поэтому учет дисперсионного слагаемого важен в таких практических приложениях, как определение энергетического порога оптического пробоя и времени релаксации импульса и энергии свободных носителей.

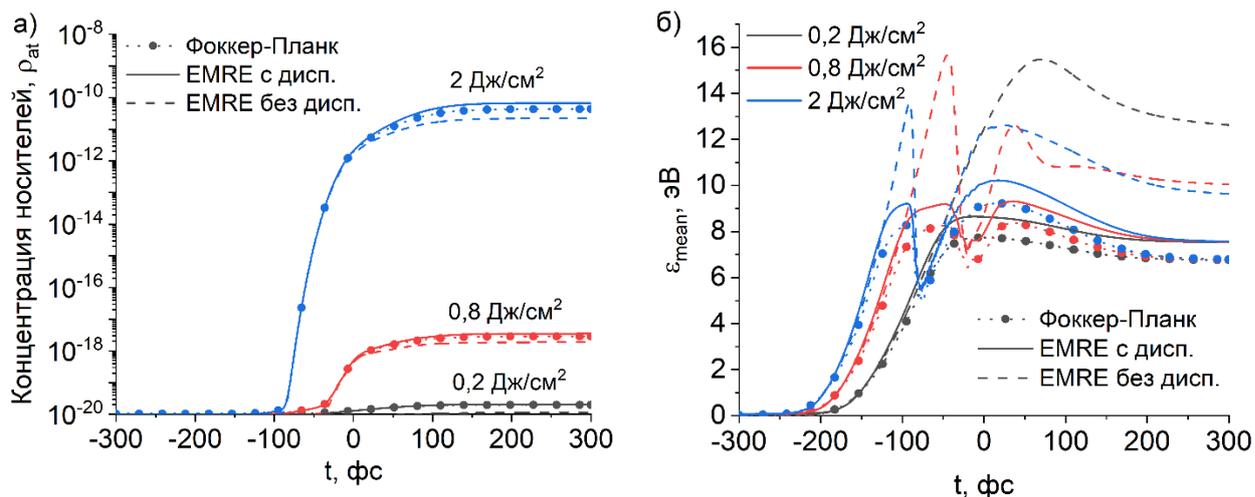


Рисунок 3.12. Динамика а) концентрации свободных носителей заряда и б) их средней кинетической энергии при разных флюенсах лазерного излучения, рассчитанных по моделям F-P, EMRE с учетом и без учета дисперсионного слагаемого. Длина волны лазерного излучения $\lambda = 4,4$ мкм.

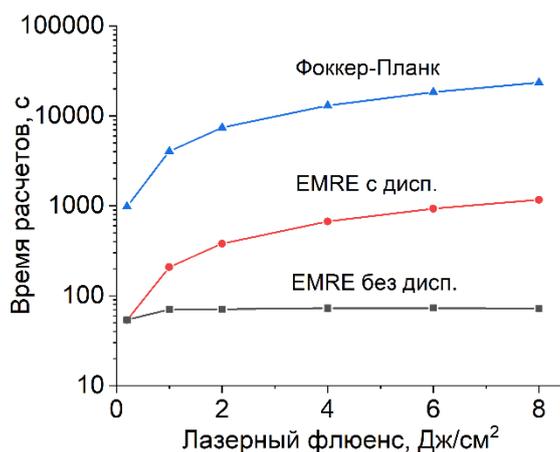


Рисунок 3.13. Сравнение длительности проводимых расчетов динамики свободных носителей заряда для разных моделей.

3.5. Основные выводы по главе 3

Предложена модель динамики свободных носителей заряда EMRE, которая позволяет описывать последствия лазерного воздействия на среду в согласии с экспериментальными данными. В частности, с использованием модели EMRE продемонстрирована возможность микромодификации объема кремния лазерными импульсами с длиной волны 4,5 мкм и флюенсом $F_{thr} \approx 0,049$ Дж/см². Особенности модели EMRE состоят в введении дополнительного усредненного уровня энергии в зоне проводимости, что делает возможным учет дополнительного нагрева свободных носителей лазерным полем до энергий выше

критической, необходимой для начала ударной ионизации, а также в использовании аналитических зависимостей скорости однофотонного поглощения и скорости ударной ионизации от энергии свободных носителей.

Модель EMRE применима к расчету динамики свободных носителей как в конденсированных средах, так и в газовых средах. Единственным отличием газовых сред будет их меньшая плотность, в результате чего будут снижена частота столкновений носителей, т.е. скорость однофотонного поглощения.

Анализ динамики свободных носителей заряда на основе уравнения Фоккера-Планка показал, что в середине лазерного импульса средняя кинетическая энергия носителей может достигать значений порядка ширины запрещенной зоны E_g , тогда как после прохождения лазерного импульса средняя кинетическая энергия принимает значение $0,56E_g$, что свидетельствует о динамическом балансе между лазерным нагревом свободных носителей и ударной ионизацией: увеличение скорости лазерного нагрева вследствие роста флюенса лазерного излучения приводит к усилению ударной ионизации, которая формирует точно такое же распределение свободных носителей по зоне проводимости, но лишь с увеличенной концентрацией носителей.

Добавление к модели EMRE дисперсионного слагаемого позволяет уточнить на 30% рассчитываемое значение средней кинетической энергии свободных носителей и приблизится к точности статистической модели Фоккера-Планка. При этом использование модели EMRE за счет учета меньшего количества уровней энергии в зоне проводимости позволяет проводить расчеты в 20 раз быстрее по сравнению с моделью Фоккера-Планка.

Глава 4. Генерация когерентного излучения при распространении лазерного излучения в газовых и конденсированных средах

Свойства когерентного излучения (в частности, излучения суперконтинуума и гармоник), генерируемого при распространении лазерного излучения в среде (его интенсивность, спектральный состав, поляризация), определяется как свойствами лазерного излучения (интенсивность, длительность, длина волны, внешняя фокусировка), так и параметрами среды (протяженность, химический состав, закон дисперсии).

При этом эффективность генерации регистрируемого и используемого для практических применений когерентного излучения есть результат когерентного сложения сигналов от различных атомов среды, поэтому важной задачей представляется анализ условий фазового согласований этих сигналов.

В данной главе проводится исследование способов управления свойствами генерируемого излучения суперконтинуума и гармоник низкого порядка путем вариации внешней фокусировки, интенсивности лазерного излучения и давления газовой среды.

4.1. Условия внешней фокусировки лазерного излучения как способ управления спектром когерентного излучения конденсированной среды

Повышение эффективности генерации когерентного излучения (суперконтинуум, гармоники низкого и высокого порядков, терагерцовое излучение) является одной из ключевых прикладных задач, стоящих перед нелинейной оптикой.

Самым первым и наиболее действенным решением является правильный выбор среды для генерации когерентного излучения. Так, генерация в твердых телах позволяет получить на порядки более яркое излучение по сравнению с газовыми средами благодаря более высокой плотности атомов. Тем не менее, в твердых телах эффективность генерации при повышении интенсивности лазерного излучения ограничена рядом внутренних факторов, таких как генерация свободных носителей заряда, наличие материальной дисперсии, более низкий порог оптического пробоя [210].

Одним из способов повышения эффективности генерации когерентного излучения является изменение параметров самого лазерного импульса: его длительности, ширины, условий внешней фокусировки. На практике изменение внешней фокусировки является наиболее простым способом управления нелинейными процессами. Важно отметить, что изменение внешней фокусировки приводит сразу к нескольким физическим изменениям, влияющих на эффективность нелинейных процессов. С одной стороны, увеличение жесткости

фокусировки также увеличивает интенсивность падающего излучения, что должно усиливать интенсивность происходящих нелинейных процессов. С другой стороны, увеличение жесткости фокусировки уменьшает длину взаимодействия, поэтому нелинейные процессы могут не успеть развиваться. Кроме того, жесткая фокусировка способна существенно изменить профиль пучка, привести к возникновению существенной продольной составляющей лазерной волны, что значительно усложнит рассмотрение протекающих нелинейных процессов.

Научным сообществом накоплен богатый материал по изучению влияния условий фокусировки на генерацию когерентного излучения. В работе [107] было показано, что эволюция спектрального уширения с увеличением энергии входного импульса зависит от того, фокусируется ли падающий луч на входную грань или внутри объемного диэлектрика. В [109] авторы показали, что спектр суперконтинуума, возникающего в широкозонном диэлектрике при нормальной дисперсии групповой скорости (ДГС) в условиях слабой фокусировки, имеет гораздо большую ширину спектра в длинноволновой области, в то время как уширение спектра в коротковолновую область остается практически таким же. Степень внешней фокусировки может определять роль кубичной нелинейности (незначительная в случае жесткой фокусировки и доминирующая в случае мягкой фокусировки) в процессе обогащения спектра суперконтинуума за счет фазовой самомодуляции и кросс-фазовой модуляции [106]. В двулучепреломляющих кристаллах спектральная ширина суперконтинуума может контролироваться путем изменения условий фокусировки [211]. В подавляющем большинстве этих работ анализировался режим нормальной (положительной) ДГС.

Рассмотрим генерацию суперконтинуума в диэлектрике (CaF_2) под действием лазерного излучения среднего инфракрасного диапазона (длина волны 4,4 мкм), в котором указанная кристаллическая среда имеет аномальную (отрицательную) ДГС [212]. Фториды являются одной из наиболее привлекательных прозрачных сред для генерации суперконтинуума и гармоник благодаря тому, что позволяют получать спектр шириной в несколько октав [3, 213]. Для исследования возможности увеличения эффективности генерации суперконтинуума и его трансформации его спектра в расчетах использовались лазерные импульсы длительности 200 фс с длиной волны 4,4 мкм и энергией от 1 до 100 мкДж. Ширина пучка составляла 0,4 см (на полувысоте). Фокусное расстояние изменялось от 6 до 20 см, что соответствует изменению числовой апертуры $NA = n \sin \theta \approx n \frac{r}{f}$ (где n – показатель преломления среды, r – радиус пучка, f – фокусное расстояние) от 0,014 до 0,047.

При получении результатов, представленных в этом разделе, использовались модель URPE и следующие значения параметров среды: $n_0 = 1,4$ [212], $n_2 = 1,3 \cdot 10^{-16} \text{ см}^2/\text{Вт}$ [214], $\rho_{at} = 5,6 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$, $\tau_c = \frac{1}{\nu_e} = 3 \text{ фс}$ [42], $\tau_r = 150 \text{ фс}$ [42], $E_g = 12 \text{ эВ}$ [42], $\sigma = 8,6 \cdot 10^{-17} \text{ см}^2$.

Прежде всего рассмотрим режим малой интенсивности лазерного излучения, когда нелинейностями, вызываемыми самовоздействием и генерируемой электронной плазмой можно пренебречь. Для этого были проведены расчеты по распространению лазерного излучения с энергией 0,1 мкДж и длительностью 200 фс, что соответствует 0,003 критической мощности самофокусировки $P_{cr} = \frac{\lambda^2}{2\pi n_0 n_2}$, которая составляет 0,2 ГВт (для длины волны 4,4 мкм).

На Рисунке 4.1а представлено сравнение пространственного распределения интенсивности излучения для двух разных значений фокусных расстояний: 10 см и 20 см. Распределения интенсивностей в обоих случаях нормированы на максимальное значение, а цветовая шкала дает наглядное понимание распределения интенсивности по пространству. В условии малой интенсивности излучения, т.е. отсутствия нелинейности, вызванной самовоздействием и электронной плазмой, распределения интенсивности отличаются регулярностью. При этом в случае с большим фокусным расстоянием (20 см) длина перетяжки, т.е. область нелинейного взаимодействия (область высокой интенсивности, где преимущественно действуют процессы преобразования частоты), в несколько раз выше, что должно способствовать увеличению коэффициента конверсии энергии в 3-ю гармонику.

Поскольку среда обладает дисперсией, при распространении лазерного излучения наблюдаются колебания интенсивности 3-й гармоники (Рисунок 4.1б). Рассчитанная с помощью пространственного преобразования Фурье отстройка волновых векторов в проекции на ось z составляет $\Delta k = 893,5 \text{ см}^{-1}$ для всех исследованных условий фокусировки, что совпадает с теоретическим значением $\Delta k = 3k_1 - k_3 = \frac{6\pi}{\lambda_0} (n(\omega_0) - n(3\omega_0)) = 891,1 \text{ см}^{-1}$.

Как показывают расчеты, эффективность преобразования в 3-ю гармонику возрастает с ослаблением фокусировки (Рисунок 4.2), что объясняется большей длиной взаимодействия. Действительно, конфокальный параметр меняется в зависимости от фокусного расстояния

следующим образом: $b = \frac{2f^2/z_d}{1+(f/z_d)^2}$, где $z_d = kr^2$ – дифракционная длина, k – волновое

число, r – радиус пучка. При фокусном расстоянии порядка 10 см дифракционная длина $z_d = 1255 \text{ см} \gg f$, поэтому можно положить $b \sim f^2$. В первом приближении интенсивность

гармоники и, следовательно, эффективность генерации гармоники пропорциональны квадрату конфокального параметра b^2 , поэтому она пропорциональна 4-й степени фокусного расстояния $\sim f^4$.

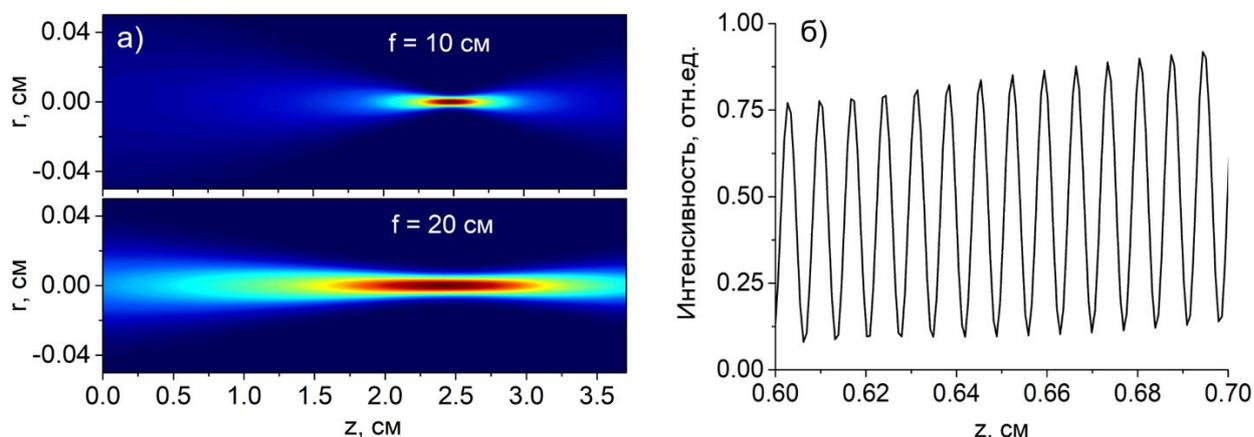


Рисунок 4.1. (а) Распространение лазерного излучения в CaF_2 при фокусном расстоянии 10 см (верхний рисунок) и 20 см (нижний рисунок). Интенсивность в обоих случаях нормирована на максимальное значение. (б) Модуляция интенсивности 3-й гармоники при фокусном расстоянии 10 см. Интенсивность нормирована на максимальное значение.

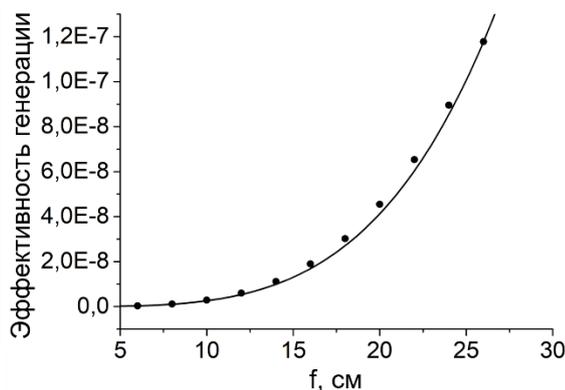


Рисунок 4.2. Эффективность 3-й гармоники в зависимости от фокусного расстояния. Точками показаны расчетные значения, сплошной линией – аппроксимация зависимостью

$$\sim f^4.$$

Полученные результаты остаются справедливыми только в отсутствие самовоздействия и генерации электронной плазмы. Когда же интенсивность лазерного излучения повышается, эти факторы могут существенно изменить влияние условий фокусировки на эффективность генерации гармоник низкого порядка и суперконтинуума.

Спектр генерируемого излучения после фокусировки лазерных импульсов зависит от энергии входного импульса, как показано на Рисунке 4.3 (при фокусном расстоянии 6 см), и состоит в генерации гармоник низкого порядка при низкой энергии импульса и последующей

генерации суперконтинуума при повышении энергии импульса. Интенсивность лазерного излучения при энергии импульса 10 мкДж и ниже достигает в фокальной плоскости значения не выше $5,6 \text{ ТВт/см}^2$. При таких интенсивностях лазерного излучения преимущественно действуют фазовая самомодуляция и кросс-фазовая модуляция, а модуляция, обусловленная возникновением электронной плазмы, не проявляется. Фазовая самомодуляция и кросс-фазовая модуляция, обусловленные кубичной нелинейностью, приводят к увеличению ширины спектра гармоник низкого порядка (черная и красная кривые на Рисунке 4.3).

При увеличении энергии импульса и, следовательно, интенсивности лазерного излучения (более 10^{13} Вт/см^2) генерируется плотная плазма свободных электронов (более 10^{17} см^{-3}), что приводит к заполнению спектральных областей между гармониками и образованию «гладкого» суперконтинуума (зеленая, синяя и оранжевая линии на Рисунке 4.3). Этот механизм заполнения спектра суперконтинуума обсуждался в ряде работ [215, 216].

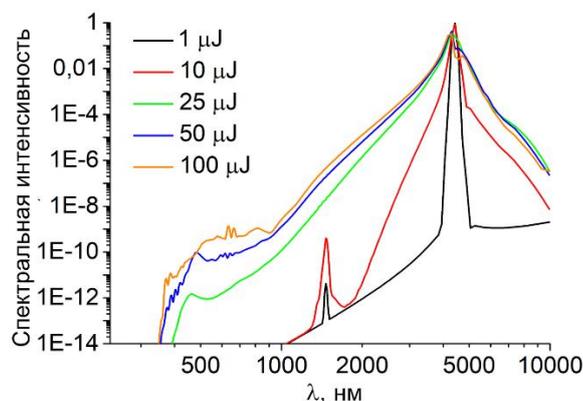


Рисунок 4.3. Спектры генерируемого излучения для энергий лазерных импульсов от 1 до 100 мкДж. Фокусное расстояние 6 см, длина волны лазерного излучения 4,4 мкм.

Интерес представляет не столько спектр генерируемого излучения на выходе из среды, а сколько эволюция этого спектра и пространственно-временных профилей лазерных импульсов по мере их распространения через среду (Рисунок 4.4). Из-за фокусировки линзой и самофокусировки за счет кубичной нелинейности интенсивность лазерного излучения на оси z (оси распространения) увеличивается, создавая плазму свободных электронов. Для относительно длинных импульсов (около 100–200 фс) фотоионизация начинается в передней части импульса, на его фронте, и приводит к образованию свободных (затравочных) электронов. Ударная ионизация, успевающая значительно развиться только к задней части импульса, умножает число свободных электронов до значений, достаточных для существенного поглощения лазерной энергии и преобразования временного профиля импульса. В результате задняя часть импульса становится более крутой, и наблюдается сжатие

импульса до 22–26 фс (в зависимости от фокусного расстояния), что соответствует 1,5 циклам лазерного поля (Рисунок 4.4а).

