

МОСКОВСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ  
имени М.В. Ломоносова

На правах рукописи

ЛЬВОВ Кирилл Вячеславович

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

1.3.19. Лазерная физика

**АВТОРЕФЕРАТ**  
диссертации на соискание ученой степени  
кандидата физико-математических наук

Москва – 2024

Работа выполнена на кафедре оптики, спектроскопии и физики наносистем физического факультета Московского государственного университета имени М.В. Ломоносова.

Научный руководитель: **Стремоухов Сергей Юрьевич**,  
доктор физико-математических наук, доцент.

Официальные оппоненты: **Бугай Александр Николаевич**,  
доктор физико-математических наук,  
Международная межправительственная  
организация «Объединенный институт ядерных  
исследований», директор лаборатории  
радиационной биологии;

**Манцызов Борис Иванович**,  
доктор физико-математических наук, профессор,  
Федеральное государственное бюджетное  
образовательное учреждение высшего  
образования «Московский государственный  
университет имени М.В. Ломоносова»,  
физический факультет, кафедра общей физики,  
профессор;

**Дормидонов Александр Евгеньевич**,  
кандидат физико-математических наук,  
Федеральное государственное унитарное  
предприятие «Всероссийский научно-  
исследовательский институт автоматики  
им. Н.Л. Духова», начальник научно-  
исследовательского отдела.

Защита состоится «02» октября 2024 г. в 15 часов 00 минут на заседании диссертационного совета МГУ.013.4 Московского государственного университета имени М.В. Ломоносова по адресу: 119991, г. Москва, ул. Ленинские горы, д. 1, с. 62, корпус нелинейной оптики, аудитория им. С.А. Ахманова.

E-mail: [diss.sov.31@physics.msu.ru](mailto:diss.sov.31@physics.msu.ru)

С диссертацией можно ознакомиться в отделе диссертаций научной библиотеки МГУ имени М.В. Ломоносова (Ломоносовский просп., д. 27) и на сайте: <https://dissovet.msu.ru/dissertation/3080>.

Автореферат разослан «01» июля 2024 г.

Ученый секретарь  
диссертационного совета МГУ.013.4,  
кандидат физико-математических наук

А.А. Коновко

### Общая характеристика работы

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/см<sup>2</sup>) 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/см<sup>2</sup>) 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.

5. 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 усовершенствованной 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 (~ 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) позволяют оптимизировать эффективность 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 9 статьях** общим объемом 4,94 печ.л., опубликованных в рецензируемых журналах: Laser Physics Letters, Journal of optics, Scientific reports, Materials Today Communications, Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики, Известия РАН – Серия Физическая, Квантовая электроника, а также представлены 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.

**Объем и структура работы.** Диссертация состоит из введения, четырех глав, заключения и списка цитируемой литературы. Полный объем диссертации составляет 126 страниц, включая 28 рисунков. Список цитируемой литературы содержит 224 наименования.

### **Содержание работы**

Во **Введении** обосновывается актуальность темы исследований, проводимых в рамках данной диссертационной работы, и степень ее разработанности, формулируется цель и основные задачи работы, описывается объект и предмет исследования, излагается научная новизна, теоретическая и практическая значимость диссертации, формулируются положения, выносимые на защиту, описывается степень достоверности и апробация результатов работы, а также личный вклад автора.



**Первая глава** содержит обзор современного состояния исследований нелинейно-оптических взаимодействий фемтосекундного лазерного излучения с газовыми и конденсированными средами. В разделе 1.1 этой главы представлены результаты исследований по генерации суперконтинуума в различных средах и в различных режимах распространения (нормальная и аномальная дисперсия групповой скорости). В разделах 1.2 и 1.3 описываются механизмы генерации гармоник низкого и высокого порядка соответственно и приводятся результаты теоретических исследований этих вопросов. Раздел 1.4 раскрывает особенности генерации когерентного излучения от источников инфракрасного диапазона, активно разрабатываемых в настоящее время. В разделе 1.5 указаны условия фазового синхронизма при генерации гармоник, обозначены различные вклады в расстройку волновых векторов, а также приведены перспективные режимы фазового синхронизма гармоник и основной частоты. В разделе 1.6 рассмотрены некоторые способы управления характеристиками генерируемого когерентного излучения (яркость, спектральный диапазон) в газовых и конденсированных средах. В разделе 1.7 перечислены теоретические подходы к описанию возбуждения среды фемтосекундным лазерным излучением и распространения лазерного излучения в нелинейной среде. Раздел 1.8 содержит перечисление различных применений когерентного излучения в исследовательских целях, в методах диагностики состояния вещества, в медицине, в химии молекул, повышении безопасности и др. В разделе 1.9 приведены результаты исследований по возбуждению среды лазерным излучением, генерации свободных зарядов и их динамики, а в разделе 1.10 – по модификации структуры вещества лазерным излучением.

**Вторая глава** является методологической и содержит в себе описание метода численного расчета распространения лазерного излучения в нелинейной среде, возбуждения в ней свободных носителей заряда и генерации когерентного излучения. В разделе 2.1 представлена модель однонаправленного распространения лазерного импульса (UPPE), учитывающая дифракцию излучения, полную дисперсию среды, наличие керровской и плазменной нелинейностей, поглощения лазерного излучения вследствие фотоионизации среды. В разделе 2.2 приводится выражение для нелинейной поляризации среды в виде ряда по степеням лазерного поля, в котором коэффициентами разложения являются тензоры нелинейной восприимчивости среды. Раздел 2.3 содержит выражение для скорости ионизации среды, представимой в виде двух механизмов: многофотонного и туннельного. В разделе 2.4 описывается модель Друде динамики свободных зарядов, генерируемых при фотоионизации среды, и приводится выражение для плотности тока свободных зарядов, который

определяет поглощение и дефокусировку лазерного излучения. В разделе 2.5 приводится метод совместного численного решения уравнения UPPE и уравнения динамики свободных носителей заряда, который позволяет получить информацию о распределении по пространству и времени интенсивности лазерного излучения и концентрации свободных носителей. В разделе 2.6 сформулированы основные выводы по главе 2.

**Третья глава** содержит описание методов расчета динамики свободных носителей заряда и их преимуществ и недостатков по сравнению с другими методами, а также разрабатывается усовершенствованная модель динамики свободных носителей заряда UPPE, которая со значительно более высокой степенью точности применима для исследования возбуждения вещества лазерными источниками ближнего и среднего инфракрасного диапазонов.