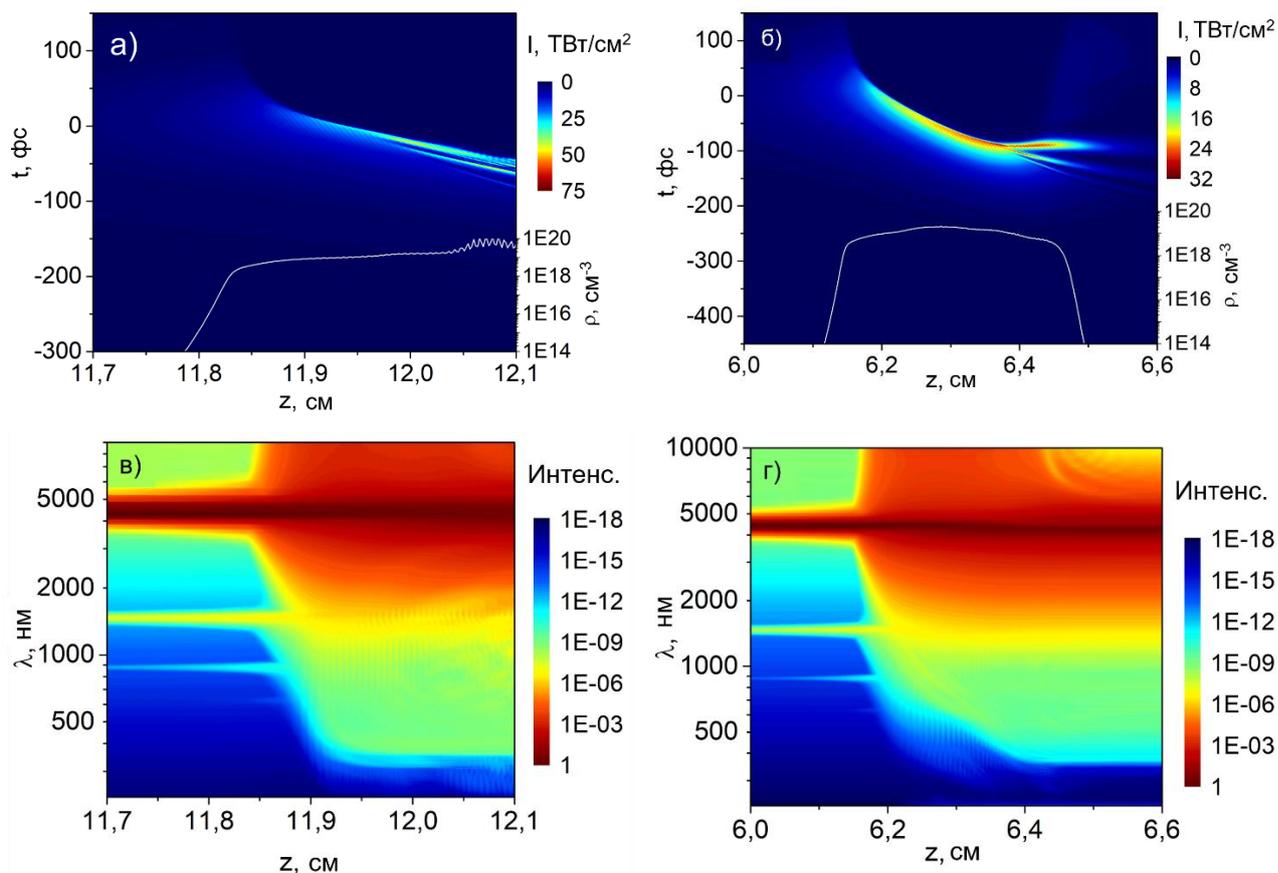


Рисунок 4.4. (а), (б) Временные профили лазерного импульса и пиковая (по времени) плотность электронной плазмы на оси распространения, (в), (г) спектры генерируемого излучения в зависимости от z для лазерного импульса энергии 100 мкДж. Фокусное расстояние составляет (а), (в) 12 см и (б), (г) 6 см.

Для выяснения роли внешней фокусировки в повышении эффективности генерации когерентного излучения была проведена серия расчетов для фокусного расстояния в диапазоне от 6 до 20 см. Чтобы проследить роль факторов, связанных исключительно с жесткостью фокусировки, интенсивность лазерного излучения на входной плоскости нелинейной среды выбиралась одинаковой при различных фокусировках. Такое условие позволяет нелинейным эффектам действовать с одинаковой «силой» на начальном этапе распространения. Ниже представлены результаты для энергии импульса до 100 мкДж (Рисунок 2.4), что соответствует мощности, превышающей критическую мощность самофокусировки примерно в 2 раза.

За счет сжатия импульса уменьшается нелинейная длина $z_{nl} = \frac{\lambda^2 z_d}{2\pi n_0 n_2 P}$ (где P – мощность импульса). Как показывают расчеты, когда она становится близка к дифракционной длине, происходит генерация суперконтинуума. Но из-за дальнейшего распространения пучка и его фокусировки интенсивность излучения продолжает увеличиваться, что приводит к нарушению равновесия (равенства нелинейной и дифракционной длин) и расщеплению импульса на отдельные субимпульсы (Рисунок 4.4а и 4.4б). Такое расщепление импульса сопровождается значительным обогащением спектра (Рисунок 4.4в – для фокусного расстояния 12 см и Рисунок 4.4г – для фокусного расстояния 6 см). При этом спектр суперконтинуума вблизи основной частоты практически не зависит от фокусного расстояния.

Образование суперконтинуума связано с быстрым ростом плотности электронной плазмы. Действительно, на Рисунках 4.4а и 4.4в при слабой фокусировке ($f = 12$ см) видно, что при $z = 11,84$ см резко возрастает плотность электронной плазмы и происходит спектральное уширение. Сравнивая соответствующие положения z с параметрами импульса в этих точках для различных фокусных расстояний, можно сделать вывод, что это происходит, когда дифракционная длина z_d совпадает с нелинейной длиной z_{nl} (это значение равно 0,19 см в случае $f = 12$ см и 0,29 см в случае $f = 6$ см).

Проследим процесс выравнивания дифракционной и нелинейной длин. На начальном этапе распространения импульса, когда $z_{nl} < z_d$, происходит самофокусировка. При этом уменьшается ширина пучка, вследствие чего уменьшается дифракционная длина. Вместе с тем, из-за поглощения задней части лазерного импульса нелинейная длина возрастает. В результате возникает такая точка z , в которой $z_{nl} \approx z_d$, и возникает суперконтинуум.

При распространении от $z = 11,84$ до 11,92 см (Рисунки 4.4а и 4.4в) коротковолновая граница спектра суперконтинуума постепенно смещается в более коротковолновую область. Это вызвано поглощением задней части импульса и его укорочением. Например, при $f = 12$ см длительность импульса (FWHM) сокращается до 22 фс, а при $f = 6$ см – до 26 фс, что составляет примерно 1,5 цикла лазерного поля.

Поскольку CaF_2 имеет отрицательную ДГС при длине волны 4,4 мкм, расщепление импульса на субимпульсы связано с формированием так называемого «антистоксова крыла» (АСК) в спектре суперконтинуума – коротковолновой области спектра с увеличенной по отношению к другим областям спектра интенсивностью. Физическая причина появления АКС заключается в конструктивной интерференции спектральных компонент суперконтинуума [4,

217]. Действительно, фаза спектральной компоненты при распространении вдоль оси z в отсутствие нелинейностей изменяется следующим образом:

$$\varphi(\omega, z) = \left(k(\omega) - \frac{\omega}{v_g} \right) z, \quad (94)$$

где $k(\omega)$ – волновой вектор, v_g – групповая скорость.

Если фаза какой-либо спектральной компоненты, называемой антистоксовой, будет равна фазе основной спектральной компоненты, то будет происходить резонансное усиление антистоксовой компоненты. Тогда положение АСК в спектре можно определить из простой зависимости [4]:

$$n(\omega_{АСК})\omega_{АСК} - n_0\omega_0 - \frac{c}{v_g}(\omega_{АСК} - \omega_0) = 0, \quad (95)$$

где $n(\omega)$ – дисперсия показателя преломления среды, n_0 – показатель преломления среды на частоте лазера ω_0 .

Решив это уравнение для длины волны 4,4 мкм, можно получить длину волны АСК 340 нм. Однако результаты численных исследований демонстрируют, что чем сильнее фокусировка, тем больше смещение АСК в длинноволновую область спектра (Рисунок 4.5). Эту тенденцию можно объяснить модифицированной резонансной зависимостью, которая включает изменение показателя преломления за счет самофокусировки и дефокусировки, вызванной наличием электронной плазмы. Модифицированная зависимость имеет вид:

$$\omega_{АСК} \left(n(\omega_{АСК}) - \frac{\rho}{2\rho_c(\omega_{АСК})} \right) - \omega_0 \left(n_0 + n_2 I - \frac{\rho}{2\rho_c(\omega_0)} \right) - \frac{c}{v_g}(\omega_{АСК} - \omega_0) = 0, \quad (96)$$

где $\rho_c(\omega) = \frac{\varepsilon_0 m_e \omega^2}{e^2}$ – критическая плотность электронной плазмы (составляет $5,8 \cdot 10^{19}$ см⁻³ при длине волны 4,4 мкм). Здесь мы пренебрегаем влиянием интенсивности генерируемого излучения, поскольку она значительно меньше интенсивности лазерного поля. Поскольку пиковая плотность электронной плазмы зависит от фокусного расстояния (Рисунок 4.6), то для разных условий фокусировки существует различное положение z формирования АСК.

Используя модифицированное резонансное условие, можно численно найти спектральное положение АСК $\lambda_{АСК} = \frac{2\pi c}{\omega_{АСК}}$ в зависимости от интенсивности лазера и концентрации свободных электронов. Для удобства интерпретации этой зависимости построим на Рисунке 4.7 нормированную плотности электронной плазмы ρ/ρ_c , которую

необходимо создать в среде для наблюдения АСК, в зависимости от положения АСК $\lambda_{АСК}$ для двух различных интенсивностей лазерного излучения: 0,5 и 50 ТВт/см². Именно в пределах этих значений и находится интенсивность лазерного излучения при всех исследуемых значения фокусного расстояния.

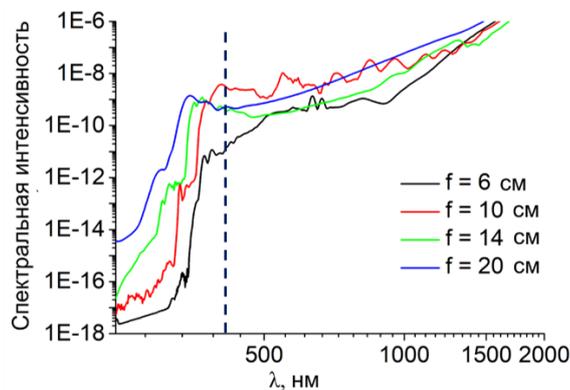


Рисунок 4.5. Коротковолновая область генерируемого спектра и положение антистоксового крыла для различных фокусных расстояний. Вертикальная штриховая линии обозначает положение антистоксова крыла, рассчитываемого по формуле (95).

Энергия лазерного импульса 100 мкДж.

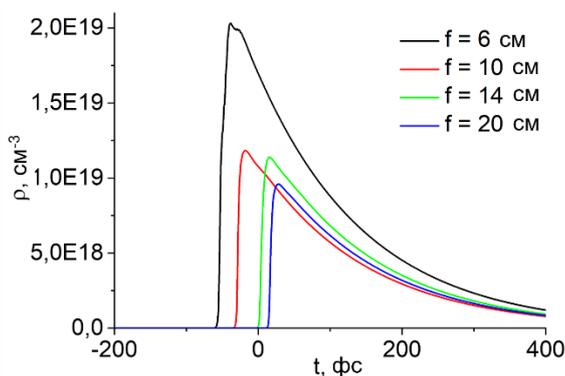


Рисунок 4.6. Динамика плотности электронной плазмы на оси для различных фокусных расстояний. Энергия лазерного импульса 100 мкДж.

Черными точками на Рисунке 4.7 отмечено положение АСК $\lambda_{АСК}$ и значение ρ/ρ_c , которое получалось при численном решении задачи распространения лазерного излучения при различных фокусных расстояниях. В идеальном случае эти точки должны располагаться между красной и черной кривыми, которые соответствуют интенсивности лазерного излучения от 0 до 50 ТВт/см² соответственно. Небольшое расхождение можно объяснить упрощением оценки изменения показателя преломления за счет генерируемой электронной плазмы.

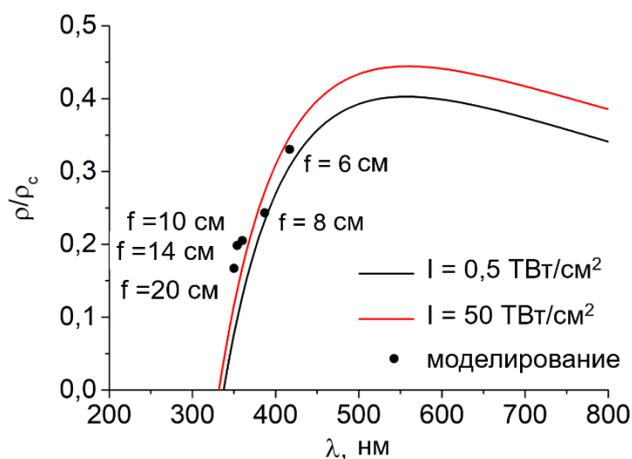


Рисунок 4.7. Плотность электронной плазмы в зависимости от положения АСК, рассчитанная по модифицированной резонансной зависимости (96). Черная и красная кривые показывают зависимость для интенсивности лазерного излучения от 0 до 50 ТВт/см² соответственно. Черные точки обозначают результаты численных исследований распространения лазерного импульса для различных фокусных расстояний.

Таким образом, внешняя фокусировка косвенно (за счет увеличения плотности электронной плазмы) влияет на сдвиг антистоксова крыла в длинноволновую область спектра. Полученные результаты наглядно демонстрируют возможность управления спектром когерентного излучения лазерных импульсов среднего ИК диапазона путем изменения внешней фокусировки. Поскольку в проведенных исследованиях не было привязки к конкретной зонной структуре материала, можно полагать, что указанные выше механизмы влияния условий внешней фокусировки на генерацию когерентного излучения справедливы для различных широкозонных диэлектриков в области аномальной дисперсии групповой скорости.

4.2. Генерация гармоник низкого порядка в газовой среде при изменении условий фазового синхронизма вследствие распространения лазерного излучения

Многочисленные экспериментальные исследования по генерации гармоник низкого и высокого порядков в газовых средах ставят своей целью поиск таких значений параметров среды и лазерного излучения, при которых сигнал генерируемых гармоник будет максимальным [72, 100, 104, 105, 111, 112, 218]. В качестве таких параметров для оптимизации обычно используют длину волны лазерного излучения, давление, протяженность и состав газовой среды, жесткость фокусировки лазерного излучения и положение фокуса относительно газовой среды. Условия внешней фокусировки и их влияние на трансформацию

спектра генерируемого излучения обсуждалось в предыдущем разделе. В этом разделе внимание будет уделено другому параметру среды, который также является удобным с точки зрения простоты вариации в экспериментах – давление газовой среды.

Некоторые экспериментальные результаты свидетельствуют об оптимальных значениях давления в области десятков миллибар при длине волны лазерного излучения 800 нм [112], а также в области единиц бар при использовании коротких лазерных импульсов с длительностью до 10 фс [113]. Значение оптимального давления при использовании лазерных импульсов среднего инфракрасного диапазона требует уточнения. Первые эксперименты в этой спектральной области демонстрируют насыщение интенсивности гармоник низкого порядка при увеличении давления до 16 бар [100].

Различные экспериментальные условия (длины волн, длительности лазерных импульсов, геометрия эксперимента), в которых проводились указанные выше исследования, безусловно требуют проведения доскональных теоретических исследований и численного моделирования процесса генерации гармоник в газовой среде. При этом, как следует из вида волнового уравнения, существуют определенные законы масштабирования параметров среды и лазерного излучения, при которых волновое уравнение остается инвариантным. Следовательно, одни и те же физические результаты (например, эффективность генерации третьей гармоники) могут наблюдаться при различных значениях параметров среды и лазерного излучения [94, 113]. Поэтому важной задачей является не просто определение области оптимальных значений параметров (например, давления газовой среды), при которых сигнал гармоник достигает своей максимальной величины, а выявление физических факторов и причин, влияющих на изменение интенсивности и фазы гармоник при распространении лазерного излучения через газовую среду.

Традиционно, условие фазового синхронизма описывается как сумма различных вкладов в расстройку волновых векторов основной частоты и гармоники: атомная (дипольная) фаза, геометрическая фаза, фаза вследствие материальной дисперсии, фазовая самомодуляции и фаза вследствие генерации свободных носителей заряда. Все эти факторы объединены в модель Константа [91], в которой предполагается неизменность анализируемых факторов, что дает возможность оперировать понятиями длин когерентности и поглощения, а также длиной среды для выявления характерных режимов распространения и генерации гармоник.

Численные исследования по распространению лазерного излучения через газовую среду проводились с помощью модели URPE. Лазерное излучение имело длину волны $\lambda = 4,5$ мкм, длительность 240 фс и фокусировалось линзой (рассчитывалось аналитически) с фокусным расстоянием $f = 15$ см в среду длиной $L = 7$ мм, так что конфокальный параметр составлял $b = 0,74$ см. Энергия импульса варьировалась в пределах от 0,8 до 1,4 мДж (интенсивность

излучения в фокусе от $4,5 \cdot 10^{13}$ Вт/см² до $7,8 \cdot 10^{13}$ Вт/см²). В качестве газовой среды был выбран аргон (*Ar*), при этом использовались следующие значения параметров среды: плотность атомов $\rho_{at} = p \cdot 2,4 \cdot 10^{19}$ см⁻³, где p – давление, выраженное в барах, показатель преломления $n_0 = 1 + 6,43 \cdot 10^{-5} + \frac{2,86 \cdot 10^{-2}}{144 - 1/\lambda^2} \cdot p$ [219], нелинейный показатель преломления $n_2 = p \cdot 10^{-18}$ см²/Вт [220], частоты столкновения электронов $\nu_e = p \cdot 10^{-3}$ фс⁻¹, потенциал ионизации $U_{ion} \approx 15,7$ эВ. Давления газовой среды выбиралось в диапазоне от 1 до 24 бар, температура соответствовала комнатной (300 К). При этом предполагалось, что газовая среда однородная, без градиентов плотности.

При распространении лазерного излучения через газовую среду происходит сразу несколько нелинейных процессов: 1) перекачка энергии из одной спектральной компоненты в другую за счет кубичной нелинейности, 2) поглощение лазерной энергии вследствие генерации свободных носителей заряда, 3) фазовая модуляция и поглощение вследствие столкновительного движения свободных носителей под действием лазерного поля. Наличие сразу нескольких факторов, влияющих на изменение поля основной частоты и гармоник, заметно усложняет выявление физических механизмов генерации когерентного излучения и трансформации его свойств. Поэтому требуется рассмотрение таких условий (значений давления среды и энергии импульса), при которых удастся разделить вклады от разных факторов.

Поглощение лазерного излучения при его распространении через среду обусловлено как током свободных носителей (27), так и фотоионизацией (33). При этом, как следует из выражения (27), составляющая тока, определяющая поглощение, пропорциональна $\frac{\nu_e \rho \mathcal{E}}{\nu_e^2 + \omega^2}$,

поэтому поглощение лазерной энергии пропорционально $\frac{\nu_e \rho |\mathcal{E}|^2}{\nu_e^2 + \omega^2}$. Пренебрегая в этом

выражении частотой столкновений свободных носителей заряда по сравнению с ω ($\omega = 0,414$ фс⁻¹ для $\lambda = 4,5$ мкм, тогда как $\nu_e \sim 10^{-3}$ фс⁻¹ для $p = 1$ бар) и учитывая, что $\nu_e \sim p$, получим, что поглощение вследствие тока свободных носителей пропорционально величине

$p^2 \cdot \frac{\rho}{\rho_{at}} \cdot I$, где $\frac{\rho}{\rho_{at}}$ – степень ионизации среды. Поглощение же вследствие фотоионизации

при малой степени ионизации среды зависит исключительно от интенсивности излучения. В итоге, суммарное поглощение квадратично зависит от давления (a_1 и a_2 – некоторые коэффициенты):

$$A \sim a_1 \cdot \frac{W(I)}{I} + a_2 \cdot p^2 \cdot \frac{\rho}{\rho_{cr}} \cdot I. \quad (97)$$

На Рисунке 4.8а показана рассчитанная эволюция интенсивности лазерного излучения на оси распространения для двух выбранных значений энергии: 0,8 мДж (сплошные и точечные линии) и 1,4 мДж (штриховые линии) в интервале давлений от 1 до 24 бар. При низкой энергии (0,8 мДж) наблюдается плавный рост и падение интенсивности, связанные с фокусировкой пучка. При этом в начале распространения поглощение лазерного излучения мало, что видно из сравнения сплошных и точечных линий на Рисунке 4.8. Небольшое увеличение максимума интенсивности с ростом давления среды связано с самофокусировкой, поскольку нелинейный показатель преломления пропорционален плотности атомов газа, т.е. давлению среды. При высокой энергии (1,4 мДж) наблюдается сильное поглощение излучения, начиная с самого начала распространения, что согласуется с выражением (97). Таким образом, можно считать, что при энергии 0,8 мДж в начале распространения лазерного импульса практически не происходит его поглощения. Поэтому результаты расчетов при энергии 0,8 мДж удобно использовать для анализа влияния по отдельности как кубической нелинейности, так и тока свободных носителей на генерацию низких гармоник.

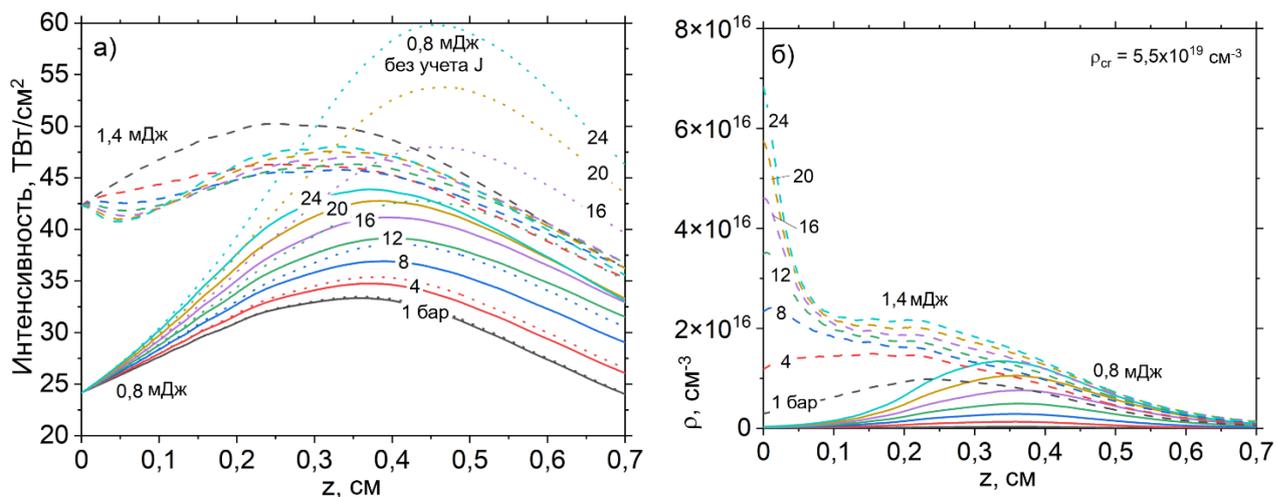


Рисунок 4.8. Эволюция а) интенсивности лазерного излучения и б) плотности генерируемых свободных носителей заряда на оси распространения. Сплошные линии соответствуют энергии импульса 0,8 мДж, штриховые – 1,4 мДж, точечные – 0,8 мДж и при отсутствии тока свободных носителей заряда и поглощения вследствие фотоионизации. Цвет линий соответствует давлению в диапазоне от 1 до 24 бар.

Заметим, что достигаемые значения плотности свободных носителей по крайней мере на 3 порядка меньше критической плотности $\rho_{cr} = \epsilon_0 m_e (\omega_0 / e)^2$, имеющей при длине волны 4,5 мкм значение $5,5 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$. Поэтому можно пренебречь отражением от возникающей

плазменной области, и использование приближения однонаправленности распространения импульса (модель URPE) оправдано.

В отличие от экспериментальных исследований, численные расчеты распространения излучения через среду позволяют получать информацию не только о спектральной интенсивности основной частоты и гармоник, но также и о фазе каждой спектральной компоненты. Обратим внимание на изменение фазы основной гармоники при распространении (Рисунок 4.9а) для тех же самых значений энергии импульса и давления, что и на Рисунке 4.8. При малой энергии (0,8 мДж) спектральная фаза изменяется в нешироких пределах, от 0,4 до 0,8 (Рисунок 4.9а). Согласно уравнению распространения URPE, в отсутствие всех нелинейных слагаемых, спектральная фаза основной гармоники должна расти с постоянной скоростью при распространении:

$$\left. \frac{\partial \varphi}{\partial z} \right|_{lin} (\omega_0, k_r = 0) = k(\omega_0) - k_0' \omega_0. \quad (98)$$

Скорость изменения фазы является по сути проекцией k_z волнового вектора на направление распространения. Эта величина в линейном случае должна быть пропорциональна давлению. Действительно, если учесть, что $n(\omega) \approx 1 + \alpha(\omega) \cdot p$, то получим:

$$\left. \frac{\partial \varphi}{\partial z} \right|_{lin} (\omega_0, k_r = 0) = \frac{\omega_0}{c} \left(n(\omega_0) - n(\omega_0) - \omega_0 \frac{\partial n}{\partial \omega}(\omega_0) \right) = -\frac{\omega_0^2}{c} \cdot \frac{\partial \alpha}{\partial \omega}(\omega_0) \cdot p. \quad (99)$$

На Рисунке 4.9б представлены проекции k_z волновых векторов на направление распространения, уменьшенные на величину (99). Можно отметить, что даже в отсутствие тока свободных носителей заряда \mathcal{J} и поглощения вследствие фотоионизации \mathcal{J}_{phion} (точечные кривые) имеется положительная добавка к k_z , обусловленная фазовой самомодуляцией (небольшие осцилляции, заметные на этих кривых, обусловлены применяемыми математическими методами сглаживания). Однако, при учете \mathcal{J} и \mathcal{J}_{phion} продольная компонента волнового вектора k_z существенно уменьшается в области более высокой интенсивности излучения и степени ионизации среды. При этом, как несложно подметить, это уменьшение проявляется тем сильнее, чем больше давление газа. Данная особенность напрямую следует из выражения для тока свободных носителей (27), если выразить из него мнимую компоненту тока свободных носителей (PM – phase modulation):

$$PM \sim \frac{i\omega\rho\mathcal{E}}{v_e^2 + \omega^2} \sim \rho \cdot \mathcal{E} \sim p \cdot \frac{\rho}{\rho_{at}} \cdot \sqrt{I}. \quad (100)$$

В случае же с большой энергией импульса (1,4 мДж) спектральная фаза изменяется в широких пределах (от +0,4 до -3,0, Рисунок 4.9а, штриховые кривые), что свидетельствует о

доминировании фазовой модуляции, возникающей вследствие тока свободных носителей, над фазовой самомодуляцией.

Приведенный выше анализ динамики спектральной фазы основной гармоники показывает возможность разделения вкладов различных типов нелинейностей в изменение спектральной фазы.

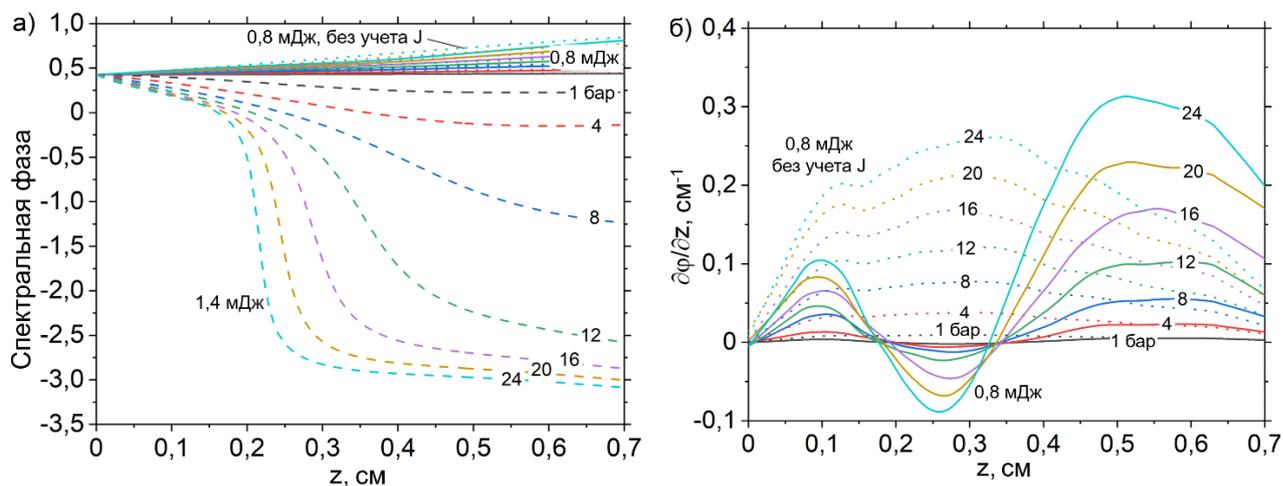


Рисунок 4.9. а) Спектральная фаза и б) продольная компонента волнового вектора поля основной гармоники для различных давлений (от 1 до 24 бар, отмечены цветом) и энергий импульса: 0,8 мДж (сплошные линии), 1,4 мДж (пунктирные линии), 0,8 мДж в отсутствие тока свободных носителей заряда и поглощения при фотоионизации (точечные линии).

Кривые на рисунке б) уменьшены на величину (99).

Как было отмечено выше, при рассмотрении вопроса фазового синхронизма при генерации гармоник требуется совместное рассмотрение нескольких вкладов в расстройку волнового вектора, имеющих различную природу: геометрическая фаза, атомная фаза, материальная дисперсия, фазовая самомодуляция, а также фазовая модуляция вследствие тока свободных носителей. Несколько упростить анализ фазового синхронизма можно, если проводить его в (ω, k_r) -пространстве. Таким способом удастся избавиться от влияния геометрической фазы, возникающей при переходе в (t, r) -пространство.

На Рисунке 4.10 представлены спектральные фазы третьей гармоники (ТГ). Как следует из решения уравнения UPPE для ТГ при рассмотрении только процесса $3\omega_0 = \omega_0 + \omega_0 + \omega_0$ и без учета фазовой самомодуляции основной гармоники и тока свободных носителей и поглощения:

$$\mathcal{E}(z, 3\omega_0, k_r = 0) = \int_0^z i \frac{(3\omega_0)^2 \chi^{(3)}}{2k(3\omega_0)\epsilon_0 c^2} \mathcal{E}^3(0, \omega_0, 0) e^{i(3k(\omega_0) - k_0' \omega_0)z'} e^{i(k(3\omega_0) - k_0' \omega_0)(z - z')} dz', \quad (101)$$

скорость набора спектральной фазы должна быть постоянной по z и увеличиваться с ростом давления p :

$$\left. \frac{\partial \varphi}{\partial z} \right|_{lin} (3\omega_0, k_r = 0) = \frac{3k(\omega_0) + k(3\omega_0)}{2} - k'_0 \omega_0 \sim p. \quad (102)$$

Наличие тока свободных носителей заряда \mathcal{J} и тока поглощения \mathcal{J}_{phion} уменьшает спектральную фазу и существенно изменяет продольную компоненту волнового вектора $k_z(3\omega_0)$ (Рисунок 4.10). При этом важно отметить, что в случае высокой энергии импульса (1,4 мДж) величина $k_z(3\omega_0)$ начинает принимать как отрицательные, так и положительные значения, затрудняя выполнение условия фазового синхронизма.

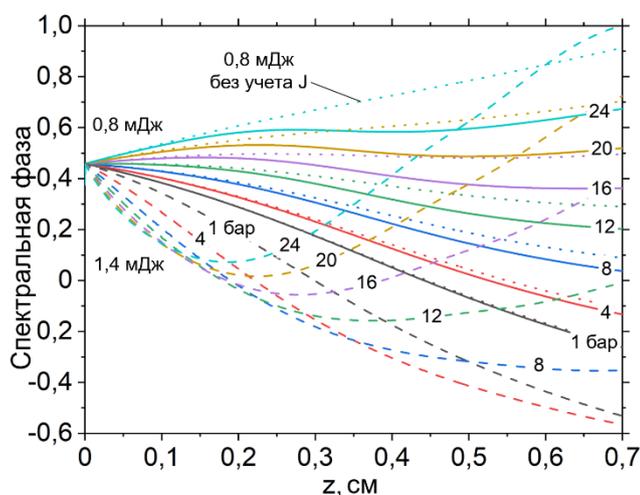


Рисунок 4.10. Изменение фазы третьей гармоники при распространении лазерного излучения в газовой среде. Сплошные кривые соответствуют энергии импульса 0,8 мДж, штриховые – 1,4 мДж, точечные – 0,8 мДж, но в отсутствие тока свободных носителей заряда и поглощения вследствие фотоионизации. Разные цвета соответствуют различным давлениям в диапазоне от 1 до 24 бар.

Практически во всех моделях генерации гармоник предполагается, что расстройка волнового вектора остается постоянной величиной. Прямой расчет разности $\Delta k = 3k_z(\omega_0) - k_z(3\omega_0)$, приведенный на Рисунке 4.11а (сплошные линии), наглядно показывает, что расстройка волнового вектора может изменяться в разы при распространении. Даже при давлении 1 бар, при котором практически отсутствует влияние \mathcal{J} и \mathcal{J}_{phion} , расстройка Δk принимает значения в диапазоне от 0,7 до 1,4 см^{-1} . Увеличение давления усиливает влияние \mathcal{J} и \mathcal{J}_{phion} , что приводит к уменьшению Δk в области до фокуса ($z < 0,35$ см), тем самым усиливая сигнал ТГ (Рисунок 4.12, сплошная кривая, 24 бар). В области после фокуса ($z > 0,35$ см) величина Δk существенно возрастает, и рост интенсивности ТГ

снижается. В случае же с большой энергией импульса (1,4 мДж), действие \mathcal{J} и \mathcal{J}_{phon} оказывается настолько сильным, что расстройка волновых векторов принимает большие отрицательные значения (Рисунок 4.11а, штриховые линии), на 1-2 порядка превосходящие по модулю расстройку волнового вектора при 0,8 мДж, причем именно в той области z , в которой фазовая модуляция вследствие тока свободных носителей заряда и поглощение оказываются наиболее сильными. В результате, после $z = 0,15$ см рост интенсивности ТГ практически прекращается (Рисунок 4.12, штриховые линии).

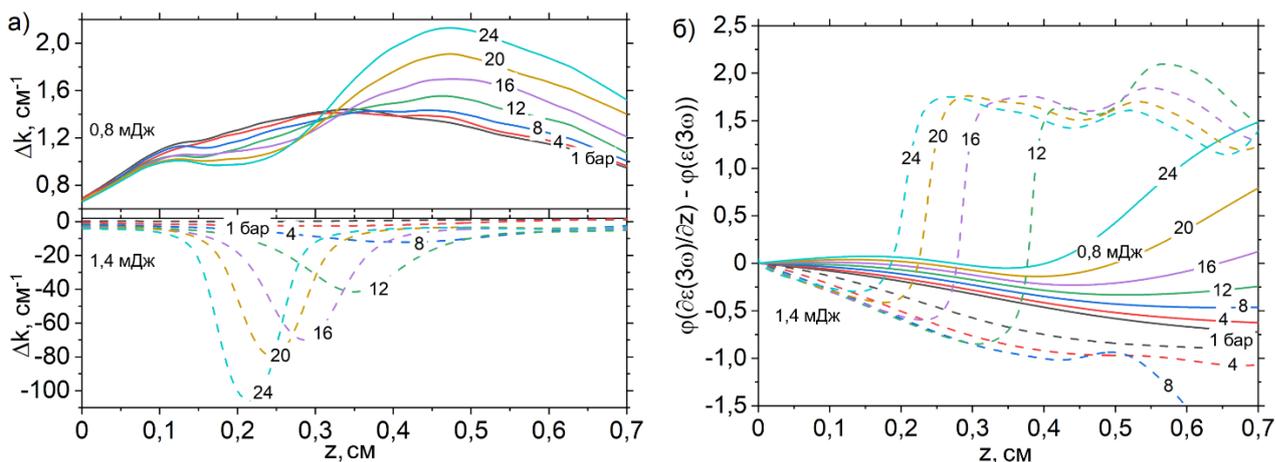


Рисунок 4.11. а) Изменение расстройки волновых векторов третьей гармоники и основной частоты и б) разность фазы третьей гармоники и фазы небольшой добавки к третьей гармонике при распространении лазерного излучения в газовой среде. Сплошные кривые соответствуют энергии импульса 0,8 мДж, штриховые – 1,4 мДж, точечные – 0,8 мДж, но в отсутствие тока свободных носителей заряда и поглощения вследствие фотоионизации.

Разные цвета соответствуют различным давлениям в диапазоне от 1 до 24 бар.

Помимо расчета расстройки волновых векторов, $\Delta k = 3k_z(\omega_0) - k_z(3\omega_0)$, полезным для анализа условий фазового синхронизма при генерации гармоники оказывается сравнение фазы гармоники и фазы правой части уравнения URPE. На комплексной плоскости это выражение является вектором $\partial\mathcal{E}(z, 3\omega_0, k_r)/\partial z$, добавляемым к вектору $\mathcal{E}(z, 3\omega_0, k_r)$ на каждом шаге по z . Генерация будет проходить более эффективной, если фаза (угол наклона) вектора $\partial\mathcal{E}/\partial z$ будет совпадать или будет периодически изменяться около значения фазы (угла наклона) вектора \mathcal{E} . Второй вариант соответствует квазифазовому согласованию в газовых струях, которое проявляется при генерации как гармоник [5, 7] так и терагерцового излучения [221]. На Рисунке 4.11б показаны разности этих фаз $\Delta\varphi$. В случае 0,8 мДж (сплошные линии) при малых давлениях (например, 1 бар) разность $\Delta\varphi$ монотонно изменяется с z , соответствуя генерации гармоники при постоянной расстройке волновых векторов. При высоких давлениях

(например, 24 бар) наблюдаются осцилляции $\Delta\varphi$ около нулевого значения в области $z < 0,4$ см, поэтому сигнал гармоники (Рисунок 4.12, сплошная линия, 24 бар) резко возрастает. Однако в области $z > 0,4$ см наблюдается насыщение вследствие увеличивающегося расхождения фаз $\Delta\varphi$. В случае же энергии 1,4 мДж в силу высокого поглощения и влияния тока свободных носителей заряда, разность фаз $\Delta\varphi$ сильно отклоняется от нуля на протяжении всего распространения лазерного излучения. Единственное наблюдаемое на Рисунке 4.12 (штриховые линии) увеличение сигнала гармоники связано с компенсацией начальной отрицательной разности фаз $\Delta\varphi$ положительными значениями, например, в области $z < 0,25$ для давления 24 бар.

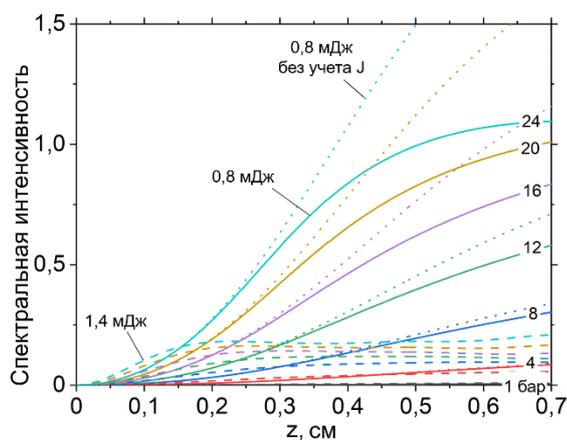


Рисунок 4.12. Спектральная интенсивность третьей гармоники при распространении лазерного излучения в газовой среде. Коэффициент преобразования в третью гармонику составляет $5,9 \cdot 10^{-4}$ (при энергии 0,8 мДж и давлении 1 бар) и $2,6 \cdot 10^{-3}$ (при энергии 1,4 мДж и давлении 1 бар). Сплошные кривые соответствуют энергии импульса 0,8 мДж, штриховые – 1,4 мДж, точечные – 0,8 мДж, но в отсутствие тока свободных носителей заряда и поглощения вследствие фотоионизации. Разные цвета соответствуют различным давлениям в диапазоне от 1 до 24 бар.