В разделе 3.1 описывается кинетическая модель на основе уравнения Фоккера-Планка и указывается на сложность ее использования в задаче по распространению лазерного излучения, поскольку для этого требуются большие вычислительные и временные ресурсы. Значительно более простыми, но менее точными являются скоростные модели динамики свободных носителей заряда: однокоростная (SRE) и многокоростная (MRE), а также ее некоторые модификации. Особенностью модели MRE является рассмотрение динамики населенностей конечного числа уровней энергии в зоне проводимости и использование феноменологически определяемых вероятностей (скоростей) «перемещения» зарядов по уровням энергии и ударной ионизации.

В разделе 3.2 указывается на невозможность применения модели MRE в среднем инфракрасном диапазоне длин волн лазерного излучения, поскольку в этом случае значительная доля свободных носителей заряда накапливается на верхнем дискретном уровне энергии. Предложена усовершенствованная модель динамики свободных носителей – Extended Multiple Rate Equation (EMRE), в которой вводится дополнительный усредненный уровень энергии (Рисунок 1), расположенный выше всех дискретных уровней и характеризуемый населенностью  $\rho_a$  и плотностью энергии  $u_a$ , динамика которых задается следующими уравнениями:

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho_a}{\partial t} &= \alpha_{1ph}(I, \varepsilon_N) \rho_N - \alpha_{imp}(\varepsilon_a) \rho_a, \\ \frac{\partial u_a}{\partial t} &= \alpha_{1ph}(I, \varepsilon_N) \rho_N (N+1) \hbar \omega_0 + \alpha_{1ph}(I, \varepsilon_N) \rho_a \hbar \omega_0 - \alpha_{imp}(\varepsilon_a) u_a, \end{aligned} \quad (1)$$

где  $\varepsilon_N$  и  $\rho_N$  – энергия и населенность  $i$ -го уровня соответственно,  $N$  – число дискретных уровней энергии,  $I$  – интенсивность лазерного излучения,  $\hbar \omega_0$  –

энергия кванта лазерного излучения,  $\alpha_{1ph}$  – скорость однофотонного поглощения,  $\alpha_{imp}$  – скорость ударной ионизации.

В модели EMRE также предложено использовать аналитические выражения для скорости однофотонного поглощения и скорости ударной ионизации, поскольку энергия носителей заряда изменяется в широких пределах, и указанные скорости не могут считаться величинами, не зависящими от их энергии:

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

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

где  $E_p$  – пондеромоторная энергия,  $v_c$  – полная частота столкновений носителей,  $v_{ee}$  – частота электрон-электронных столкновений,  $v_{en}$  – частота электрон-нейтральных столкновений,  $\varepsilon_{cr}$  – критическая энергия, необходимая для участия носителей в ударной ионизации,  $P$  – числовой коэффициент порядка единицы, определяемый зонной структурой.

В разделе 3.3 модель EMRE успешно применена для расчета объемной плотности энергии (DED), переданной объему кремния фемтосекундным лазерным излучением. Результаты численных исследований с помощью модели EMRE воздействия лазерных импульсов длительности 200 фс с длиной волны 1,2 – 4,5 мкм и флюенсом до 0,1 Дж/см<sup>2</sup> показывают, что при флюенсе  $F_{melt} \approx 0,05$  Дж/см<sup>2</sup> достигается порог плавления кристаллической решетки кремния (горизонтальная пунктирная линия на Рисунке 2). Следует отметить, что полученное пороговое значение флюенса соответствует экспериментальным данным по микромодификации объема кремния одиночными импульсами среднего инфракрасного диапазона, в то время как модель MRE требует значительно больших значений флюенса для плавления кристаллической решетки материала.

Максимальное значение флюенса  $F_{max}$ , при котором наблюдаются расхождения в 10% в результатах моделей EMRE и MRE, т.е. при котором необходим учет нагрева свободных носителей заряда до энергий выше критической, в целом уменьшается с длиной волны (Рисунок 3), осцилляции связаны с изменением порядка многофотонности процесса ионизации. Как следует из Рисунка 3, для длин волн ближнего ИК диапазона (3,5 – 4,5 мкм)  $F_{max}$  составляет около 0,01 Дж/см<sup>2</sup>, что соответствует пиковой интенсивности лазерного излучения  $5 \cdot 10^{10}$  Вт/см<sup>2</sup>. Расчеты динамики свободных носителей,

индуцированных лазерным полем такой интенсивности, показывают, что плотность генерируемых свободных носителей не превышает  $5 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$  ( $10^{-4}$  от плотности атомов). Это означает, что даже для слабого электронного возбуждения в кремнии в среднем ИК-диапазоне стандартная модель MRE становится неприменимой, и необходимо использовать усовершенствованную модель EMRE.

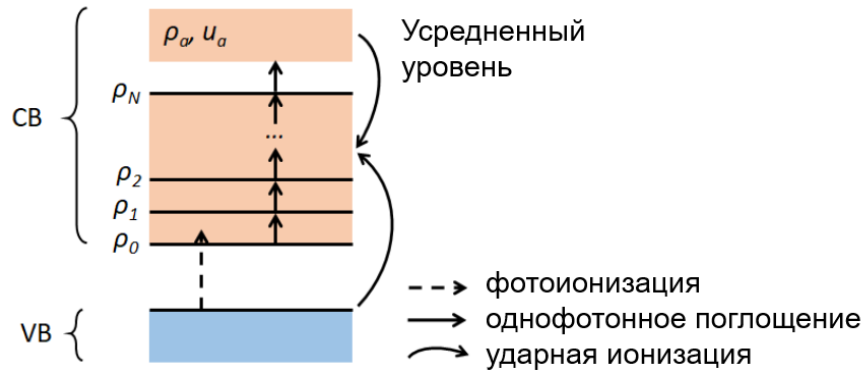


Рисунок 1. Схема энергетических уровней и процессов, составляющих динамику свободных носителей заряда в модели EMRE.

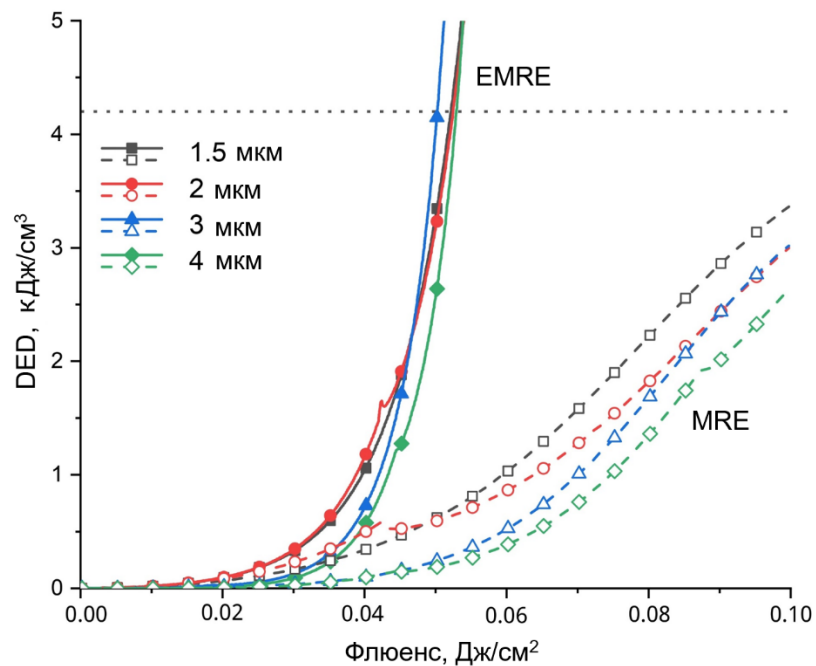


Рисунок 2. Объемная плотность поглощенной энергии DED в кремнии в зависимости от длины волны лазерного излучения, рассчитанная с использованием моделей EMRE (сплошные линии) и MRE (пунктирные линии). Горизонтальным пунктиром отмечен порог плавления кристаллической решетки кремния –  $4,2 \text{ кДж/см}^3$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

В [разделе 3.4](#) анализируется влияние дисперсионного слагаемого уравнения Фоккера-Планка на особенности динамики свободных носителей заряда и проводится внедрение дисперсионного слагаемого в модель EMRE для

увеличения ее точности при сохранении малого (по сравнению с уравнением Фоккера-Планка) времени вычислений.

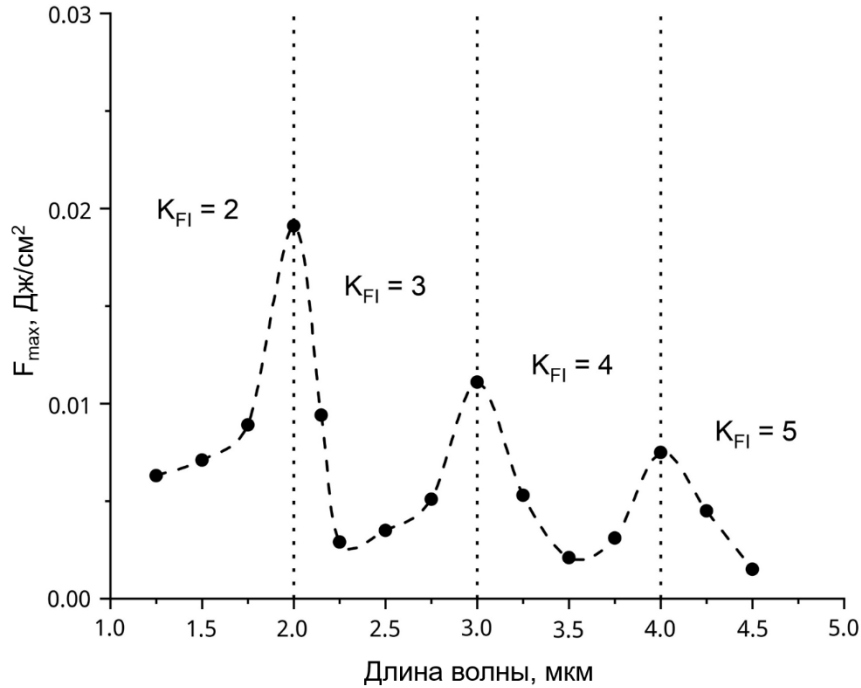


Рисунок 3. Максимальный флюенс лазерного излучения  $F_{\max}$ , при котором разница между DED, полученными с использованием моделей MRE и EMRE, составляет 10%. Вертикальные пунктирные линии разграничивают диапазоны длин волн с разным порядком многофотонности процесса фотоионизации (на рисунке отмечен как  $K_{FI}$ ).

Уравнение Фоккера-Планка, являющееся приближением уравнения Больцмана, описывает динамику плотности распределения свободных носителей  $f(\varepsilon, t)$  в зоне проводимости:

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

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

где  $S_{\varepsilon}(\varepsilon, t)$  – плотность генерации (или рекомбинации) носителей заряда,  $J(\varepsilon, t)$  – поток плотности носителей,  $\sigma(\varepsilon)$  – проводимость носителей,  $I(t)$  – интенсивность лазерного излучения,  $e$  – заряд электрона,  $m_e$  – эффективная масса носителей,  $\nu_c(\varepsilon)$  – частота столкновений носителей,  $\omega_0$  – частота лазерного поля.

Первое слагаемое потока плотности носителей заряда описывает их нагрев лазерным полем, а второе – дисперсию плотности распределения носителей по энергии. 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.

Результаты расчетов динамики плотности распределения зарядов по зоне проводимости в  $\text{CaF}_2$  при длине волны лазерного излучения 1,24 мкм позволяют проследить плавное уширение энергетического спектра на переднем фронте лазерного импульса, а затем, при накоплении носителей с энергией выше критической, начало активного действия ударной ионизации (формирования режима лавинной ионизации), при котором обедняется область энергий выше критической и заметно падение средней кинетической энергии (Рисунок 4).

На Рисунке 4а показана динамика средней кинетической энергии свободных носителей заряда при различных флюенсах лазерного излучения. При малых флюенсах ( $F < 0,03 \text{ Дж/см}^2$ ) средняя кинетическая энергия носителей монотонно увеличивается, что свидетельствует о постепенном нагреве носителей в лазерном поле. Однако при больших флюенсах ( $F > 0,3 \text{ Дж/см}^2$ ), в режиме лавинной ионизации, плавный нагрев носителей передним фронтом импульса сменяется уменьшением средней кинетической энергии  $0,56E_g$  (где  $E_g$  – ширина запрещенной зоны).