Законы масштабирования поглощения (97) и фазовой модуляции (100) вследствие тока свободных носителей заряда определяют, таким образом, связь параметров среды и лазерного излучения (давления, интенсивности и степени ионизации), которые существенным образом влияют на фазовый синхронизм при генерации третьей гармоники. Эти законы позволяют выявить области значений параметров, при которых сигнал третьей гармоники увеличивается при распространении лазерного излучения.

Представленные результаты неспецифичны для среднего инфракрасного диапазона и могут быть перенесены и на другой спектральный диапазон лазерного излучения. Кроме того, проведенный анализ фазового согласования может быть распространен и на процесс

генерации пятой и седьмой гармоник, а также гармоник более высокого порядка, что позволит естественным образом исследовать способы увеличения эффективности их генерации.

4.3. Непертурбативный подход к описанию возбуждения атомов среды лазерным полем

Все квантово-механические подходы по определению динамики связанных и свободных носителей заряда так или иначе связаны с решением уравнения Шредингера и поиском волновой функции электрона. При этом используется одноэлектронное приближение (SAE – Single Active Electron), т.е. рассматривается задача о нахождении волновой функции одного электрона, находящегося в кулоновском поле атома без этого электрона (в кулоновском поле остальных атомов), а также внешнего лазерного поля. Рассмотрим газовые среды, в которых влиянием остальных атомов можно пренебречь в силу их большого удаления от рассматриваемого электрона. Возникающая задача «об атоме в поле» (поиск волновой функции электрона, находящегося в кулоновском поле атомного остова и лазерного поля) может быть решена в различных приближениях. Наиболее распространенным является дипольное приближение, в котором взаимодействие электрона с лазерным полем может рассматриваться как малая поправка к решению задачи «о свободном атоме». Однако в интенсивных лазерных полях (при интенсивностях порядка 10^{13} - 10^{14} Вт/см²) взаимодействие с лазерным полем может быть существенным, и метод последовательных приближений становится неприменимым. В этом разделе дается краткое описание непертурбативной теории отклика одиночного атома на интенсивное лазерное поле [59], не использующей условие малости взаимодействия электрона с лазерным полем.

Волновая функция $\psi(\vec{r}, t)$ валентного электрона в атоме, находящемся в лазерном поле, является решением нестационарного уравнения Шредингера:

$$i\hbar \frac{\partial \psi(\vec{r}, t)}{\partial t} = \left(\frac{1}{2m_e} \left(\vec{p} - \frac{q}{c} \vec{A}(\vec{r}, t) \right)^2 + U(\vec{r}) \right) \psi(\vec{r}, t), \quad (103)$$

где $U(\vec{r})$ – потенциальная энергия внутриатомного поля, $\vec{A}(\vec{r}, t) = -c \int_{-\infty}^t \vec{E}(\vec{r}, t') dt'$ – векторный потенциал лазерного поля, \vec{p} – оператор импульса, \hbar – постоянная Планка, c – скорость света в вакууме, q и m_e – заряд и масса электрона соответственно. Рассматриваются нерелятивистские интенсивности, так что действием магнитного поля можно пренебречь. Используется калибровка скорости, т.е. скалярный потенциал электрического поля равен нулю.

Волновая функция $\psi(\vec{r}, t)$ может быть разложена по базису собственных функций $\{u_n(\vec{r})\}$ стационарного уравнения Шредингера, записанного для электрона, находящегося в кулоновском поле атомного остова (задача «о свободном атоме»):

$$\psi(\vec{r}, t) = \sum_n a_n(t) u_n(\vec{r}). \quad (104)$$

$$\left(\frac{(\vec{p})^2}{2m_e} + U(\vec{r}) \right) u_n(\vec{r}) = E_n u_n(\vec{r}). \quad (105)$$

С другой стороны, если изменить все волновые функции базиса $\{u_n(\vec{r})\}$ путем преобразования

$$\tilde{\varphi}_n(\vec{r}, t) = \exp\left(i \frac{q}{\hbar c} \chi(\vec{r}, t)\right) u_n(\vec{r}), \quad (106)$$

где $\chi(\vec{r}, t)$ – произвольная функция, то полученные функции являются собственными функциями следующей задачи, причем их собственные значения такие же, как и у базиса $\{u_n(\vec{r})\}$:

$$\left(\frac{1}{2m_e} \left(\vec{p} - \frac{q}{c} \vec{\nabla} \chi(\vec{r}, t) \right)^2 + U(\vec{r}) \right) \tilde{\varphi}_n(\vec{r}, t) = E_n \tilde{\varphi}_n(\vec{r}, t). \quad (107)$$

Путем линейной комбинации этих собственных функций $\tilde{\varphi}_n(\vec{r}, t)$ можно образовать базис $\{\varphi_n(\vec{r}, t)\}$. При этом связь между двумя базисами будет задаваться следующим унитарным преобразованием:

$$\begin{aligned} \varphi_n(\vec{r}, t) &= \sum_m (V^{-1})_{nm}(t) u_m(\vec{r}), \\ u_n(\vec{r}) &= \sum_m V_{nm}(t) \varphi_m(\vec{r}, t), \\ V_{nm}(t) &= \int u_n^*(\vec{r}) \exp\left(-i \frac{q}{\hbar c} \vec{A}(t) \cdot \vec{r}\right) u_m(\vec{r}) d^3\vec{r}, \\ \hat{V}(\vec{r}, t) &= \exp\left(-i \frac{q}{\hbar c} \vec{A}(t) \cdot \vec{r}\right). \end{aligned} \quad (108)$$

В предположении $\vec{A}(\vec{r}, t) \approx \vec{A}(t)$ выберем $\chi(\vec{r}, t) = \vec{A}(t) \cdot \vec{r}$. Тогда задача «об атоме в поле» имеет собственные функции $\{\varphi_n(\vec{r}, t)\}$, а волновая функция $\psi(\vec{r}, t)$ может быть разложена по этому базису $\{\varphi_n(\vec{r}, t)\}$:

$$\psi(\vec{r}, t) = \sum_n b_n(t) \varphi_n(\vec{r}). \quad (109)$$

Подставив разложение волновой функции (104) в нестационарное уравнение Шредингера (103), с учетом (108), получим систему обыкновенных дифференциальных уравнений 1-го порядка для амплитуд населенностей уровней энергии атома:

$$\frac{da_n}{dt} = -\frac{i}{\hbar} \sum_{m,p} V_{nm}^{-1}(t) E_m V_{mp}(t) \cdot a_p(t). \quad (110)$$

В случае сильного возбуждения атомов, когда необходимо учитывать также переходы электронов на уровни из непрерывного спектра, разложение волновой функции по базису $\{u_n(\vec{r})\}$ следует дополнить линейной комбинацией волновых функций из непрерывного спектра (l – угловой момент):

$$\psi(\vec{r}, t) = \sum_n a_n(t) u_n(\vec{r}) + \sum_l \int a(k, l, t) u(k, l, \vec{r}) dk. \quad (111)$$

При этом система обыкновенных дифференциальных уравнений на амплитуды населенностей уровней $a_n(t)$ усложняется:

$$\begin{aligned} \frac{da_n}{dt} = & -\frac{i}{\hbar} \sum_{m,p} V_{nm}^{-1}(t) E_m V_{mp}(t) \cdot a_p(t) - \frac{i}{\hbar} \sum_{m,l} \int dk V_{nm}^{-1}(t) E_m V_{m(kl)}(t) \cdot a(k, l, t) - \\ & -i \sum_{p,l} \int dk V_{n(kl)}^{-1}(t) \frac{\hbar k^2}{2m_e} V_{(kl)p}(t) \cdot a_p(t) - i \sum_{l_1, l_2} \int dk_1 \int dk_2 V_{n(k_1 l_1)}^{-1}(t) \frac{\hbar k_1^2}{2m_e} V_{(k_1 l_1)(k_2 l_2)}(t) \cdot a(k_2, l_2, t). \end{aligned} \quad (112)$$

Здесь учтены различные комбинации переходов (Д – дискретный уровень, К – континуумный уровень): Д-Д-Д (первое слагаемое в правой части), Д-Д-К (второе слагаемое), Д-К-Д (третье слагаемое), Д-К-К (четвертое слагаемое). Аналогичным образом записываются уравнения на амплитуды населенностей $a(k, l, t)$ континуумных уровней (учитываются переходы К-Д-Д, К-Д-К, К-К-Д и К-К-К):

$$\begin{aligned} \frac{da(k, l, t)}{dt} = & -\frac{i}{\hbar} \sum_{m,p} V_{(kl)m}^{-1}(t) E_m V_{mp}(t) \cdot a_p(t) - \frac{i}{\hbar} \sum_{m, l_1} \int dk_1 V_{(kl)m}^{-1}(t) E_m V_{m(k_1 l_1)}(t) \cdot a(k_1, l_1, t) - \\ & -i \sum_{l_1, p} \int dk_1 V_{(kl)(k_1 l_1)}^{-1}(t) \frac{\hbar k_1^2}{2m_e} V_{(k_1 l_1)p}(t) \cdot a_p(t) - i \sum_{l_1, l_2} \int dk_1 \int dk_2 V_{(kl)(k_1 l_1)}^{-1}(t) \frac{\hbar k_1^2}{2m_e} V_{(k_1 l_1)(k_2 l_2)}(t) \cdot a(k_2, l_2, t). \end{aligned} \quad (113)$$

Заметим, что система уравнений (112) и (113) содержит в себе в общем случае бесконечное количество уравнений, определяющих динамику амплитуд населенностей как дискретного, так и непрерывного спектра атома. Конечно же для численного решения полученной системы количество уравнений необходимо ограничить. Количество состояний, которое необходимо учитывать зависит как от параметров лазерного поля, так и от самой энергетической структуры атома. Ограничение количества уровней естественным образом делает базис $\{u_n(\vec{r})\}$ неполным. Однако существует способ определить насколько оставшийся, усеченный базис является полным.

Рассмотрим величину

$$S_n^{(N)} = \sum_{m=1}^N |V_{nm}|^2. \quad (114)$$

Если учитывать весь бесконечный набор собственных функций, то, как следует из определения матричных элементов V_{nm} , величина (114) должна быть равна единице: $S_n^{(\infty)} = 1$. Ограничение базиса $\{u_n(\vec{r})\}$ приводит к уменьшению величины $S_n^{(N)}$. Поэтому, добавляя в рассмотрение дополнительные уровни и добиваясь малого отличия $S_n^{(N)}$ от единицы для всех рассматриваемых уровней, можно считать усеченный базис полным.

Заметим также, что квантово-механический подход, представленный выше, позволяет учесть многоквантовость процесса возбуждения атома лазерным полем. Действительно, разлагая оператор $\hat{V}(\vec{r}, t)$ в ряд по степеням поля, получим бесконечную сумму все возрастающих порядков приближения (при малости взаимодействия электрона с лазерным полем):

$$\hat{V}(\vec{r}, t) = \exp\left(-i \frac{q}{\hbar c} \vec{A}(t) \cdot \vec{r}\right) = \sum_{k=0}^{\infty} \frac{1}{k!} \left(-i \frac{q}{\hbar c} \vec{A}(t) \cdot \vec{r}\right)^k. \quad (115)$$

Рассмотрим вопрос генерации возбужденным атомом когерентного излучения. Динамика амплитуд населенностей уровней энергии формирует микроскопическую плотность тока атома:

$$\vec{j}(\vec{r}, t) = \frac{q}{2m} \left[\psi^*(\vec{r}, t) \left(\vec{p} - \frac{q}{c} \vec{A}(t)\right) \psi(\vec{r}, t) + \psi(\vec{r}, t) \left(\left(\vec{p} - \frac{q}{c} \vec{A}(t)\right) \psi(\vec{r}, t)\right)^* \right], \quad (116)$$

которая с учетом (104) и (108), сводится к четверной сумме (для простоты рассмотрим только связанные состояния):

$$\vec{j}(\vec{r}, t) = \frac{q}{m_e} \sum_{n,k,p,m} a_n^*(t) V_{nk}^{-1}(t) u_k^*(\vec{r}) \vec{p} u_p(\vec{r}) V_{pm}(t) a_m(t). \quad (117)$$

Микроскопический ток атома является источником электрического и магнитного поля. В дальней зоне спектральная плотность интенсивности излучения будет равна [222]:

$$\frac{dI}{d\omega d\sigma}(\vec{r}) = \frac{\omega^2}{4c^3} \left| \int \left[\vec{j}(\vec{r}', \omega) \times \frac{\vec{r}}{r} \right] e^{-i\vec{k}\vec{r}} dV' \right|^2, \quad (118)$$

где k – волновой вектор поля излучения. В случае, когда $ka_0 \ll 1$ (a_0 – амплитуда колебаний электрона в лазерном поле) для всех частот генерируемого поля, спектральная интенсивность излучения пропорциональна макроскопическому току атома $\vec{J}(\omega) = \int \vec{j}(\vec{r}, t) dV$:

$$\frac{dI}{d\omega d\sigma}(\vec{r}) = \frac{\omega^2}{4c^3} \left[\left[\vec{J}(\omega) \times \frac{\vec{r}}{r} \right] \right]^2. \quad (119)$$

В заключение отметим, что матричные элементы $V_{nm}(t)$ могут быть рассчитаны в аналитическом виде для атома водорода и водородоподобных атомов, либо численно для модельного атома при любом заданном векторном потенциале лазерного поля $\vec{A}(t)$. Таким образом, система уравнений (110) (или (112) и (113)) позволяет численно рассчитать динамику амплитуд населенностей уровней энергии под действием лазерного поля, а выражение (119) – рассчитать в дальней зоне спектр генерируемого одиночным атомом излучения. Данный непertурбативный подход накладывает ограничение лишь на величину интенсивности лазерного поля – она должна быть меньше релятивистской (для выбранной длины волны).

4.4. Вычисление нелинейной восприимчивости газовой среды

В данном разделе проводится применение непertурбативной теории отклика одиночного атома на лазерное поле [59] к аналитическому расчету нелинейной восприимчивости газовой среды. Непertурбативный подход позволяет рассчитать населенность энергетических уровней атома с учетом произвольного порядка мультипольности взаимодействия атома с лазерным полем. Ранее этот подход успешно применялся для анализа поляризационных и спектральных особенностей генерируемого атомом когерентного излучения (как гармоник высокого порядка, так и терагерцового излучения) [6, 60, 61], а также поиска новых способов фазового согласования излучения гармоник высокого порядка в газовых средах [7].

Микроскопический ток $\vec{j}(\vec{r}, t)$, рассчитываемый по формуле (117), по результатам решения системы уравнений (110) на амплитуду населенности уровней энергии, формирует электрическое поле $\vec{E}_{resp}(\vec{r}, t)$ в области пространства вне атома (в лоренцевской калибровке потенциалов электромагнитного поля и в системе единиц СИ):

$$\begin{aligned} \vec{E}_{resp}(\vec{r}, t) = & -\frac{1}{4\pi\epsilon_0 c^2} \int \left(\frac{\partial \vec{j}(\vec{r}', t')}{\partial t} - \vec{n}' \left(\frac{\partial \vec{j}(\vec{r}', t')}{\partial t} \cdot \vec{n}' \right) \right) \frac{dV'}{|\vec{r} - \vec{r}'|} + \\ & + \frac{1}{4\pi\epsilon_0 c} \int \vec{n}' (\vec{j}(\vec{r}', t') \cdot \vec{n}') \frac{dV'}{|\vec{r} - \vec{r}'|^2} + \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \int \vec{n}' \rho(\vec{r}', t') \frac{dV'}{|\vec{r} - \vec{r}'|^2}, \end{aligned} \quad (120)$$

где $\vec{n}' = \frac{\vec{r} - \vec{r}'}{|\vec{r} - \vec{r}'|}$, $t' = t - \frac{|\vec{r} - \vec{r}'|}{c}$, величина $\rho(\vec{r}', t')$ является электронной плотностью:

$$\rho(\vec{r}, t) = \psi^*(\vec{r}, t)\psi(\vec{r}, t) = \sum_{n,m} a_n^*(t)u_n^*(\vec{r})u_m(\vec{r})a_m(t), \quad (121)$$

а вектор \vec{r} направлен из центра атома в точку, где определяется значение поля отклика. Обозначим этот вектор как \vec{r}_i , а через \vec{R}_i – радиус-вектор положения атома. Применение Фурье-преобразования упрощает вычисление электрического поля:

$$\begin{aligned} \vec{E}_{resp,i}(\vec{r}_i, \omega) = & -\frac{i\omega}{4\pi\epsilon_0 c^2} \int \frac{\vec{j}(\vec{r}_i', \omega) - \vec{n}_i'(\vec{j}(\vec{r}_i', \omega) \cdot \vec{n}_i')}{|\vec{r}_i - \vec{r}_i'|} \exp\left(\frac{i\omega}{c}|\vec{r}_i - \vec{r}_i'|\right) d^3\vec{r}_i' \\ & + \frac{1}{4\pi\epsilon_0 c} \int \frac{\vec{n}_i'(\vec{j}(\vec{r}_i', \omega) \cdot \vec{n}_i')}{|\vec{r}_i - \vec{r}_i'|^2} \exp\left(\frac{i\omega}{c}|\vec{r}_i - \vec{r}_i'|\right) d^3\vec{r}_i' + \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \int \frac{\vec{n}_i' \rho(\vec{r}_i', \omega)}{|\vec{r}_i - \vec{r}_i'|^2} \exp\left(\frac{i\omega}{c}|\vec{r}_i - \vec{r}_i'|\right) d^3\vec{r}_i'. \end{aligned} \quad (122)$$

Для расчета восприимчивости среды необходимо сложить электрические поля, генерируемые в данной точке $\vec{r} = (r, \theta, \varphi)$ всеми атомами среды, а затем провести усреднение по этим точкам. Значение поля отклика атома зависит только от положения вектора \vec{r}_i в системе отсчета атома. Мысленно перенесем все атомы в начало координат, тогда вектора \vec{r}_i будут в точности совпадать с положением атомов в пространстве в исходной картине. Для ясности последующего изложения совместим направление распространения лазерного поля с ортом \vec{e}_z , направление поляризации лазерного поля – с ортом \vec{e}_x , через $\vec{r} = (r, \theta, \varphi)$ обозначим указанные выше вектора \vec{r}_i , систему отсчета атома $\{\vec{e}_{x'}, \vec{e}_{y'}, \vec{e}_{z'}\}$ расположим так, чтобы $\vec{e}_{z'} = \vec{e}_z$, а орт $\vec{e}_{x'}$ был повернут относительно \vec{e}_y на угол $\varphi_{x'}$. (Рисунок 4.13). Тогда усредненное поле отклика атомов среды будет результатом суммирования поля (122), во-первых, по вектору $\vec{r} = (r, \theta, \varphi)$, а, во-вторых, по углу $\varphi_{x'}$:

$$\langle \vec{E}_{resp}(\omega) \rangle = n_{at} \int_{r_0}^{\infty} r^2 e^{-\gamma r} dr \int_0^{\pi} \sin\theta d\theta \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^{2\pi} \frac{d\varphi_{x'}}{2\pi} \vec{E}_{resp}(\vec{r}, \omega), \quad (123)$$

где $n_{at} = \frac{p}{k_B T}$ – концентрация атомов среды, p – давление газовой среды, k_B – постоянная Больцмана, T – температура, $r_0 = \sqrt[3]{1/n_{at}}$ – половина среднего расстояния между атомами. При этом, так как интегрирование по r проводится в бесконечно больших пределах, то в выражении (122) необходимо учесть фазу лазерного поля $e^{i\omega z/c}$. Дополнительный множитель $e^{-\gamma r}$ обусловлен потерей когерентности в полях отклика атомов, расположенных на больших расстояниях r , при этом значение параметра γ оказывается незначительным.

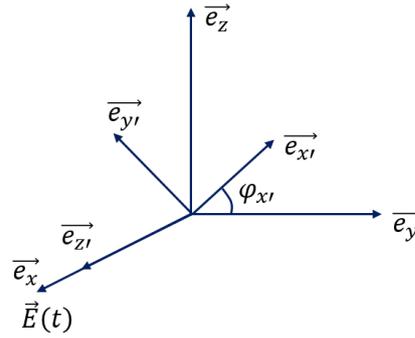


Рисунок 4.13. Выбор системы отсчета атома при вычислении поля отклика атома на лазерное поле.

Выражение (117) для плотности микроскопического тока $\vec{j}(\vec{r}', \omega)$ содержит оператор \vec{p} , который в дипольном приближении может быть представлен через оператор координаты \vec{r}' : $u_l^*(\vec{r}') \vec{p} u_p(\vec{r}') = u_l^*(\vec{r}') \frac{i m_e}{\hbar} (E_l - E_p) \vec{r}' u_p(\vec{r}')$. Поэтому направление вектора плотности микроскопического тока совпадает с направлением радиус-вектора: $\vec{j}(\vec{r}', \omega) = \tilde{j}(r', \omega) \vec{r}'$. Проведем усреднение по переменным $\varphi_x, \varphi, \theta, r$ с учетом этого.

В приближении $r' \ll \frac{c}{\omega} \sim \lambda$ и $r' \ll r$, удерживая слагаемые до порядка $\frac{r'}{r}$ включительно,

получаем следующие выражения, входящие в (122):

$$\begin{aligned}
 \frac{\vec{r}' - \vec{n}'(\vec{r}' \cdot \vec{n}')}{|\vec{r}' - \vec{r}'|^2} \exp\left(\frac{i\omega}{c} |\vec{r}' - \vec{r}'|\right) &\approx e^{i\omega r'/c} \left(\frac{\vec{r}'}{r} - \frac{\vec{r}'(\vec{r}' \cdot \vec{r}')}{r^3} \right) \xrightarrow{\int d\varphi \int d\varphi_x} \frac{r' \cos \theta'}{r} e^{i\omega r'/c} \left(1 - \frac{\sin^2 \theta}{2} \right) \vec{e}_x, \\
 \frac{\vec{n}'(\vec{r}' \cdot \vec{n}')}{|\vec{r}' - \vec{r}'|^2} \exp\left(\frac{i\omega}{c} |\vec{r}' - \vec{r}'|\right) &\approx e^{i\omega r'/c} \frac{\vec{r}'(\vec{r}' \cdot \vec{r}')}{r^4} \xrightarrow{\int d\varphi \int d\varphi_x} \frac{r' \cos \theta'}{r^2} e^{i\omega r'/c} \frac{\sin^2 \theta}{2} \vec{e}_x, \\
 \frac{\vec{n}'}{|\vec{r}' - \vec{r}'|^2} \exp\left(\frac{i\omega}{c} |\vec{r}' - \vec{r}'|\right) &\approx \frac{1}{r^2} e^{i\omega r'/c} \left(\frac{\vec{r}}{r} - \frac{\vec{r}'}{r} + \frac{\vec{r}'(\vec{r}' \cdot \vec{r}')}{r^3} \left(2 - \frac{i\omega r}{c} \right) \right) \xrightarrow{\int d\varphi \int d\varphi_x} \\
 \frac{r' \cos \theta'}{r^3} e^{i\omega r'/c} \left(-1 + \frac{\sin^2 \theta}{2} \left(2 - \frac{i\omega r}{c} \right) \right) \vec{e}_x.
 \end{aligned} \tag{124}$$

Усреднение по углу θ проводится с учетом пространственной фазы лазерного поля $e^{i\omega_0 z/c} = e^{i\omega_0 r \cos \theta/c}$ вдоль направления распространения излучения. Поскольку нелинейная восприимчивость k -го порядка содержит лазерное поле в k -й степени, то и фазовый множитель будет в этой степени. Тогда для усреднения поля отклика атомов по углу θ используем следующие выражения:

$$\begin{aligned}
\int_0^\pi \sin \theta e^{ib \cos \theta} d\theta &= 2 \frac{\sin b}{b}, \\
\int_0^\pi \sin^3 \theta e^{ib \cos \theta} d\theta &= \frac{4}{b^2} \left(\frac{\sin b}{b} - \cos b \right), \\
b &= \frac{k\omega_0 r}{c}.
\end{aligned} \tag{125}$$

Усредненное электрическое поле отклика атомов среды $\langle \vec{E}_{resp}(\omega) \rangle$ на внешнее лазерное поле $\vec{E}(\omega)$, задаваемое векторным потенциалом $\vec{A}(\omega)$, является по сути поляризацией среды $\vec{P}(\omega) = \varepsilon_0 \langle \vec{E}_{resp}(\omega) \rangle$, которая определяет тензор нелинейной восприимчивости различных порядков:

$$\langle \vec{E}_{resp}(\omega) \rangle_s = \frac{1}{(\sqrt{2\pi})^{k-1}} \sum_{k=1}^{+\infty} \int d\omega_1 \dots d\omega_{k-1} \cdot \chi_{s, s_1 s_2 \dots s_k}^{(k)}(\omega, \omega_1, \dots, \omega_{k-1}) E_{s_1}(\omega - \omega_1) E_{s_2}(\omega_1 - \omega_2) \dots E_{s_k}(\omega_{k-1}). \tag{126}$$

Заметим, что подобное разложение отклика среды по степеням внешнего поля, строго говоря, справедливо только при малых значениях напряженности внешнего поля. Поэтому при получении аналитического разложения тока $\vec{j}(\vec{r}', \omega)$ по степеням лазерного поля будем считать населенность возбужденных состояний малой по сравнению с населенностью основного состояния:

$$\begin{cases} a_0(t) = 1, \\ a_n(t) = 0, n > 0. \end{cases} \tag{127}$$

Разложим экспоненту, содержащуюся в выражении (115), в ряд:

$$V_{nm}(t) = \sum_{k=0}^{\infty} \frac{1}{k!} \left(-\frac{iq}{\hbar c} \right)^k \int u_n^*(\vec{r}') (A(t) r_z')^k u_m(\vec{r}') d^3 \vec{r}' = \sum_{k=0}^{\infty} \frac{1}{k!} \left(-\frac{iq}{\hbar c} \right)^k A^k(t) (r_z^k)_{nm}. \tag{128}$$

Будем считать лазерное поле гармоническим $E(t) = \frac{E_a}{2} (e^{i\omega_0 t} + e^{-i\omega_0 t})$. Тогда его Фурье-

образ есть $E(\omega) = \frac{\sqrt{2\pi}}{2} E_a (\delta(\omega - \omega_0) + \delta(\omega + \omega_0))$, а векторный потенциал и его k -я степень

будут иметь вид:

$$A(t) = i \frac{c}{2\omega_0} E_a (e^{i\omega_0 t} - e^{-i\omega_0 t}), \quad A^k(t) = \left(i \frac{c}{2\omega_0} \right)^k E_a^k \sum_{k_1=0}^k C_k^{k_1} (-1)^{k_1} e^{i(k-2k_1)\omega_0 t}. \tag{129}$$

Здесь и далее $C_k^{k_1} = \frac{k!}{k_1!(k-k_1)!}$ – число сочетаний. При решении системы уравнений

(110) на амплитуды населенностей уровней энергии и вычислении плотности

микроскопического тока (117) необходимо рассчитывать множители вида $V_{nl}^{-1}V_{pm}(t)$. При этом оператор \hat{V} в силу его определения является унитарным. Кроме того, как следует из разложения (128), матричные элементы $(r_z^k)_{nm}$ являются вещественными и симметричными относительно перестановки индексов. Тогда множители $V_{nl}^{-1}V_{pm}(t)$ с учетом (129) приводятся к виду:

$$V_{nl}^{-1}V_{pm}(t) = \sum_{k=0}^{\infty} \left(\frac{qE_a}{\hbar\omega_0} \right)^k \frac{1}{2^k} R_{nl,pm}^k \sum_{k_3=0}^k C_k^{k_3} (-1)^{k_3} e^{i(k-2k_3)\omega_0 t},$$

$$R_{nl,pm}^k = \sum_{k_1}^k \frac{(-1)^{k_1}}{k_1!(k-k_1)!} (r_z^{k_1})_{nl} (r_z^{k-k_1})_{pm}.$$
(130)

Матричные элементы $R_{nl,pm}^k$ являются вещественными числами и, в силу своей структуры, антисимметричными относительно перестановки пар индексов nl и pm : $R_{nl,pm}^k = (-1)^k R_{pm,nl}^k$. В силу же симметрии матричных элементов $(r_z^k)_{nm}$ относительно перестановки индексов, матричные элементы $R_{nl,pm}^k$ являются симметричными относительно перестановки индексов внутри пар индексов: $R_{nl,pm}^k = R_{ln,pm}^k = R_{nl,mp}^k$.

В первом порядке малости по a_n/a_0 , полагая $a_0(t) \approx e^{-iE_0 t/\hbar}$, уравнения динамики населенностей уровней с учетом (130) запишутся в виде:

$$\frac{da_n}{dt} \approx \sum_m \left(-\frac{iE_m}{\hbar} \right) \sum_{k=0}^{\infty} \left(\frac{qE_a}{\hbar\omega_0} \right)^k \frac{R_{0m,m0}^k}{2^k} \sum_{k_1=0}^k C_k^{k_1} (-1)^{k_1} e^{i(k-2k_1)\omega_0 t} e^{-iE_0 t/\hbar}.$$
(131)

Решением этих уравнений будет:

$$a_0(t) \approx e^{-iE_0 t/\hbar} + \sum_m \left(\frac{E_m}{\hbar\omega_0} \right) \sum_{k=1}^{\infty} \left(\frac{qE_a}{\hbar\omega_0} \right)^k \frac{R_{0m,m0}^k}{2^k} \sum_{k_1=0}^k C_k^{k_1} (-1)^{k_1} \frac{1 - e^{i(k-2k_1-E_0/\hbar\omega_0)\omega_0 t}}{k-2k_1-E_0/\hbar\omega_0},$$

$$a_n(t)|_{n>0} \approx \sum_m \left(\frac{E_m}{\hbar\omega_0} \right) \sum_{k=1}^{\infty} \left(\frac{qE_a}{\hbar\omega_0} \right)^k \frac{R_{nm,m0}^k}{2^k} \sum_{k_1=0}^k C_k^{k_1} (-1)^{k_1} \frac{1 - e^{i(k-2k_1-E_0/\hbar\omega_0)\omega_0 t}}{k-2k_1-E_0/\hbar\omega_0}.$$
(132)

Из вида решений (132) следуют условия применимости излагаемого подхода. Для того, чтобы населенность всех уровней, кроме основного, была незначительной, необходимо потребовать, чтобы $\frac{q\langle r_z \rangle E_a E_0}{(\hbar\omega_0)^2} \ll 1$, где $q\langle r_z \rangle$ – характерное (максимальное) значение дипольного момента пары уровней атома, E_a – напряженность лазерного поля, E_0 – энергия основного уровня, $\hbar\omega_0$ – энергия кванта лазерного поля.

Подставим амплитуды населенностей (132) и множитель (130) в выражения для плотности тока (117) и для электронной плотности (121). Они естественным образом разобьются на три слагаемых: 1) $n = m = 0$ и $a_0(t) \approx e^{-iE_0t/\hbar}$, 2) $n = m = 0$ и $a_0(t)$ вычисляется согласно (132), 3) $n = 0, m \neq 0$ или $n \neq 0, m = 0$ и $a_n(t), a_m(t)$ вычисляются согласно (132). Учитывая (122) – (125), получим окончательное выражение для нелинейной восприимчивости произвольного порядка, которое представимо в виде произведения числового множителя, факторов B_{at} , задаваемых структурой уровней атома, и факторов B_r , определяемых усреднением откликов атомов среды:

$$\chi^{(k)}(\omega) = \frac{n_{at}}{4\pi\epsilon_0} \left(\frac{qa_B}{\hbar\omega_0} \right)^{k+1} \left(i \cdot Ry \cdot B_{at}^j B_r^j(\omega, k) + \hbar\omega_0 B_{at}^\rho B_r^\rho(\omega, k) \right), \quad (133)$$

где $Ry = \frac{m_e e^4}{2\hbar^2} = 2,18 \cdot 10^{-18}$ Дж, $a_B = 5,3 \cdot 10^{-11}$ м – радиус Бора, слагаемое $B_{at}^j B_r^j$

обусловлено микроскопическим током, а слагаемое $B_{at}^\rho B_r^\rho$ – электронной плотностью. При этом B_{at} и B_r являются безразмерными величинами, а все матричные элементы $R_{nl, pm}^k$ и $(r_z^k)_{nm}$ выражены в единицах a_B^k .

Множители B_{at} имеют вид:

$$\begin{aligned} B_{at}^{j, \rho}(\omega, k) &= B_{at}^{j, \rho(0)}(\omega, k) + B_{at}^{j, \rho(1)}(\omega, k), \\ B_{at}^{j(0)}(\omega, k) &= \sum_{lp} \frac{E_l - E_p}{Ry} (r_z)_{lp} R_{0l, p0}^k \sum_{k_1=0}^k C_k^{k_1} (-1)^{k_1}, \frac{\omega}{\omega_0} = k - 2k_1, \\ B_{at}^{\rho(0)}(\omega, k) &= (r_z)_{00}, \frac{\omega}{\omega_0} = 0, \\ B_{at}^{j(1)}(\omega, k) &= \sum_{lp} \frac{E_l - E_p}{Ry} (r_z)_{lp} \sum_m \frac{E_m}{\hbar\omega_0} \sum_{k_1=0}^{k-1} \sum_{k_3=0}^{k_1} \sum_{k_2=0}^{k-k_1} \frac{C_{k_1}^{k_3} C_{k-k_1}^{k_2} (-1)^{k_3+k_2}}{k - k_1 - 2k_2 - E_0/\hbar\omega_0} \times \\ &\times \left\{ \begin{aligned} & - \sum_n R_{0l, pn}^{k_1} R_{nm, m0}^{k-k_1}, \frac{\omega}{\omega_0} = k - 2k_3 - 2k_2 \\ & - R_{0l, p0}^{k_1} R_{0m, m0}^{k-k_1} + (-1)^{k_1} \sum_{n>0} R_{0l, pn}^{k_1} R_{nm, m0}^{k-k_1}, \frac{\omega}{\omega_0} = -k + 2k_1 - 2k_3 + 2k_2 \end{aligned} \right\}, \\ B_{at}^{\rho(1)}(\omega, k) &= \sum_m \frac{E_m}{\hbar\omega_0} \sum_{k_1=0}^{k-1} \frac{C_k^{k_1} (-1)^{k_1}}{k - 2k_1 - E_0/\hbar\omega_0} \times \left(- \sum_n R_{nm, m0}^k (r_z)_{n0} \right), \frac{\omega}{\omega_0} = \begin{bmatrix} k - 2k_1 \\ -k + 2k_1 \end{bmatrix}. \end{aligned} \quad (134)$$

Множители B_r имеют вид:

$$B_r^j(\omega, k) = 2 \int_{x_0}^{\infty} e^{\frac{i\omega}{\omega_0} x} e^{-\gamma x} \left(-i \frac{\omega}{k\omega_0} \sin kx + \frac{1}{(kx)^2} \left(\frac{\sin kx}{kx} - \cos kx \right) \left(1 + i \frac{\omega}{\omega_0} x \right) \right) dx, \quad (135)$$

$$B_r^p(\omega, k) = 2 \int_{x_0}^{\infty} \frac{e^{\frac{i\omega}{\omega_0} x}}{x} e^{-\gamma x} \left(-\frac{\sin kx}{kx} + \frac{1}{(kx)^2} \left(\frac{\sin kx}{kx} - \cos kx \right) \left(2 - i \frac{\omega}{\omega_0} x \right) \right) dx,$$

причем величина $x_0 = \frac{\omega_0}{c\sqrt[3]{n_{at}}}$ определяется половиной среднего расстояния между

атомами (поскольку усредненное поле отклика атомов определяется в точках, равноудаленных от атомов, так что сложение полей отклика начинается с атомов, расположенных на расстоянии, равном половине среднего расстояния между атомами), а множитель $e^{-\gamma r}$ обусловлен потерей когерентности в полях отклика атомов, расположенных на больших расстояниях от точки наблюдения.

Выражение (134) для нелинейной восприимчивости газовой среды обладает тремя примечательными особенностями. Во-первых, оно описывает нелинейные свойства среды, а не изолированных атомов. Во-вторых, оно содержит в себе произвольный порядок k и поэтому позволяет рассчитывать нелинейные эффекты, квадратичные по лазерному полю, кубичные и т.д. В-третьих, оно описывает различные нелинейные процессы, реализуемые на нелинейной восприимчивости определенного порядка, например, процесс $\omega = \omega_0 + \omega_0 + \omega_0 = 3\omega_0$ или $\omega = \omega_0 - \omega_0 + \omega_0 = \omega_0$ за счет нелинейной восприимчивости $\chi^{(3)}$.

Еще раз подчеркнем приближения, в рамках которых было получено выражение (134). Использовалось длинноволновое приближение $r' \ll \frac{c}{\omega} \sim \lambda$ и условие достаточной разреженности газовой среды: $r' \ll r$, которое может быть переформулировано как $r_0 = \frac{1}{\sqrt[3]{n_{at}}} \gg a_B$. Это условие выполняется вплоть до давлений газовой среды (при температуре 300 К) $p \sim 1$ бар, когда $r_0/a_B \approx 70$. Второе приближение – условие малости возбуждения атомов, так что населенность всех возбужденных уровней мала по сравнению с населенностью основного уровня. Это условие выполняется при $\frac{q \langle r_z \rangle E_a E_0}{(\hbar \omega_0)^2} \ll 1$. Например, для атома водорода $E_0 = 13,6$ эВ, при длине волны лазерного излучения 1 мкм (энергия кванта $\hbar \omega_0 \approx 1,2$ эВ), при $\langle r_z \rangle \approx a_B = 5 \cdot 10^{-11}$ м получаем условие на напряженность лазерного поля: $E_a \ll 2$ ГВ/м, что соответствует интенсивности $I \ll 5 \cdot 10^{15}$ Вт/м². В случае сильного возбуждения атомов лазерным полем, в том числе резонансного, аналитическое выражение для нелинейной

восприимчивости получить крайне затруднительно. Однако в этом случае численные расчеты динамики населенностей уровней и спектра усредненного поля отклика позволят выделить значение нелинейной восприимчивости среды.

Рассмотрим в качестве газовой среды аргон. Выберем базис водородоподобных волновых функций $u_{nlm}(r, \theta, \varphi)$ с энергиями уровней E_n (пренебрегаем спин-орбитальным взаимодействием, но учитываем неполную экранировку заряда ядра электронами внутренних оболочек [223]):

$$u_{nlm}(r, \theta, \varphi) = \sqrt{\frac{(n-l-1)! \left(\frac{2Z_{eff}}{na_B}\right)^3}{2n(n+l)!}} e^{-Z_{eff}r/na_B} \left(\frac{2Z_{eff}r}{na_B}\right)^l L_{n-l-1}^{2l+1}\left(\frac{2Z_{eff}r}{na_B}\right) Y_{lm}(\theta, \varphi), \quad (136)$$

$$E_n = -\frac{e^2}{8\pi\epsilon_0 a_B} \left(\frac{Z_{eff}}{n}\right)^2, \quad (137)$$

где Z_{eff} – эффективный заряд атомного остова, $a_B = \frac{4\pi\epsilon_0 \hbar^2}{me^2}$ – радиус Бора, $L(x)$ – обобщенный полином Лагерра, $Y_{lm}(\theta, \varphi)$ – сферическая функция, n, l, m – главное, орбитальное и магнитное квантовые числа соответственно. Величину Z_{eff}/n можно определить по спектроскопическим данным об энергии уровней аргона [224]. Для атома Ar значения Z_{eff} собраны в Таблицу 2.