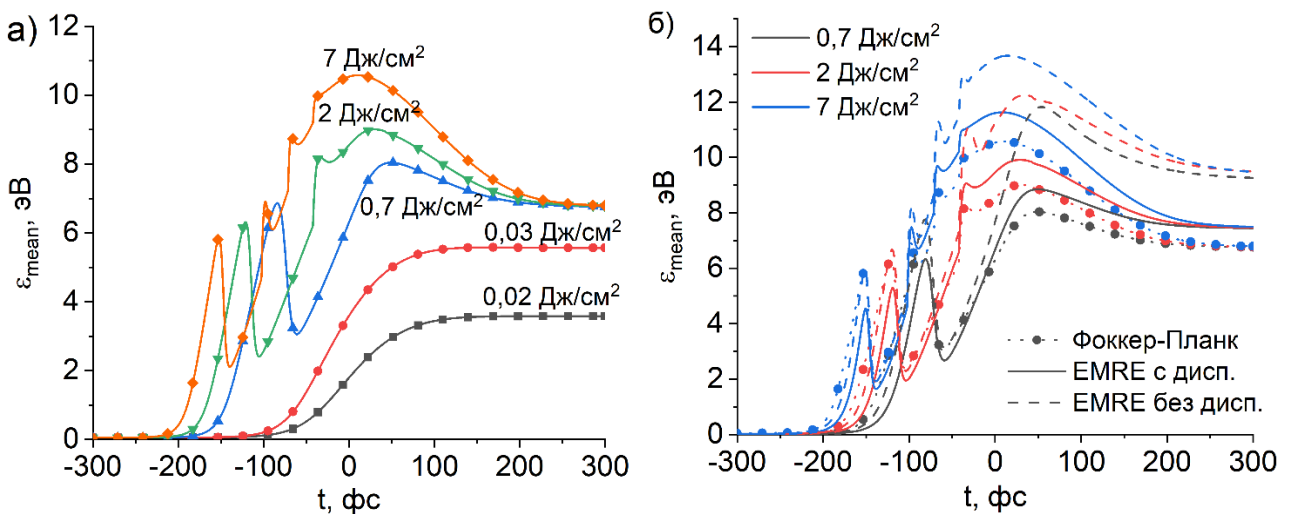


Рисунок 4. Динамика средней кинетической энергии свободных носителей заряда в  $\text{CaF}_2$  при различных флюенсах лазерного излучения: а) по модели

EMRE, б) по моделям Фоккера-Планка, EMRE с учетом и без учета дисперсионного слагаемого. Длина волны лазерного излучения  $\lambda = 1,24$  мкм.

Примечательным является тот факт, что это значение не зависит от флюенса лазерного излучения и ширины запрещенной зоны материала. Наблюдаемая особенность позволяет заключить о формировании динамического баланса между лазерным нагревом свободных носителей заряда 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.

Применение модели Фоккера-Планка, например, в задаче распространения лазерного излучения требует огромных вычислительных ресурсов, поскольку необходима достаточная степень дискретизации расчетной сетки энергии свободных носителей заряда. Наиболее простым и логичным способом упростить расчеты является использование скоростных моделей динамики свободных носителей. Дисперсионное слагаемое уравнения Фоккера-Планка внедряется в модель EMRE следующим образом:

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho_a}{\partial t} &= I(t) \sigma(\varepsilon_{cr}) \frac{\rho_a^2}{u_a - \varepsilon_{cr} \rho_a} - \frac{2}{3} I(t) \frac{\partial}{\partial \varepsilon} (\varepsilon_{cr} \sigma(\varepsilon_{cr}) f(\varepsilon_{cr})), \\ \frac{\partial u_a}{\partial t} &= I(t) \rho_a \left( \sigma(\varepsilon_{cr}) \frac{\varepsilon_{cr} \rho_a}{u_a - \varepsilon_{cr} \rho_a} + \sigma\left(\frac{u_a}{\rho_a}\right) \right) + \\ &+ \frac{2}{3} I(t) \left( \varepsilon_{cr} \sigma(\varepsilon_{cr}) f(\varepsilon_{cr}) - \varepsilon_{cr} \frac{\partial}{\partial \varepsilon} (\varepsilon_{cr} \sigma(\varepsilon_{cr}) f(\varepsilon_{cr})) \right). \end{aligned} \quad (4)$$

Дисперсионное слагаемое практически не изменяет точность вычисления по модели EMRE полной концентрации свободных носителей в зоне проводимости – результаты совпадают с моделью Фоккера-Планка. Однако использование модели EMRE с дисперсионным слагаемым позволяет сократить отличие в средней кинетической энергии носителей на 2,1 эВ, т.е. на 30% (Рисунок 4б).

Использование модели EMRE с дисперсионным слагаемым сохраняет основное преимущество скоростных моделей – быстроту проводимых расчетов. Разница составляет ~ 20 раз по сравнению с моделью Фоккера-Планка.

В разделе 3.5 содержатся основные выводы по главе 3.

**Четвертая глава** посвящена генерации когерентного излучения при распространении лазерного излучения в газовых и конденсированных средах.

В разделе 4.1 проводится анализ роли внешней фокусировки в трансформации спектра суперконтинуума в среде с аномальной дисперсией групповой скорости.

Установлено, что в режиме слабой нелинейности, когда интенсивность лазерного излучения настолько мала, что плазменная фазовая модуляция и самомодуляция незначительны, эффективность генерации гармоник низкого порядка пропорциональна 4-й степени фокусного расстояния фокусирующей линзы. Например, такой режим распространения имеет место в  $CaF_2$  при длине волны лазерного излучения 4,4 мкм, длительности 200 фс, фокусном расстоянии

более 6 см и энергии импульса менее 10 мкДж. Такая зависимость эффективности генерации гармоники от фокусного расстояния обусловлена тем, что эффективность генерации (энергия гармоники) пропорциональна квадрату длины нелинейного взаимодействия, которая может быть оценена как длина перетяжки, которая пропорциональна квадрату фокусного расстояния.

При увеличении энергии лазерного импульса спектр когерентного излучения, первоначально состоящий из отдельных гармоник, превращается в непрерывный спектр суперконтинуума, что вызвано фазовой самомодуляцией и в большей степени плазменной фазовой модуляцией. В работе показано, что формирование суперконтинуума сопровождается резким ростом плотности свободных носителей заряда, генерируемых лазерным излучением в материале.