Таблица 2. Эффективный заряд атомного остова Ar, определенный по спектроскопическим данным [224].

Уровень	Z_{eff}	Уровень	Z_{eff}	Уровень	Z_{eff}
3p	3,227	4f	1,005	5f	1,005
3d	1,123	5s	1,761	6s	1,559
4s	2,224	5p	1,545	6p	1,408
4p	1,830	5d	1,101	7s	1,445
4d	1,121				

Заметим, что энергии уровней являются приближенными, не учитывается тонкое и сверхтонкое расщепление уровней. Поэтому задаваемый таким образом атом необходимо рассматривать в качестве модельного, но приближенного к реальному атому.

Значения нелинейных восприимчивостей $\chi^{(3)}$ и $\chi^{(5)}$ для процессов генерации 1-й, 3-й и 5-й гармоник, рассчитанные по выражению (134) при нормальных условиях (давление 1 бар и температура 300 К), представлены на Рисунке 4.14 в зависимости от длины волны лазерного

излучения. Отметим, что полученное аналитическое выражение (134) не учитывает резонансное возбуждение уровней в силу предположения о малости амплитуд населенности возбужденных уровней и пренебрежения, таким образом, перекачкой населенности с одного возбужденного уровня на другой.

Значения нелинейных восприимчивостей $\chi^{(3)}$ (Рисунок 4.14а) и $\chi^{(5)}$ (Рисунок 4.14б) увеличиваются с ростом длины волны лазерного излучения, при этом они отличаются в несколько раз для различных комбинаций частот: $\chi^{(3)}(3\omega_0)/\chi^{(3)}(\omega_0) \approx 2$, $\chi^{(5)}(5\omega_0)/\chi^{(5)}(\omega_0) \approx 1$ и $\chi^{(5)}(5\omega_0)/\chi^{(5)}(3\omega_0) \approx 1,4$ вне зависимости от длины волны.

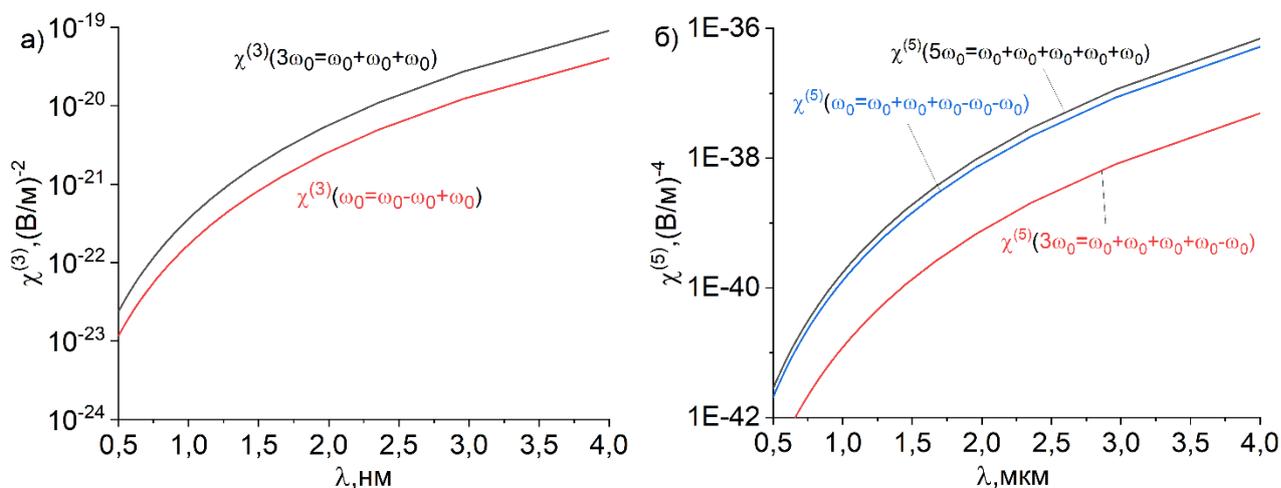


Рисунок 4.14. Значения нелинейных восприимчивостей а) 3-го порядка и б) 5-го порядка в аргоне при давлении 1 бар и температуре 300 К в зависимости от длины волны лазерного излучения.

Излучение гармоник имеет несколько каналов генерации. На Рисунке 4.15а показана амплитуда 3-й гармоники, нормированная на амплитуду лазерного поля, при генерации за счет нелинейной восприимчивости 3-го и 5-го порядков. Эти два канала генерации имеют существенно различную зависимость от интенсивности лазерного излучения, благодаря чему при высоких интенсивностях лазерного излучения эффективность генерации 3-й гармоники за счет нелинейности 5-го порядка начинает преобладать над каналом генерации за счет нелинейности 3-го порядка. Однако, в видимом диапазоне длин волн это происходит при интенсивности лазерного излучения выше 1 ТВт/см^2 , что находится на границе или за рамками приближений, использованных при выводе аналитического выражения (134). Однако увеличение длины волны лазерного излучения приводит к тому, что значение интенсивности, при которой генерация 3-й гармоники за счет нелинейности 5-го порядка становится доминирующей, уменьшается. Таким образом, использование лазерного излучения среднего

инфракрасного диапазона может изменить основной канал генерации оптических гармоник даже при небольших интенсивностях ($10^{10} - 10^{12}$ Вт/см²) лазерного излучения.

На Рисунке 4.15б показано сравнение эффективности генерации 5-й гармоники (амплитуды 5-й гармоники по отношению к амплитуде лазерного поля) для двух каналов генерации: прямой канал за счет нелинейной восприимчивости 5-го порядка и каскадный канал за счет нелинейной восприимчивости 3-го порядка (цвета и стиль отображения кривых такие же, как и на Рисунке 4.15а). При любой интенсивности (в пределах до 1 ТВт/см²) и длине волны (от 800 нм до 4 мкм) лазерного излучения прямой канал доминирует над каскадным по крайней мере на 1,5 – 2 порядка по амплитуде сигнала и на 3-4 порядка по интенсивности. При этом увеличение длины волны лазерного излучения постепенно сокращает различия в интенсивности этих каналов генерации.

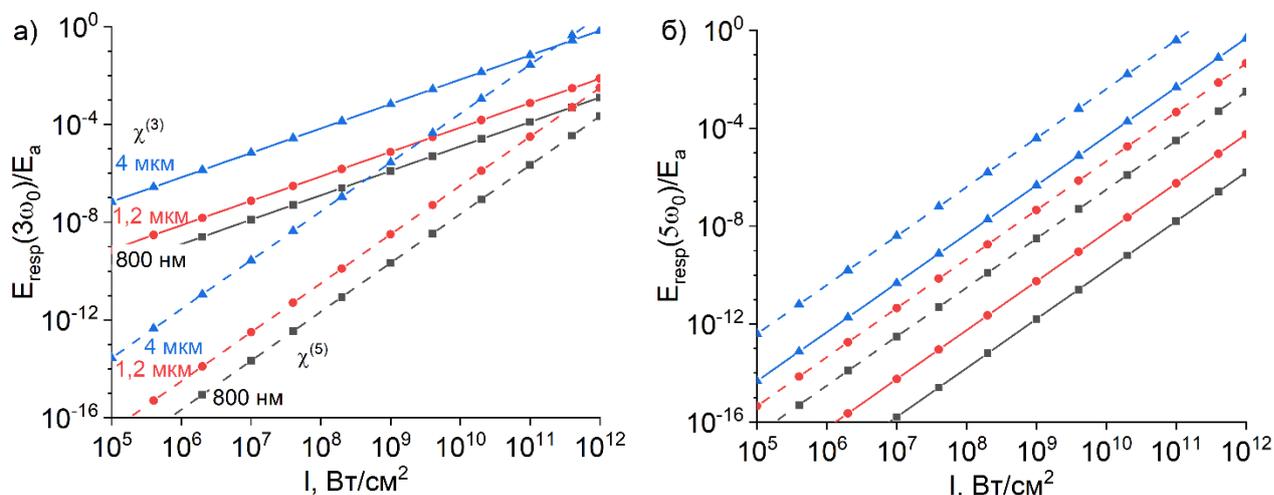


Рисунок 4.15. Амплитуды излучения а) 3-й гармоники и б) 5-й гармоники, нормированные на амплитуду лазерного поля, в аргоне при давлении 1 бар и температуре 300 К и различных длинах волн лазерного излучения.

4.5. Основные выводы по главе 4

Изменение условий внешней фокусировки лазерного излучения среднего ИК диапазона является доступным способом управления спектром когерентного излучения прозрачных диэлектриков. В отсутствие электронной плазмы (при малых интенсивностях лазерного излучения) более мягкая фокусировка способствует увеличению конверсии третьей гармоники, которая пропорциональна четвертой степени фокусного расстояния $\sim f^4$. При повышении интенсивности лазерного излучения с целью увеличения абсолютного сигнала третьей гармоники возникает электронная плазма, существенным образом трансформирующая спектр когерентного излучения – спектральные области между

гармониками заполняются, и образуется суперконтинуум. В условиях аномальной дисперсии групповой скорости (при использовании лазерного излучения среднего ИК диапазона) в спектре суперконтинуума присутствует антистоксово крыло, которое при увеличении жесткости внешней фокусировки смещается в длинноволновую область спектра. Получено аналитическое выражение, которое определяет его положение с учетом фазовой самомодуляции и плазменной модуляции излучения.

Трансформация свойств лазерного излучения при его распространении в среде требует модификации условий фазового синхронизма при генерации гармоник. Расстройка волновых векторов не может считаться постоянной на всем протяжении среды, причем даже в случае низкого поглощения. При этом численные исследования могут предложить несколько иной подход к анализу условий фазового синхронизма – сравнение фаз гармоники и ее производной по z .

Интенсивность третьей гармоники кардинальным образом зависит от распределения тока свободных носителей, создаваемых в газовой среде лазерным излучением, а также от его поглощения в газовой среде. Выявленные законы масштабирования фазовой модуляции

$$PM \sim p \cdot \frac{\rho}{\rho_{at}} \cdot \sqrt{I} \quad \text{и поглощения} \quad A \sim a_1 \cdot \frac{W(I)}{I} + a_2 \cdot p^2 \cdot \frac{\rho}{\rho_{at}} \cdot I$$

лазерного излучения в газовой среде при изменении макропараметров взаимодействия (давление, интенсивность, степень ионизации среды) позволяют предложить способы увеличения интенсивности третьей гармоники.

Применение квантово-механического непertурбативного подхода естественным образом (путем разложения матричных элементов по степеням лазерного поля) позволяет получить аналитические выражения для нелинейной восприимчивости произвольного порядка газовой среды, необходимые для учета нелинейной поляризации среды в моделях распространения лазерного излучения. При этом для расчета отклика среды на лазерное поле используется оригинальная идея о замене суммирования полей отклика различных атомов среды в выбранной точке пространства суммированием полей отклика одного атома в различных точках пространства. Анализ зависимостей нелинейных восприимчивостей от длины волны лазерного поля показал, что ее увеличение (переход в средний инфракрасный диапазон) может привести к смене доминирующего канала генерации гармоник – нелинейной восприимчивости такого порядка, за счет которой генерация гармоники наиболее интенсивная.

Заключение

Возбуждение среды лазерным полем, динамика связанных и свободных носителей заряда является начальной стадией нелинейно-оптического взаимодействия лазерного излучения со средой. Предложенная модель динамики свободных носителей заряда EMRE обладает тем преимуществом, что позволяет корректно (в согласии с экспериментальными данными) описать нарастание концентрации свободных носителей заряда и их средней кинетической энергии при возбуждении среды лазерным излучением ближнего и среднего инфракрасного диапазонов. Особенность модели EMRE, позволяющая добиться этого, состоит в учете дополнительного нагрева свободных носителей лазерным полем до энергий выше критической, необходимой для начала ударной ионизации. Помимо этого, в модели EMRE используются аналитические зависимости скорости однофотонного поглощения и скорости ударной ионизации от энергии свободных носителей, что позволяет избавиться от определения феноменологических параметров, существенно влияющих на результаты численных исследований.

Анализ динамики свободных носителей на основе уравнения Фоккера-Планка позволяет выявить некоторые особенности распределения свободных носителей по энергии при их возбуждении лазерным полем. В частности, при достаточной интенсивности лазерного излучения наблюдается динамический баланс между лазерным нагревом свободных носителей и ударной ионизацией: увеличение скорости лазерного нагрева вследствие роста флюенса лазерного излучения приводит к усилению ударной ионизации, которая формирует точно такое же распределение носителей по зоне проводимости, но с увеличенной концентрацией носителей.

Добавление к модели EMRE дисперсионного слагаемого позволяет уточнить рассчитываемое значение средней кинетической энергии свободных носителей заряда, от которой зависит эффективная частота столкновения свободных носителей с частицами (электронами и ионными остовами) и квазичастицами (фононами). Поэтому учет дисперсионного слагаемого важен в таких практических приложениях, как определение энергетического порога оптического пробоя и времени релаксации импульса и энергии свободных носителей.

Применение скоростных моделей (EMRE) вместо более сложных и требующих больших временных ресурсов статистических моделей (F-PI) становится оправданным при решении более масштабной задачи – распространения лазерного излучения через среду. Использование модели EMRE позволяет проводить расчеты в 20 раз быстрее по сравнению с моделью Фоккера-Планка.

Изменение условий внешней фокусировки лазерного излучения является доступным способом управления спектром когерентного излучения прозрачных диэлектриков. Так, в отсутствие электронной плазмы (при малых интенсивностях лазерного излучения) увеличение фокусного расстояния позволяет значительно ($\sim f^4$) повысить эффективность генерации гармоник низкого порядка. При генерации суперконтинуума (при достаточно больших интенсивностях лазерного излучения) в условиях аномальной дисперсии групповой скорости в спектре суперконтинуума присутствует антистоксово крыло, которое при увеличении жесткости внешней фокусировки смещается в длинноволновую область спектра.

Возможность получения в численных расчетах как интенсивности, так и фазы спектральных компонент позволяет в деталях провести анализ фазового синхронизма при генерации гармоник низкого порядка и разделить влияние различных факторов: фазовой самомодуляции, фазовой модуляции и поглощения вследствие тока свободных носителей заряда, а также поглощения вследствие фотоионизации. Рассмотрение вопроса генерации гармоник в (ω, k_r) -пространстве позволяет математическим образом отбросить влияние геометрической фазы, тем самым упростив анализ условий фазового синхронизма.

Расстройка волновых векторов не может считаться постоянной на всем протяжении среды, причем даже в случае низкого поглощения. Выявленные законы масштабирования фазовой модуляции и поглощения лазерного излучения в газовой среде при изменении макропараметров взаимодействия (давление, интенсивность, степень ионизации среды) позволяют предложить способы увеличения интенсивности третьей гармоники.

Важной задачей является установление значений феноменологических параметров в тех режимах, когда точный учет динамики свободных носителей заряда не столь важен, например, при генерации гармоник низкого порядка при распространении лазерного излучения через газовую среду. Применение квантово-механического непертурбативного подхода естественным образом позволяет получить аналитические выражения для тензоров нелинейной восприимчивости произвольного порядка газовой среды. Увеличение длины волны лазерного излучения и переход в средний инфракрасный диапазон приводит к смене доминирующего канала генерации гармоник.

Список литературы

1. Рябикин М.Ю., Емелин М.Ю., Стрелков В.В. Аттосекундные электромагнитные импульсы: генерация, измерение и применение. Аттосекундная метрология и спектроскопия // УФН. – 2023. – Т. 193. – С. 382.
2. Желтиков А.М. Теория фотоионизации Келдыша: через барьеры // УФН. – 2017. – Т. 187. – С. 1169-1204.
3. Dubietis A., Tamošauskas G., Šuminas R. et al. Ultrafast supercontinuum generation in bulk condensed media // Lithuan. J. of Phys. – 2017. – Vol. 57. – P. 113.
4. Chekalin S.V., Dormidonov A.E., Kompanets V.O. et al. Light bullet supercontinuum // J. Opt. Soc. Am. B. – 2019. – Vol. 36. – P. A43.
5. Hareli L., Shoulga G., Bahabad A. Phase matching and quasi-phase matching of high-order harmonic generation—a tutorial // J. Phys. B. – 2020. – Vol. 53. – P. 233001.
6. Ganeev R.A., Boltaev G.S., Stremoukhov S.Y. et al. High-order harmonic generation during different overlaps of two-colored pulses in laser-produced plasmas and gases // Eur. Phys. J. D. – 2020. – Vol. 74. – P. 199.
7. Stremoukhov S. Quasi-phase matching of high harmonics driven by mid-IR: toward the efficiency drop compensation // J. Opt. Soc. Am. B. – 2022. – Vol. 39. – P. 1203.
8. Pushkin A., Migal E., Suleimanova D. et al. High-power solid-state near- and mid-IR ultrafast laser sources for strong-field science // Photonics. – 2022. – Vol. 9. – P. 90.
9. Chambonneau M., Grojo D., Tokel O. et al. In-volume laser direct writing of silicon - challenges and opportunities // Las. Photon. Rev. – 2021. – Vol. 15. – P. 2100140.
10. Kaiser A., Rethfeld B., Vicanek M. et al. Microscopic processes in dielectrics under irradiation by subpicosecond laser pulses // Phys. Rev. B. – 2000. – Vol. 61. – P. 437.
11. Rethfeld B. Unified model for the free-electron avalanche in laser-irradiated dielectrics // Phys. Rev. Lett. – 2004. – Vol. 92. – P. 187401.
12. Kolesik M., Moloney J.V. Modeling and simulation techniques in extreme nonlinear optics of gaseous and condensed media // Rep. Prog. Phys. – 2014. – Vol. 77. – P. 016401.
13. Sazonov S.V. Analytical theory of the propagation of a dissipative soliton in a nonequilibrium resonant medium // Phys. Rev. A. – 2021. – Vol. 103. – P. 053512.
14. Bugay A.N., Khalyapin V.A. Analytic description of laser pulse propagation in gas-filled hollow-core photonic crystal fibre // Laser Phys. – 2019. – Vol. 29. – P. 035402.
15. Tsvetkov D.M., Bushuev V.A., Mantsyzov B.I. Optical-pulse dynamics under quasi-PT-symmetry // Phys. Rev. A. – 2019. – Vol. 99. – P. 023846.
16. Yue L., Gaarde M.B. Introduction to theory of high-harmonic generation in solids: tutorial // J. Opt. Soc. Am. B. – 2022. – Vol. 39. – P. 535.

17. Gordon J.P., Zeiger H.J., Towns C.H. The maser – new type of microwave amplifier, frequency standard, and spectrometer // *Phys. Rev.* – 1954. – Vol. 99. – P. 1264.
18. Басов Н.Г., Прохоров А.М. Применение молекулярных пучков для радиоспектроскопического изучения вращательных спектров молекул // *ЖЭТФ.* – 1954. – Т. 27. – С. 431.
19. Maiman T.H. Stimulated optical radiation in ruby // *Nature.* – 1960. – Vol. 187. – P. 4736.
20. Askaryan G.A. Effects of the gradient of a strong electromagnetic beam on electrons and atoms // *Soviet. Phys. JETP.* – 1962. – Vol. 15. – P. 1088.
21. Kandidov V.P., Shlenov S.A., Kosareva O.G. Filamentation of high-power femtosecond laser radiation // *Quant. Electr.* – 2009. – Vol. 39. – P. 205.
22. Alfano R.R., Shapiro L. Observation of selfphase modulation and small--scale filaments in crystals and glasses // *Phys. Rev. Lett.* – 1970. – Vol. 24. – P. 592.
23. Marburger H. Self-focusing: Theory // *Prog. Quantum Electron.* – 1975. – Vol. 4. – P. 35.
24. Couairon A., Mysyrowicz A. Femtosecond filamentation in transparent media // *Phys. Rep.* – 2007. – Vol. 441. – P. 47.
25. Bugay A.N., Sazonov S.V. A waveguide mode of generating terahertz radiation // *Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics.* – 2018. – Vol. 82. – P. 1468.
26. Kartashov D., Ališauskas S., Pugžlys A. et al. White light generation over three octaves by femtosecond filament at 3.9 μm in argon // *Opt. Lett.* – 2012. – Vol. 37. – P. 3456.
27. Liu Y., Yin F., Wang T.J. et al. Stable, intense supercontinuum light generation at 1 kHz by electric field assisted femtosecond laser filamentation in air // *Light Sci. Appl.* – 2024. – Vol. 13. – P. 42.
28. Tzortzakis S., Papazoglou D.G., Zergioti I. Long-range filamentary propagation of subpicosecond ultraviolet laser pulses in fused silica // *Opt. Lett.* – 2006. – Vol. 31. – P. 796.
29. Momgaudis B., Marčiulionytė V., Jukna V. et al. Supercontinuum generation in bulk solid-state material with bursts of femtosecond laser pulses // *Sci. Rep.* – 2024. – Vol. 14. – P. 7055.
30. Pigeon J.J., Tochitsky S.Ya., Gong C. et al. Supercontinuum generation from 2 to 20 μm in GaAs pumped by picosecond CO2 laser pulses // *Opt. Lett.* – 2014. – Vol. 39. – P. 3246.
31. Granger G., Bailly M., Delahaye H. et al. GaAs-chip-based mid-infrared supercontinuum generation // *Light Sci. Appl.* – 2023. – Vol. 12. – P. 252.
32. Dudley J.M., Genty G., Coen S. Supercontinuum generation in photonic crystal fiber // *Rev. Mod. Phys.* – 2006. – Vol. 78. – P. 1135.
33. Brès C.-S., Della-Torre A., Grassani D. et al. Supercontinuum in integrated photonics: generation, applications, challenges, and perspectives // *Nanophotonics.* – 2023. – Vol. 12. – P. 1199.