В среде с отрицательной дисперсией групповых скоростей (большинство диэлектриков обладают такой дисперсией в средней инфракрасной области) формируется антистоксово крыло спектра суперконтинуума – усиление спектральной яркости узкой области в коротковолновой области спектра, связанное с конструктивной интерференцией сигналов на этой частоте от каждой точки среды [4]:

$$\omega_{АСК}n(\omega_{АСК}) - \omega_0n_0 - \frac{c}{v_g}(\omega_{АСК} - \omega_0) = 0, \quad (5)$$

где  $n(\omega_{АСК})$  – дисперсия среды,  $\omega_{АСК}$  – частота антистоксова крыла,  $\omega_0$  – частота лазерного излучения,  $n_0$  – линейный показатель преломления,  $c$  – скорость света в вакууме,  $v_g$  – групповая скорость в среде.

Однако, как показывают численные исследования, это резонансное условие не совсем точно описывает положение коротковолновой границы спектра суперконтинуума. К тому же, уменьшение фокусного расстояния приводит к смещению коротковолновой границы спектра в длинноволновую область (Рисунок 5а).

Предложено модифицированное уравнение, описывающее положение антистоксова крыла спектра суперконтинуума с учетом фазовой самомодуляции и плазменной фазовой модуляции:

$$\omega_{АСК} \left( n(\omega_{АСК}) - \frac{\rho}{2\rho_c(\omega_{АСК})} \right) - \omega_0 \left( n_0 + n_2I - \frac{\rho}{2\rho_c(\omega_0)} \right) - \frac{c}{v_g}(\omega_{АСК} - \omega_0) = 0, \quad (6)$$

где  $\rho$  – плотность электронной плазмы,  $\rho_c$  – критическая плотность электронной плазмы (составляет  $5,8 \cdot 10^{19}$  см<sup>-3</sup> при длине волны 4,4 мкм),  $n_2$  – нелинейный показатель преломления,  $I$  – интенсивность лазерного излучения.

На Рисунке 5б точками обозначены расчетные данные, полученные по результатам моделирования распространения лазерного излучения длиной



волны 4,4 мкм и длительность 200 фс в  $CaF_2$  при различных интенсивностях и фокусных расстояниях, а линиями изображены зависимости плотности электронной плазмы от положения антистоксова крыла, рассчитанные по модифицированному резонансному условию, для двух граничных значений интенсивностей лазерного излучения. Согласие расчетных данных и данных, полученных из предлагаемого уравнения, свидетельствует о его справедливости.

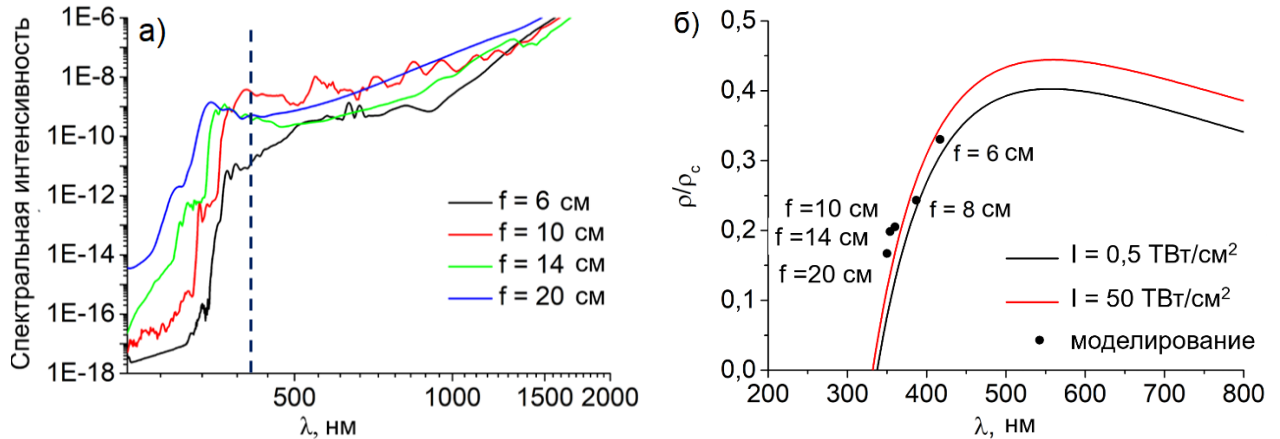


Рисунок 5. а) Коротковолновая область спектра суперконтинуума в  $CaF_2$  для различных фокусных расстояний. Энергия лазерного импульса 100 мкДж, длина волны 4,4 мкм. Вертикальной линией отмечено положение антистоксова крыла, рассчитанное по (б). б) Плотность электронной плазмы в зависимости от положения антистоксова крыла, рассчитанная по модифицированной резонансной зависимости (б).

В разделе 4.2 проводится анализ условий фазового синхронизма при генерации гармоник в газовой среде с учетом изменения волновой расстройки, вызванной модуляцией интенсивности лазерного излучения при его распространении в газовой среде.

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 зарядов. Все эти факторы объединены в модель Константа [17], 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. Однако, численные исследования генерации 3-й гармоники в аргоновой среде с давлением от 1 до 24 бар при распространении в ней лазерного излучения длительности 240 фс, длины волны 4,5 мкм, с энергией от 0,8 до 1,4 мДж (интенсивность в перетяжке от  $4,5 \cdot 10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup> до  $7,8 \cdot 10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup>) показали, что расстройка волновых векторов гармоники и основной частоты

изменяется в несколько раз на всем протяжении среды (Рисунок 6), что требует более аккуратного анализа фазового синхронизма при генерации гармоник в газовой среде, с учетом поглощения лазерного излучения в среде, а также его фазовой модуляции за счет керровской и плазменной нелинейностей.

Как следует из уравнения распространения лазерного излучения в среде (URPE), поглощение  $A$  лазерного излучения обусловлено током свободных носителей заряда и фотоионизацией, что дает следующую зависимость поглощения от интенсивности  $I$  лазерного излучения, давления  $p$  среды и

степени ее ионизации  $\frac{\rho}{\rho_{at}}$ :

$$A \sim a_1 \cdot \frac{W(I)}{I} + a_2 \cdot p^2 \cdot \frac{\rho}{\rho_{at}} \cdot I, \quad (7)$$

где  $a_1$  и  $a_2$  – некоторые размерные коэффициенты,  $W(I)$  – скорость фотоионизации. В то же время фазовая модуляция, вызываемая плазменной нелинейностью, также определяется перечисленными тремя параметрами, но взятыми с другими степенями:

$$PM \sim \frac{i\omega\rho\mathcal{E}}{v_e^2 + \omega^2} \sim \rho \cdot \mathcal{E} \sim p \cdot \frac{\rho}{\rho_{at}} \cdot \sqrt{I}, \quad (8)$$

где  $v_e$  – частота электронных столкновений,  $\mathcal{E}$  – лазерное поле.