34. Fang Y., Bao C., Li S.-A. et al. Recent progress of supercontinuum generation in nanophotonic waveguides // *Laser Photonics Rev.* – 2022. – Vol. 17. – P. 200.
35. Ахманов С.А., Хохлов Р.В. Проблемы нелинейной оптики // М.: АН СССР, Институт научной информации. – 1964. – 298 с.
36. Lvov K.V., Stremoukhov S.Yu., Potemkin F.V. et al. Asymmetric temporal splitting of laser pulse and broad supercontinuum generation under femtosecond filamentation in YAG crystal // *Laser Phys. Lett.* – 2018. – Vol. 15. – P. 085402.
37. Rothenberg J.E. Pulse splitting during self-focusing in normally dispersive media // *Opt. Lett.* – 1992. – Vol. 17. – P. 583.
38. Sazonov S.V. Diffraction limit in theory of light bullets // *Optics and Spectroscopy.* – 2020. – Vol. 128. – P. 1407.
39. Smetanina E.O., Kompanets V.O., Dormidonov A.E. et al. Light bullets from near-IR filament in fused silica // *Laser Phys. Lett.* – 2013. – Vol. 10. – P. 105401.
40. Durand M., Lim K., Jukna V. et al. Blueshifted continuum peaks from filamentation in the anomalous dispersion regime // *Phys. Rev. A.* – 2013. – Vol. 87. – P. 043820.
41. Silva F., Austin D.R., Thai A. et al. Multi-octave supercontinuum generation from mid-infrared filamentation in a bulk crystal // *Nat. Commun.* – 2012. – Vol. 3. – P. 807.
42. Garejev N., Jukna V., Tamošauskas G. et al. Odd harmonics-enhanced supercontinuum in bulk solid-state dielectric medium // *Optics Express.* – 2016. – Vol. 24. – P. 17060.
43. Kim H., Han S., Kim Y.W. et al. Generation of coherent extreme-ultraviolet radiation from bulk sapphire crystal // *ACS Photon.* – 2017. – Vol. 4. – P. 1627.
44. Vampa G., McDonald C.R., Orlando G. Theoretical analysis of high-harmonic generation in solids // *Phys. Rev. Lett.* – 2014. – Vol. 113. – P. 73901.
45. Lehmeier H.J., Leupacher W., Penzkofer A. Nonresonant third order hyperpolarizability of rare gases and N₂ determined by third harmonic generation // *Optics Comm.* – 1985. – Vol. 56. – P. 67.
46. Shaw M.J., Hooker C.J., Wilson D.C. Measurement of the nonlinear refractive index of air and other gases at 248 nm // *Optics Comm.* – 1993. – Vol. 103. – P. 153.
47. Lundeen T., Hou S.-Y., Nibler J.W. Nonresonant third order susceptibilities for various gases // *J. Chem. Phys.* – 1983. – Vol. 79. – P. 6301.
48. Boyd R.W. *Nonlinear Optics* // Oxford: Academic Press. – 2008.
49. Azarenkov A.N., Altshuler G.B., Belashenkov N.R. et al. Fast nonlinearity of the refractive index of solid-state dielectric active media // *Quantum Electron.* – 1993. – Vol. 23. – P. 633.

50. Dolgaleva K., Materikina D.V., Boyd R.W. et al. Prediction of an extremely large nonlinear refractive index for crystals at terahertz frequencies // *Phys. Rev. A.* – 2015. – Vol. 92. – P. 023809.
51. Tcypkin A., Zhukova M., Melnik M. et al. Giant third-order nonlinear response of liquids at terahertz frequencies // *Phys. Rev. Appl.* – 2021. – Vol. 15. – P. 054009.
52. Bree C., Demircan A., Steinmeyer G. Kramers-Kronig relations and high-order nonlinear susceptibilities // *Phys. Rev. A.* – 2012. – Vol. 85. – P. 033806.
53. Shelton D.P. Hyperpolarizability of the hydrogen atom // *Phys. Rev. A.* – 1987. – Vol. 36. – P. 3032.
54. Bishop D.M., Lam B. Ab initio study of third-order nonlinear optical properties of helium // *Phys. Rev. A.* – 1988. – Vol. 37. – P. 464.
55. Spott A., Jaron-Becker A., Becker A. Ab initio and perturbative calculations of the electric susceptibility of atomic hydrogen // *Phys. Rev. A.* – 2014. – Vol. 90. – P. 013426.
56. Loriot V., Hertz E., Faucher O. et al. Measurement of high order Kerr refractive index of major air components // *Opt. Express.* – 2010. – Vol. 18. – P. 3011.
57. Fainstein A.G., Manakov N.L., Ovsiannikov V.D. Nonlinear susceptibilities and light scattering on free atoms // *Phys. Rep.* – 1992. – Vol. 210. – P. 111.
58. Berry M.V. Quantal phase factors accompanying adiabatic changes // *Proc. R. Soc. Lond. A.* – 1984. – Vol. 392. – P. 45.
59. Andreev A.V., Stremoukhov S.Y., Shoutova O.A. Light-induced anisotropy of atomic response: prospects for emission spectrum control // *Eur. Phys. J. D.* – 2012. – Vol. 66. – P. 16.
60. Andreev A.V., Stremoukhov S.Y. Terahertz-radiation generation in the ionization-free regime of light-atom interaction // *Phys. Rev. A.* – 2013. – Vol. 87. – P. 053416.
61. Stremoukhov S.Y., Andreev A.V., Vodungbo B. et al. Origin of ellipticity of high-order harmonics generated by a two-color laser field in the cross-polarized configuration // *Phys. Rev. A.* – 2016. – Vol. 94. – P. 013855.
62. Garejev N., Grazuleviciute I., Majus D. et al. Third- and fifth-harmonic generation in transparent solids with few-optical-cycle mid-infrared pulses // *Phys. Rev. A.* – 2014. – Vol. 89. – P. 033846.
63. Darginavicius J., Majus D., Jukna V. et al. Ultrabroadband supercontinuum and third-harmonic generation in bulk solids with two optical-cycle carrier-envelope phase-stable pulses at 2 μm // *Opt. Express.* – 2013. – Vol. 21. – P. 252.
64. Sazonov S.V. On the nonlinear optics of ultimately short pulses // *Optics and Spectroscopy.* – 2022. – Vol. 130. – P. 549.
65. Jimbo T., Caplan V.L., Li Q.X. et al. Enhancement of ultrafast supercontinuum generation in water by the addition of Zn^{2+} and K^{+} cations // *Opt. Lett.* – 1977. – Vol. 12. – P. 477.

66. Wang C., Fu Y., Zhou Z. et al. Femtosecond filamentation and supercontinuum generation in silver-nanoparticle-doped water // *Appl. Phys. Lett.* – 2007. – Vol. 90. – P. 181119.
67. Schafer K.J., Yang B., DiMauro L.F. et al. Above threshold ionization beyond the high harmonic cutoff // *Phys. Rev. Lett.* – 1993. – Vol. 70. – P. 1599.
68. Schotz J. Phase-matching for generation of isolated attosecond XUV and soft-X-ray pulses with few-cycle drivers // *Phys. Rev. X.* – 2020. – Vol. 10. – P. 041011.
69. Ганеев Р.А. Современные тенденции в области генерации высших гармоник при лазерной абляции различных поверхностей // *УФН.* – 2013. – Т. 183. – С. 815.
70. Vampa G., You Y., Liu H. et al. Observation of backward high-harmonic emission from solids // *Opt. Express.* – 2018. – Vol. 26. – P. 12210.
71. Goulielmakis E., Brabec T. High harmonic generation in condensed matter // *Nat. Photon.* – 2022. – Vol. 16. – P. 411.
72. Weissenbilder R., Carlström S., Rego L. et al. How to optimize high-order harmonic generation in gases // *Nat. Rev. Phys.* – 2022. – Vol. 4. – P. 713.
73. Ganeev R.A. High-order harmonic generation in laser-induced low-density plasma: past and recent achievements // *Appl. Phys. B.* – 2023. – Vol. 129. – P. 17.
74. Ghimire S., DiChiara A.D., Sistrunk E. et al. Observation of high-order harmonic generation in a bulk crystal // *Nat. Phys.* – 2011. – Vol. 7. – P. 138.
75. Ndabashimiye G., Ghimire S., Wu M. et al. Solid-state harmonics beyond the atomic limit // *Nature.* – 2016. – Vol. 534. – P. 520.
76. Han S., Kim H., Kim Y.W. et al. High-harmonic generation by field enhanced femtosecond pulses in metal-sapphire nanostructure // *Nat. Commun.* – 2016. – Vol. 7. – P. 13105.
77. Yang Y., Lu J., Manjavacas A. et al. High harmonic generation from an epsilon-near-zero material // *Nat. Phys.* – 2019. – Vol. 15. – P. 1022.
78. You Y.S., Lu J., Cunningham E. et al. Crystal orientation-dependent polarization state of high-order harmonics // *Opt. Lett.* – 2018. – Vol. 44. – P. 530.
79. Ghimire S., DiChiara A.D., al. E.Sistrunk et. Generation and propagation of high-order harmonics in crystals // *Phys. Rev. A.* – 2012. – Vol. 85. – P. 043836.
80. Hong K.H., Lai C.J., Siqueira J.P. et al. Multi-mJ, kHz, 2.1 μm optical parametric chirped-pulse amplifier and high-flux soft x-ray high-harmonic generation // *Optics Lett.* – 2014. – Vol. 39. – P. 31.
81. Mitrofanov A., Voronin A., Sidorov-Biryukov D. et al. Mid-infrared laser filaments in the atmosphere // *Sci. Rep.* – 2015. – Vol. 5. – P. 8368.
82. Wandel S., Lin M.W., Yin Y. et al. Parametric generation and characterization of femtosecond mid-infrared pulses in ZnGeP 2 // *Optics Express.* – 2016. – Vol. 24. – P. 5287.

83. Sanchez D., Hemmer M., Baudisch M. et al. 7 μm , ultrafast, sub-millijoule-level mid-infrared optical parametric chirped pulse amplifier pumped at 2 μm // *Optica*. – 2016. – Vol. 3. – P. 147.
84. Popmintchev D., Galloway B.R., Chen M.C. et al. Near- and extended-edge X-ray-absorption fine-structure spectroscopy using ultrafast coherent high-order harmonic supercontinua // *Phys. Rev. Lett.* – 2018. – Vol. 120. – P. 1.
85. Frolov M.V., Manakov N.L., Xiong W.-H. et al. Scaling laws for high-order-harmonic generation with mid - infrared laser pulses // *Phys. Rev. A*. – 2015. – Vol. 92. – P. 023409.
86. Lan P., Takahashi E.J., Midorikawa K. Wavelength scaling of efficient highorder harmonic generation by two-color infrared laser fields // *Phys. Rev. A*. – 2010. – Vol. 81. – P. 061802.
87. Migal E.A., Stremoukhov S.Y., Potemkin F.V. Ionization-free resonantly enhanced low-order harmonic generation in a densegas mixture by a mid-IR laser field // *Phys. Rev. A*. – 2020. – Vol. 101. – P. 021401R.
88. Shumakova V., Ališauskas S., Malevich P. et al. Filamentation of mid-IR pulses in ambient air in the vicinity of molecular resonances // *Opt. Lett.* – 2018. – Vol. 43. – P. 2185.
89. Fedorov V.Yu., Tzortzakis S. Extreme THz fields from two-color filamentation of midinfrared laser pulses // *Phys. Rev. A*. – 2018. – Vol. 97. – P. 063842.
90. Migal E., Mareev E., Smetanina E. et al. Role of wavelength in photocarrier absorption and plasma formation threshold under excitation of dielectrics by high-intensity laser field tunable from visible to mid-IR // *Sci. Rep.* – 2020. – Vol. 10. – P. 14007.
91. Constant E., Garzella D., Breger P. et al. Optimizing high harmonic generation in absorbing gases: Model and experiment // *Phys. Rev. Lett.* – 1999. – Vol. 82. – P. 1668.
92. Birulia V.A., Khokhlova M.A., Strelkov V.V. Macroscopic effects in generation of attosecond XUV pulses via high-order frequency mixing in gases and plasma // *New J. Phys.* – 2024. – Vol. 26. – P. 023005.
93. Balcou P., Salie`res P., L’Huillier A. et al. Generalized phase-matching conditions for high harmonics: The role of field-gradient forces // *Phys. Rev. A*. – 1997. – Vol. 55. – P. 3204.
94. Heyl C.M., Arnold C.L., Couairon A. et al. Introduction to macroscopic power scaling principles for high-order harmonic generation // *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* – 2017. – Vol. 50. – P. 013001.
95. Pirri A., Corsi C., Bellini M. Enhancing the yield of high-order harmonics with an array of gas jets // *Phys. Rev. A*. – 2008. – Vol. 78. – P. 011801.
96. Seres J., Yakovlev V.S., Seres E. et al. Coherent superposition of laser-driven soft-X-ray harmonics from successive sources // *Nat. Phys.* – 2007. – Vol. 3. – P. 878.
97. Dergacheva L.V., Mantsyzov B.I. Quasi-phase-matching generation of the second optical harmonic under the pendulum effect conditions in photonic crystals // *Bulletin of the Lebedev Physics Institute*. – 2023. – Vol. 50. – P. S25.

98. Garejev N., Tamosauskas G., Dubietis A. Comparative study of multioctave supercontinuum generation in fused silica, YAG, and LiF in the range of anomalous group velocity dispersion // *J. Opt. Soc. Am. B.* – 2017. – Vol. 34. – P. 88.
99. Marceau C., Hammond T.J., Naumov A.Yu. et al. Wavelength scaling of high harmonic generation for 267 nm, 400 nm and 800 nm driving laser pulses // *J. Phys. Commun.* – 2017. – Vol. 1. – P. 015009.
100. Румянцев Б.В., Пушкин А.В., Михеев К.Е. и др. Влияние длины и давления газовой струи на процесс генерации оптических гармоник фемтосекундным излучением лазерной системы на кристалле Fe:ZnSe с длиной волны 4.5 мкм // *Письма в ЖЭТФ.* – 2022. – Т. 116. – С. 659.
101. Dormidonov A.E., Kompanets V.O., Chekalin S.V. et al. Giantly blue-shifted visible light in femtosecond mid-IR filament in fluorides // *Opt. Express.* – 2015. – Vol. 23. – P. 29202.
102. Kartazayev V., Alfano R.R. Supercontinuum generated in calcite with chirped femtosecond pulses // *Opt. Lett.* – 2007. – Vol. 32. – P. 3293.
103. Wang K., Qian L., Luo H. et al. Ultrabroad supercontinuum generation by femtosecond dual-wavelength pumping in sapphire // *Opt. Express.* – 2006. – Vol. 14. – P. 6366.
104. Ganeev R.A., Suzuki M., Baba M. et al. Third-harmonic generation in air by use of femtosecond radiation in tight-focusing conditions // *Appl. Optics.* – 2006. – Vol. 45. – P. 748.
105. Lambert G., Andreev A., Gautier J. et al. Spatial properties of odd and even low order harmonics generated in gas // *Sci. Rep.* – 2015. – Vol. 5. – P. 7786.
106. Naseri N., Dupras G., Ramunno L. Mechanism of laser induced filamentation in dielectrics // *Optics Express.* – 2020. – Vol. 28. – P. 26977.
107. Jukna V., Garejev N., Tamošauskas G. et al. Role of external focusing geometry in supercontinuum generation in bulk solid-state media // *J. Opt. Soc. Am. B.* – 2019. – Vol. 36. – P. A54.
108. Bradler M., Baum P., Riedle E. Femtosecond continuum generation in bulk laser host materials with sub- μ J pump pulses // *Appl. Phys. B.* – 2009. – Vol. 97. – P. 561.
109. Jukna V., Galinis J., Tamosauskas G. et al. Infrared extension of femtosecond supercontinuum generated by filamentation in solid-state media // *Appl. Phys. B.* – 2014. – Vol. 116. – P. 477.
110. Ashcom J.B., Gattass R.R., Schaffer C.B. et al. Numerical aperture dependence of damage and supercontinuum generation from femtosecond laser pulses in bulk fused silica // *J. Opt. Soc. Am. B.* – 2006. – Vol. 23. – P. 2317.
111. Kanai T., Takahashi E.J., Nabekawa Y. et al. Destructive interference during high harmonic generation in mixed gases // *Phys. Rev. Lett.* – 2007. – Vol. 98. – P. 153904.
112. Finke O., Vabek J., Nevrkla M. et al. Phase-matched high-order harmonic generation in pre-ionized noble gases // *Sci. Rep.* – 2022. – Vol. 12. – P. 7715.

113. Rothhardt J., Krebs M., Hadrich S. et al. Absorption-limited and phase-matched high harmonic generation in the tight focusing regime // *New J. Phys.* – 2014. – Vol. 16. – P. 033022.
114. Frolova L.V., Skorynin A.A., Mantsyzov B.I. Gap soliton and quasilinear 2π pulse in continuous resonant photonic crystals // *J. Opt. Soc. Am. B.* – 2013. – Vol. 30. – P. 2240.
115. Couairon A., Brambilla E., Corti T. et al. Practitioner's guide to laser pulse propagation models and simulation // *Eur. Phys. J. Special.* – 2011. – Vol. 199. – P. 5.
116. Berge L., Skupin S., Nuter R. et al. Ultrashort filaments of light in weakly ionized, optically transparent media // *Rep. Prog. Phys.* – 2007. – Vol. 70. – P. 1633.
117. Couairon A., Kosareva O.G., Panov N.A. et al. Propagation equation for tight-focusing by a parabolic mirror // *Opt. Express.* – 2015. – Vol. 23. – P. 31240.
118. Кучиев М.Ю. Атомная антенна // *Письма в ЖЭТФ.* – 1987. – Vol. 45. – P. 319.
119. Corkum P.B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization // *Phys. Rev. Lett.* – 1993. – Vol. 71. – P. 1994.
120. Li J., Lu J., Chew A. et al. Attosecond science based on high harmonic generation from gases and solids // *Nat. Commun.* – 2020. – Vol. 11. – P. 2748.
121. Golde D., Meier T., Koch S.W. High harmonics generated in semiconductor nanostructures by the coupled dynamics of optical inter- and intraband excitations // *Phys. Rev. B.* – 2008. – Vol. 77. – P. 75330.
122. Wu M., Browne D.A., Schafer K.J. et al. Multi-level perspective on high-order harmonic generation in solids // *Phys. Rev. A.* – 2016. – Vol. 94. – P. 063403.
123. Hawkins P.G., Ivanov M.Y., Yakovlev V.S. Effect of multiple conduction bands on high-harmonic emission from dielectrics // *Phys. Rev. A.* – 2015. – Vol. 91. – P. 013405.
124. Silva R.E., Blinov I.V., Rubtsov A.N. et al. High-harmonic spectroscopy of ultrafast many-body dynamics in strongly correlated systems // *Nat. Photon.* – 2018. – Vol. 12. – P. 266.
125. Kilen I., Kolesik M., Hader J. Propagation induced dephasing in semiconductor high-harmonic generation // *Phys. Rev. Lett.* – 2020. – Vol. 125. – P. 083901.
126. Vampa G., Hammond T.J., Thiré N. Linking high harmonics from gases and solids // *Nature.* – 2015. – Vol. 522. – P. 462.
127. Koch S.W., Kira M., Khitrova G. et al. Semiconductor excitons in new light // *Nat. Mater.* – 2006. – Vol. 6. – P. 523.
128. Golde D., Kira M., Meier T. et al. Microscopic theory of the extremely nonlinear terahertz response of semiconductors // *Phys. Stat. Solidi B.* – 2011. – Vol. 248. – P. 863.
129. Gu J., Kolesik M. Full-Brillouin zone calculation of high-order harmonic generation from solid-state media // *Phys. Rev. A.* – 2022. – Vol. 106. – P. 063516.