Различные законы масштабирования поглощения и фазовой модуляции от перечисленных параметров дают возможность генерации гармоник в различных режимах. Например, при увеличении давления среды при сохранении интенсивности лазерного излучения поглощение становится доминирующим фактором.

Помимо расчета расстройки волновых векторов,  $\Delta k = 3k_z(\omega_0) - k_z(3\omega_0)$ , полезным для анализа условий фазового синхронизма при генерации гармоник оказывается сравнение фазы гармоники  $\varphi(\mathcal{E}(z, k\omega_0))$  и фазы добавки к сигналу гармоники при решении уравнения распространения  $\varphi(\partial\mathcal{E}(z, 3\omega_0)/\partial z)$ . Генерация будет проходить более эффективной, если фаза  $\varphi(\partial\mathcal{E}(z, 3\omega_0)/\partial z)$  будет совпадать или будет периодически изменяться около значения фазы  $\varphi(\mathcal{E}(z, k\omega_0))$ .

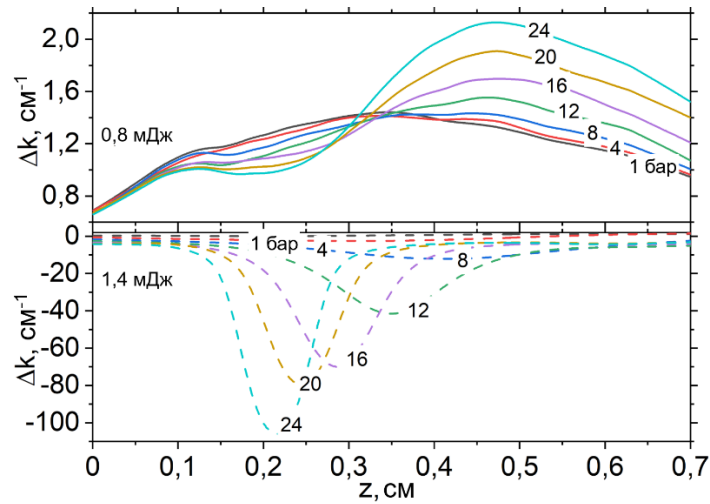


Рисунок 6. Изменение расстройки волновых векторов третьей гармоники и основной частоты. Сплошные кривые соответствуют энергии импульса 0,8 мДж, штриховые – 1,4 мДж. Разные цвета соответствуют различным давлениям аргонной среды в диапазоне от 1 до 24 бар.

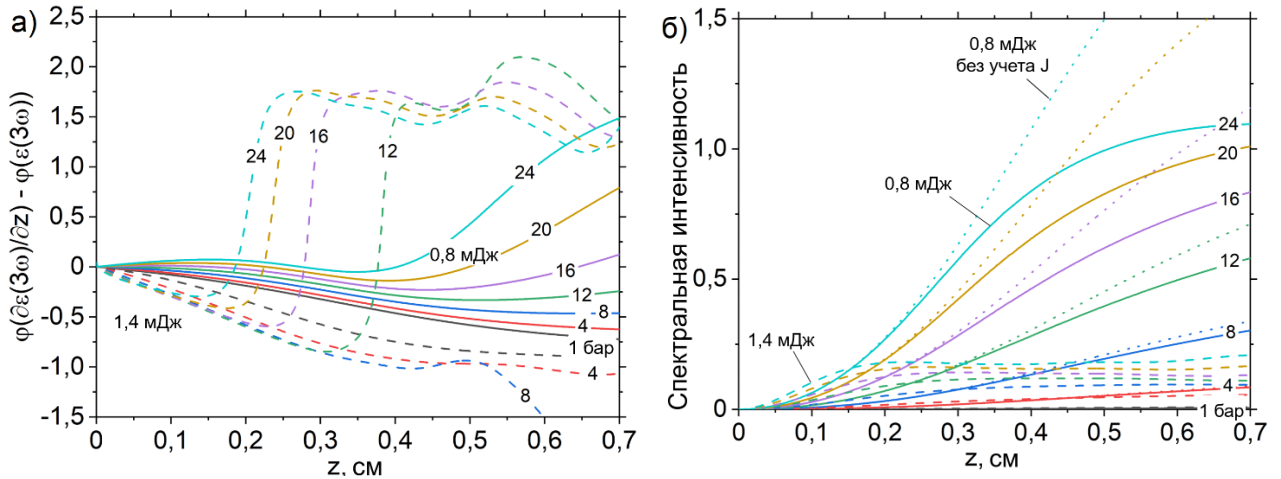


Рисунок 7. а) Разность фазы третьей гармоники и фазы небольшой добавки к третьей гармонике и б) спектральная интенсивность третьей гармоники при распространении лазерного излучения в газовой среде. Коэффициент преобразования в третью гармонику составляет  $5,9 \cdot 10^{-4}$  (при энергии 0,8 мДж и давлении 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 зарядов и поглощения вследствие фотоионизации. Разные цвета соответствуют различным давлениям в диапазоне от 1 до 24 бар.

На Рисунке 7а показаны разности этих фаз  $\Delta\varphi$ . В случае энергии лазерного импульса 0,8 мДж (сплошные линии) при малых давлениях (например, 1 бар) разность фаз 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 7б, 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 лазерного импульса 1,4 мДж в силу высокого поглощения и влияния тока свободных зарядов, разность фаз  $\Delta\varphi$  сильно отклоняется от нуля на протяжении всего распространения лазерного излучения. Единственное наблюдаемое на Рисунке 7б (штриховые линии) увеличение сигнала гармоника связано с компенсацией начальной отрицательной разности фаз  $\Delta\varphi$  положительными значениями, например, в области  $z < 0,25$  для давления 24 бар.