130. Balu M., Hales J., Hagan D.J. et al. White-light continuum Z-scan technique for nonlinear materials characterization // *Opt. Express.* – 2004. – Vol. 12. – P. 3820.
131. Baum P., Riedle E., Greve M. et al. Phase-locked ultrashort pulse trains at separate and independently tunable wavelengths // *Opt. Lett.* – 2005. – Vol. 30. – P. 2028.
132. Potemkin F.V., Bravy B.G., Bezsudnova Yu.I. et al. Overcritical plasma ignition and diagnostics from oncoming interaction of two color low energy tightly focused femtosecond laser pulses inside fused silica // *Laser Phys. Lett.* – 2016. – Vol. 13. – P. 045402.
133. Lambert G., Hara T., Garzella D. et al. Injection of harmonics generated in gas in a free-electron laser providing intense and coherent extreme-ultraviolet light // *Nature phys.* – 2008. – Vol. 4. – P. 296.
134. Garg M., Kim H.Y., Goulielmakis E. Ultimate waveform reproducibility of extreme ultraviolet pulses by high harmonic generation in bulk dielectrics // *Nat. Photon.* – 2018. – Vol. 12. – P. 291.
135. Ахманов С.А., Выслоух В.А., Чиркин А.С. Оптика фемтосекундных лазерных импульсов // Москва: Наука. – 1988.
136. Стрелков В.В., Платоненко В.Т., Стержантов А.Ф. и др. Аттосекундные электромагнитные импульсы: генерация, измерение и применение. Генерация высоких гармоник интенсивного лазерного излучения для получения аттосекундных импульсов // *УФН.* – 2016. – Т. 186. – С. 449.
137. Cederbaum L.S., Zobeley J. Ultrafast charge migration by electron correlation // *Chem. Phys. Lett.* – 1999. – Vol. 307. – P. 205.
138. Listorti A., O'Regan B., Durrant J.R. Electron transfer dynamics in dye-sensitized solar cells // *Chem. Mater.* – 2011. – Vol. 23. – P. 3381.
139. Schultze M., Bothschafter E.M., Sommer A. Controlling dielectrics with the electric field of light // *Nature.* – 2013. – Vol. 493. – P. 75.
140. Lanin A.A., Stepanov E.A., Fedotov A.B. et al. Mapping the electron band structure by intraband high-harmonic generation in solids // *Optica.* – 2017. – Vol. 4. – P. 516.
141. Vampa G., Hammond T.J., Thiré N. All-optical reconstruction of crystal band structure // *Phys. Rev. Lett.* – 2015. – Vol. 115. – P. 193603.
142. Zhong H., Redo-Sanchez A., Zhang X.C. Identification and classification of chemicals using terahertz reflective spectroscopic focal-plane imaging system // *Opt. Express.* – 2006. – Vol. 14. – P. 9130.
143. Suzuki T., Shimano R. Exciton mott transition in Si revealed by terahertz spectroscopy // *Phys. Rev. Lett.* – 2012. – Vol. 109. – P. 046402.
144. Jamison S.P., Shen J., Jones D.R. et al. Plasma characterization with terahertz time-domain measurements // *J. Appl. Phys.* – 2003. – Vol. 93. – P. 4334.

145. Liu H.B., Zhong H., Karpowicz N. et al. Terahertz spectroscopy and imaging for defense and security applications // Proc. IEEE. – 2007. – Vol. 95. – P. 1514.
146. Fillippidis G., Massaouti M., Selimis A. et al. Nonlinear imaging and THz diagnostic tools in the service of Cultural Heritage // Appl. Phys. A. – 2012. – Vol. 106. – P. 257.
147. Hu B.B., Nuss M.C. Imaging with terahertz waves // Opt. Lett. – 1995. – Vol. 20. – P. 1716.
148. Keldysh L.V. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave // Sov. Phys. JETP. – 1964. – Vol. 20. – P. 1307.
149. Nikishov A.I., Ritus V.I. Ionization of systems bound by short-range forces by the field of an electromagnetic wave // Sov. Phys. JETP. – 1966. – Vol. 23. – P. 168.
150. Perelomov A.M., Popov V.S., Terent'ev M.V. Ionization of atoms in an alternating electric field // Sov. Phys. JETP. – 1966. – Vol. 23. – P. 924.
151. Perelomov A.M., Popov V.S., Terent'ev M.V. Ionization of atoms in an alternating electric field: II // Sov. Phys. JETP. – 1967. – Vol. 24. – P. 207.
152. Ammosov M.V., Delone N.B., Krainov V.P. Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field // Sov. Phys. JETP. – 1986. – Vol. 64. – P. 1191.
153. Faisal F.H. Multiple absorption of laser photons by atoms // J. Phys. B: At. Mol. Phys. – 1973. – Vol. 6. – P. L89.
154. Reiss H.R. Effect of an intense electromagnetic field on a weakly bound system // Phys. Rev. A. – 1980. – Vol. 22. – P. 1786.
155. Derrien T.J.-Y., Tancogne-Dejean N., Zhukov V.P. et al. Photoionization and transient Wannier-Stark ladder in silicon: First-principles simulations versus Keldysh theory // Phys. Rev. B. – 2021. – Vol. 104. – P. L241201.
156. Zhokhov P.A., Zheltikov A.M. Field-cycle-resolved photoionization in solids // Phys. Rev. Lett. – 2014. – Vol. 113. – P. 133903.
157. Volkova E.A., Popov A.M., Tikhonov M.A. et al. Atom under an intense laser pulse: Stabilization effect and strong-field approximation // J. Exp. Theor. Phys. – 2007. – Vol. 105. – P. 526.
158. Seely J.F., Harris E.G. Heating of a plasma by multiphoton inverse bremsstrahlung // Phys. Rev. A. – 1973. – Vol. 7. – P. 1064.
159. Arnold D., Cartier E. Theory of laser-induced free-electron heating and impact ionization in wide-band-gap solids // Phys. Rev. B. – 1992. – Vol. 46. – P. 15102.
160. Barilleau L., Duchateau G., Chimier B. et al. Influence of non-collisional laser heating on the electron dynamics in dielectric materials // J. Phys. D: Appl. Phys. – 2016. – Vol. 49. – P. 485103.

161. Keldysh L.V. Kinetic theory of impact ionization in semiconductors // *Sov. Phys. JETP.* – 1960. – Vol. 10. – P. 509.
162. Antoncik E., Landsberg P.T. Overlap integrals for bloch electrons // *Proc. Phys. Soc.* – 1963. – Vol. 82. – P. 337.
163. Epifanov A.S., Manenkov A.A., Prokhorov A.M. Theory of avalanche ionization induced in transparent dielectrics by an electromagnetic field // *Sov. Phys. JETP.* – 1976. – Vol. 70. – P. 728.
164. Holway L.H., Fradin D.W. Electron avalanche breakdown by laser radiation in insulating crystals // *J. of Appl. Phys.* – 1975. – Vol. 46. – P. 279.
165. Stuart B.C., Feit M.D., Rubenchik A.M. et al. Laser-induced damage in dielectrics with nanosecond to subpicosecond pulses // *Phys. Rev. Lett.* – 1995. – Vol. 74. – P. 2248.
166. Rethfeld B. Free-electron generation in laser-irradiated dielectrics // *Phys. Rev. B.* – 2006. – Vol. 73. – P. 035101.
167. Sergaeva O., Gruzdev V., Austin D. et al. Ultrafast excitation of conduction-band electrons by high-intensity ultrashort laser pulses in band-gap solids: Vinogradov equation versus Drude model // *J. Opt. Soc. Am. B.* – 2018. – Vol. 35. – P. 2895.
168. Deziel J.-L., Dube L.J., Varin C. Dynamical rate equation model for femtosecond laser-induced breakdown in dielectrics // *Phys. Rev. B.* – 2021. – Vol. 104. – P. 045201.
169. Ehrhardt M., Lorenz P., Zimmer K. et al. Ultraprecise surface processing by etching with laser-induced plasmas. In *ultrafast laser nanostructuring: The pursuit of extreme scales* // Cham: Springer International Publishing. – 2023. – P. 653.
170. Kudryashov S., Rupasov A., Kosobokov M. Hierarchical multi-scale coupled periodical photonic and plasmonic nanopatterns inscribed by femtosecond laser pulses in lithium niobate // *Nanomaterials.* – 2022. – Vol. 12. – P. 4303.
171. Fischer J., Wegener M. Three-dimensional optical laser lithography beyond the diffraction limit // *Las. Photon. Rev.* – 2013. – Vol. 7. – P. 22.
172. Ams M., Marshall G.D., Dekker P. et al. Ultrafast laser written active devices // *Las. Photon. Rev.* – 2009. – Vol. 3. – P. 535.
173. Bonod N., Neauport J. Diffraction gratings: from principles to applications in high-intensity lasers // *Adv. Opt. Photon.* – 2016. – Vol. 8. – P. 156.
174. Chen F., deAldana J.R.V. Optical waveguides in crystalline dielectric materials produced by femtosecond-laser micromachining // *Las. Photon. Rev.* – 2014. – Vol. 8. – P. 251.
175. Gattass R.R., Mazur E. Femtosecond laser micromachining in transparent materials // *Nat. Photon.* – 2008. – Vol. 2. – P. 219.
176. Zhukov V.P., Bulgakova N.V., Fedoruk N.M. Modelling of impact of a sequence of laser pulses with different wavelengths on glass // *Comput. Technol.* – 2017. – Vol. 22. – P. 48.

177. Potemkin F.V., Mareev E.I., Bezsudnova Yu.I. et al. Enhancing nonlinear energy deposition into transparent solids with an elliptically polarized and mid-IR heating laser pulse under two-color femtosecond impact // *Laser Phys. Lett.* – 2017. – Vol. 14. – P. 065403.
178. Zavedeev E.V., Kononenko V.V., Konov V.I. Delocalization of femtosecond laser radiation in crystalline Si in the mid-IR range // *Laser Phys.* – 2016. – Vol. 26. – P. 016101.
179. Kononenko V.V., Konov V.V., Dianov E.M. Delocalization of femtosecond radiation in silicon // *Opt. Lett.* – 2012. – Vol. 37. – P. 3369.
180. Chanal M., Fedorov V.Y., Chambonneau M. et al. Crossing the threshold of ultrafast laser writing in bulk silicon // *Nat. Commun.* – 2017. – Vol. 8. – P. 773.
181. Mori M., Shimotsuma Y., Sei T. et al. Tailoring thermoelectric properties of nanostructured crystal silicon fabricated by infrared femtosecond laser direct writing // *Phys. Status Solidi A.* – 2015. – Vol. 212. – P. 715.
182. Wang A., Das A., Grojo D. Temporal-contrast imperfections as drivers for ultrafast laser modifications in bulk silicon // *Phys. Rev. Research.* – 2020. – Vol. 2. – P. 033023.
183. Chambonneau M., Lavoute L., Gaponov D. et al. Competing nonlinear delocalization of light for laser inscription inside silicon with a 2 μs picosecond laser // *Phys. Rev. Appl.* – 2019. – Vol. 12. – P. 024009.
184. Mareev E.I., Lvov K.V., Rumiantsev B.V. et al. Effect of pulse duration on the energy delivery under nonlinear propagation of tightly focused Cr:forsterite laser radiation in bulk silicon // *Laser Phys. Lett.* – 2020. – Vol. 17. – P. 015402.
185. Das A., Wang A., Uteza O. et al. Pulse-duration dependence of laser-induced modifications inside silicon // *Opt. Express.* – 2020. – Vol. 28. – P. 26623.
186. Mareev E., Pushkin A., Migal E. et al. Single-shot femtosecond bulk micromachining of silicon with mid-IR tightly focused beams: microvoid formation // *Scientific Rep.* – 2022. – Vol. 12. – P. 7517.
187. Esarey E., Sprangle P., Krall J. et al. Self-focusing and guiding of short laser pulses in ionizing gases and plasmas // *IEEE Journal of Quantum Electronics.* – 1997. – Vol. 33. – P. 1879.
188. Penano J.R., Sprangle P., Hafizi B. et al. Transmission of intense femtosecond laser pulses into dielectrics // *Phys. Rev. E.* – 2005. – Vol. 72. – P. 036412.
189. Yablonovitch E., Bloembergen N. Avalanche ionization and the limiting diameter of filaments induced by light pulses in transparent media // *Phys. Rev. Lett.* – 1972. – Vol. 29. – P. 907.
190. Sprangle P., Penano J.R., Hafizi B. et al. Ultrashort laser pulses and electromagnetic pulse generation in air and on dielectric surfaces // *Phys. Rev. E.* – 2004. – Vol. 69. – P. 066415.
191. Ахманов С.А., Никитин С.Ю. *Физическая оптика* // Москва: Наука. – 2004. – 656 с.

192. Sinkin O.V., Holzlohner R., Zweck J. et al. Optimization of the split-step fourier method in modeling optical-fiber communications systems // *IEEE J. Lightwave Tech.* – 2003. – Vol. 21. – P. 61.
193. Fibich G., Ilan B. Vectorial and random effects in self-focusing and in multiple filamentation // *Physica D: Nonlinear Phenomena.* – 2001. – Vol. 157. – P. 112.
194. Andreasen J., Kolesik M. Nonlinear propagation of light in structured media: Generalized unidirectional pulse propagation equations // *Phys. Rev. E.* – 2012. – Vol. 86. – P. 036706.
195. Manakov N.L., Ovsianikov V.D., Rapoport L.P. Atoms in a laser field // *Phys. Rep.* – 1986. – Vol. 141. – P. 319.
196. Medvedev N., Rethfeld B. A comprehensive model for the ultrashort visible light irradiation of semiconductors // *J. Appl. Phys.* – 2010. – Vol. 108. – P. 103112.
197. Ramer A., Osmani O., Rethfeld B. Laser damage in silicon: Energy absorption, relaxation, and transport // *J. Appl. Phys.* – 2014. – Vol. 116. – P. 053508.
198. Balling P., Schou J. Femtosecond-laser ablation dynamics of dielectrics: basics and applications for thin films // *Rep. Prog. Phys.* – 2013. – Vol. 76. – P. 036502.
199. Christensen B.H., Balling P. Modeling ultrashort-pulse laser ablation of dielectric materials // *Phys. Rev. B.* – 2009. – Vol. 79. – P. 155424.
200. Green M.A. Intrinsic concentration, effective densities of states, and effective mass in silicon // *J. of Appl. Phys.* – 1990. – Vol. 67. – P. 2944.
201. Bohara B., Franklin L., Malazovsky Y. et al. Ab-initio calculations of electronic and transport properties of calcium fluoride (CaF₂) // *Research Gate.* – 2016.
202. Fedorov V.Y., Chanal M., Grojo D. et al. Accessing extreme spatiotemporal localization of high-power laser radiation through transformation optics and scalar wave equations // *Phys. Rev. Lett.* – 2016. – Vol. 117. – P. 043902.
203. Kononenko V.V., Zavedeev E.V., Gololobov V.M. The effect of light-induced plasma on propagation of intense fs laser radiation in c-Si // *Appl. Phys. A.* – 2016. – Vol. 122. – P. 293.
204. Eidmann K., Meyerter V.J., Schlegel T. et al. Hydrodynamic simulation of subpicosecond laser interaction with solid-density matter // *Phys. Rev. E.* – 2000. – Vol. 62. – P. 1202.
205. Yablonovitch E., Gmitter T. Auger recombination in silicon at low carrier densities // *Appl. Phys. Lett.* – 1986. – Vol. 49. – P. 587.
206. Richter A., Glunz S.W., Werner F. et al. Improved quantitative description of Auger recombination in crystalline silicon // *Phys. Rev. B.* – 2012. – Vol. 86. – P. 165202.
207. Shcheblanov N.S., Itina T.E. Femtosecond laser interactions with dielectric materials: insights of a detailed modeling of electronic excitation and relaxation processes // *Appl. Phys. A.* – 2013. – Vol. 110. – P. 579.

208. Gryziński M. Classical theory of atomic collisions. I. Theory of inelastic collisions // *Phys. Rev.* – 1965. – Vol. 138. – P. A336.
209. Holway L.H. High-frequency breakdown in ionic crystals // *J. of Appl. Phys.* – 1974. – Vol. 45. – P. 677.
210. Petersen C., Moller U., Kubat I. et al. Mid-infrared supercontinuum covering the 1.4–13.3 μm molecular fingerprint region using ultra-high NA chalcogenide step-index fibre // *Nature Photon.* – 2014. – Vol. 9. – P. 830.
211. Šuminas R., Tamošauskas G., Jukna V. et al. Second-order cascading-assisted filamentation and controllable supercontinuum generation in birefringent crystals // *Optics express.* – 2017. – Vol. 25. – P. 6746.
212. Li H.H. Refractive index of alkaline earth halides and its wavelength and temperature derivatives // *J. Phys. Chem. Ref. Data.* – 1980. – Vol. 9. – P. 161.
213. Yang Y., Bi W., Li X. et al. Ultrabroadband supercontinuum generation through filamentation in a lead fluoride crystal // *J. Opt. Soc. Am. B.* – 2019. – Vol. 36. – P. A1.
214. Adair R., Chase L.L., Payne S.A. Nonlinear refractive index of optical crystals // *Phys. Rev. B.* – 1989. – Vol. 39. – P. 3337.
215. Brunel F. Harmonic generation due to plasma effects in a gas undergoing multiphoton ionization in the high-intensity limit // *J. Opt. Soc. Am. B.* – 1990. – Vol. 7. – P. 521.
216. Jürgens P., Liewehr B., Kruse B. et al. Origin of strong-field-induced low-order harmonic generation in amorphous quartz // *Nat. Phys.* – 2020. – Vol. 16. – P. 1035.
217. Cristiani I., Tediosi R., Tartara L. Dispersive wave generation by solitons in microstructured optical fibers // *Opt Express.* – 2004. – Vol. 12. – P. 124.
218. Balcou P., L’Huillier A. Phase-matching effects in strong-field harmonic generation // *Phys. Rev. A.* – 1993. – Vol. 47. – P. 1447.
219. Peck E.R., Fisher D.J. Dispersion of argon // *J. Opt. Soc. Am.* – 1964. – Vol. 54. – P. 1362.
220. Börzsönyi Á., Heiner Z., Kovács A.P. et al. Measurement of pressure dependent nonlinear refractive index of inert gases // *Opt. Express.* – 2010. – Vol. 18. – P. 25847.
221. Стремоухов С. Эффекты квази-фазового согласования в газах при генерации терагерцового излучения в двухчастотных лазерных полях // *Известия РАН. Серия Физическая.* – 2022. – Т. 86. – С. 770.
222. Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Теория поля // Москва: Наука. – 1973.
223. Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Квантовая механика. Нерелятивистская теория // Москва: Наука. – 1973.
224. Диаграммы Гротриана [Электронный ресурс] URL: <http://grotrian.nsu.ru/en/>