В разделе 4.3 описан непertурбативный подход к описанию возбуждения атомов среды лазерным полем [18]. Основная идея этого подхода состоит в оперировании двумя базисами волновых функций электрона: базис из собственных функций  $u_n(\vec{r})$  стационарного уравнения Шредингера задачи «о свободном атоме», в отсутствие лазерного поля, и базис из собственных функций  $\varphi_n(\vec{r}, t)$  задачи «об атоме в поле». Собственные функции этих двух базисов имеют одинаковые собственные значения и связаны унитарным преобразованием:

$$u_n(\vec{r}) = \sum_m V_{nm}(t) \varphi_n(\vec{r}, t),$$

$$V_{nm}(t) = \int u_n^*(\vec{r}) \exp\left(-i \frac{q}{\hbar c} \vec{A}(t) \cdot \vec{r}\right) u_m(\vec{r}) d^3\vec{r},$$
(9)

где  $\vec{A}(t)$  – векторный потенциал лазерного поля.

Разложение волновой функции электрона по этим двум базисам и подстановка его в нестационарное уравнение Шредингера приводит к системе дифференциальных уравнений 1-го порядка на амплитуды населенностей  $a_m(t)$  уровней:

$$\frac{da_n}{dt} = -\frac{i}{\hbar} \sum_{m,p} V_{nm}^{-1}(t) E_m V_{mp}(t) \cdot a_p(t).$$
(10)

Решение полученной системы позволяет далее рассчитать отклик атома на лазерное поле – плотность микроскопического тока:

$$\vec{j}(\vec{r}, t) = \frac{q}{m_e} \sum_{n,k,p,m} a_n^*(t) V_{nk}^{-1}(t) u_k^*(\vec{r}) \vec{p} u_p(\vec{r}) V_{pm}(t) a_m(t),$$
(11)

где  $q$  и  $m_e$  – заряд и масса электрона соответственно.

В разделе 4.4 на основе непertурбативной теории отклика атома на лазерное поле получено аналитическое выражение нелинейных восприимчивостей произвольного порядка газовой среды, значение которых необходимо при

расчете нелинейной поляризации среды в моделях распространения лазерного излучения.

Для этого матричные элементы  $V_{nk}^{-1}(t)$  и  $V_{pm}(t)$  были разложены в ряд по гармоническому лазерному полю, а значение амплитуд населенностей уровней было определено из системы дифференциальных уравнений (10) в первом порядке малости по населенности всех уровней, кроме основного. Эти вычисления позволили получить разложение в ряд по степеням поля микроскопической плотности тока  $\vec{j}(\vec{r}, t)$ .

Каждый атом газовой среды генерирует в окружающем пространстве электрическое поле отклика  $\vec{E}_{resp}(\vec{r}, t)$ . Суммирование этого поля по атомам среды и его усреднение по точкам наблюдения в пространстве позволяет вычислить усредненное поле откликов атомов среды  $\langle \vec{E}_{resp}(\omega) \rangle$ , которое является по сути поляризацией среды  $\vec{P}(\omega) = \varepsilon_0 \langle \vec{E}_{resp}(\omega) \rangle$ , определяя тензор нелинейной восприимчивости различных порядков:

$$\langle \vec{E}_{resp}(\omega) \rangle_s = \frac{1}{(\sqrt{2\pi})^{k-1}} \sum_{k=1}^{+\infty} \int d\omega_1 \dots d\omega_{k-1} \cdot \chi_{s, s_1, s_2, \dots, s_k}^{(k)}(\omega, \omega_1, \dots, \omega_{k-1}) \times \\ \times E_{s_1}(\omega - \omega_1) E_{s_1}(\omega_1 - \omega_2) \dots E_{s_k}(\omega_{k-1}). \quad (12)$$

Аккуратное вычисление усредненного поля откликов атомов среды  $\langle \vec{E}_{resp}(\omega) \rangle$  и его представление в виде разложения по степеням лазерного поля позволяет в первом порядке малости по населенности возбужденных уровней (по сравнению с основным уровнем) получить аналитическое выражение для нелинейной восприимчивости произвольного порядка газовой среды:

$$\chi^{(k)}(\omega) = \frac{n_{at}}{4\pi\varepsilon_0} \left( \frac{qa_B}{\hbar\omega_0} \right)^{k+1} \left( i \cdot Ry \cdot B_{at}^j B_r^j(\omega, k) + \hbar\omega_0 B_{at}^\rho B_r^\rho(\omega, k) \right), \quad (13)$$

где  $n_{at}$  – концентрация атомов среды,  $Ry = \frac{m_e e^4}{2\hbar^2} = 2,18 \cdot 10^{-18}$  Дж,  $a_B = 5,3 \cdot 10^{-11}$  м – радиус Бора,  $\omega_0$  – частота лазерного поля, слагаемое  $B_{at}^j B_r^j$  обусловлено микроскопическим током, а слагаемое  $B_{at}^\rho B_r^\rho$  – электронной плотностью.

Множители  $B_{at}$  имеют вид:

$$B_{at}^{j,\rho}(\omega, k) = B_{at}^{j,\rho(0)}(\omega, k) + B_{at}^{j,\rho(1)}(\omega, k),$$

$$B_{at}^{j(0)}(\omega, k) = \sum_{lp} \frac{E_l - E_p}{Ry} (r_z)_{lp} R_{0l,p0}^k \sum_{k_1=0}^k C_k^{k_1} (-1)^{k_1}, \frac{\omega}{\omega_0} = k - 2k_1,$$

$$B_{at}^{\rho(0)}(\omega, k) = (r_z)_{00}, \frac{\omega}{\omega_0} = 0,$$

$$B_{at}^{j(1)}(\omega, k) = \sum_{lp} \frac{E_l - E_p}{Ry} (r_z)_{lp} \sum_m \frac{E_m}{\hbar \omega_0} \sum_{k_1=0}^{k-1} \sum_{k_3=0}^{k_1} \sum_{k_2=0}^{k-k_1} \frac{C_{k_1}^{k_3} C_{k-k_1}^{k_2} (-1)^{k_3+k_2}}{k - k_1 - 2k_2 - E_0/\hbar \omega_0} \times$$

$$\times \left\{ \begin{array}{l} -\sum_n R_{0l,pn}^{k_1} R_{nm,m0}^{k-k_1}, \frac{\omega}{\omega_0} = k - 2k_3 - 2k_2 \\ -R_{0l,p0}^{k_1} R_{0m,m0}^{k-k_1} + (-1)^{k_1} \sum_{n>0} R_{0l,pn}^{k_1} R_{nm,m0}^{k-k_1}, \frac{\omega}{\omega_0} = -k + 2k_1 - 2k_3 + 2k_2 \end{array} \right. , \quad (14)$$

$$B_{at}^{\rho(1)}(\omega, k) = \sum_m \frac{E_m}{\hbar \omega_0} \sum_{k_1=0}^{k-1} \frac{C_k^{k_1} (-1)^{k_1}}{k - 2k_1 - E_0/\hbar \omega_0} \times \left( -\sum_n R_{nm,m0}^k (r_z)_{n0} \right), \frac{\omega}{\omega_0} = \begin{bmatrix} k - 2k_1 \\ -k + 2k_1 \end{bmatrix},$$

где  $(r_z)_{lp}$  – матричный элемент оператора  $r_z$ ,  $E_m$  – энергия  $m$ -го уровня

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

Множители  $B_r$  имеют вид:

$$B_r^j(\omega, k) = 2 \int_{x_0}^{\infty} e^{\frac{i\omega}{\omega_0} x} e^{-\gamma x} \left( -i \frac{\omega}{k\omega_0} \sin kx + \frac{1}{(kx)^2} \left( \frac{\sin kx}{kx} - \cos kx \right) \left( 1 + i \frac{\omega}{\omega_0} x \right) \right) dx, \quad (15)$$

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

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

между атомами, а множитель  $e^{-\gamma r}$  обусловлен потерей когерентности в полях отклика атомов, расположенных на больших расстояниях от точки наблюдения.

Выражение (13) для нелинейной восприимчивости газовой среды обладает рядом примечательных особенностей. 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  $\chi^{(3)}$ .

Рассчитанные значения нелинейных восприимчивостей  $\chi^{(3)}$  и  $\chi^{(5)}$  для аргона 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  $\chi^{(5)}(5\omega_0)/\chi^{(5)}(3\omega_0) \approx 1,4$ .

Излучение гармоник имеет несколько каналов генерации. На Рисунке 8а 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. Увеличение длины волны лазерного излучения приводит к тому, что значение интенсивности, при которой генерация 5-й гармоники за счет нелинейности 5-го порядка становится доминирующей, уменьшается. На Рисунке 8б показано сравнение эффективности генерации 5-й гармоники (амплитуды 3-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. При любой интенсивности (в пределах до 1 ТВт/см<sup>2</sup>) 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.

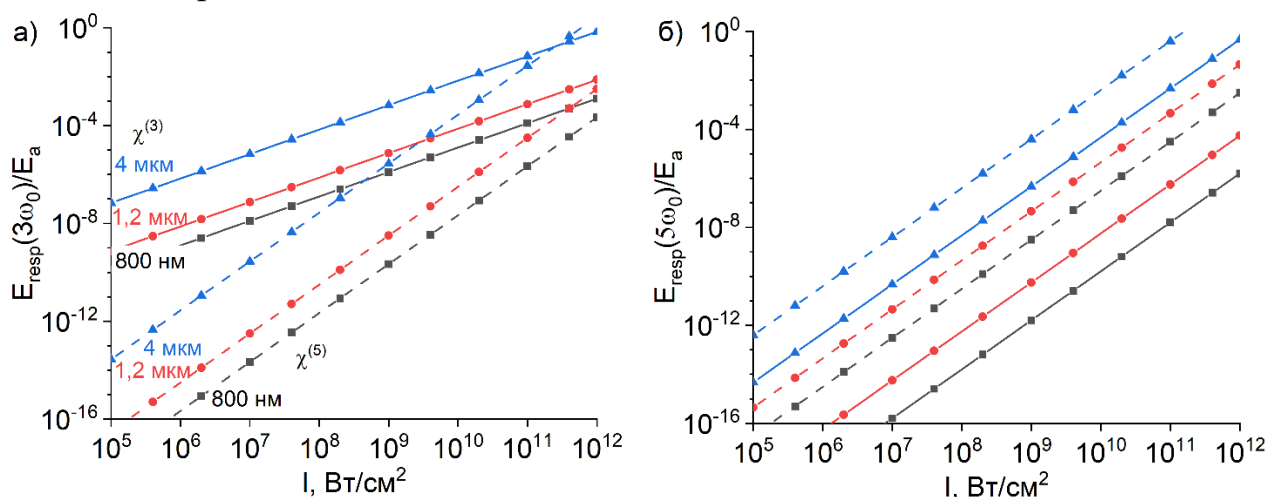


Рисунок 8. Амплитуды излучения а) 3-й гармоники и б) 5-й гармоники, нормированные на амплитуду лазерного поля, в аргоне при давлении 1 бар и температуре 300 К и различных длинах волн лазерного излучения.

В разделе 4.5 содержатся основные выводы по главе 4.

## Заключение

Основные научные результаты диссертационной работы:

1. Предложена модель динамики свободных носителей заряда EMRE. Она позволяет корректно (в согласии с экспериментальными данными) описать нарастание концентрации свободных носителей 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 заменить феноменологически определяемые параметры их аналитическими выражениями.

2. Анализ динамики свободных носителей заряда 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.

3. 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 времени релаксации импульса и энергии свободных носителей.

4. Применение скоростных моделей (EMRE) вместо более сложных и требующих больших временных ресурсов статистических моделей (Фоккера-Планка) 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.

5. Изменение условий внешней фокусировки лазерного излучения является 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. Получена аналитическая зависимость положения антистоксово крыла с учетом фазовой самомодуляции и плазменной фазовой модуляции излучения.

6. 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 зарядов, а также поглощения вследствие фотоионизации. Расстройка волновых векторов не может считаться постоянной на всем протяжении среды, причем даже в случае низкого поглощения, и может изменяться в несколько раз на длине перетяжки. 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 гармоник.

7. Применение квантово-механического непертурбативного подхода естественным образом позволяет получить аналитические выражения для тензоров нелинейной восприимчивости произвольного порядка газовой среды. 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 изменить основной канал генерации оптических гармоник даже при умеренных интенсивностях ( $10^{10} - 10^{12}$  Вт/см<sup>2</sup>) лазерного излучения.

### 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 Physics.* – 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. 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.
18. 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.

### **Список публикаций по теме диссертации**

Основные результаты работы отражены в следующих научных статьях, опубликованных в журналах Scopus, WoS, RSCI, а также в Перечне изданий МГУ:

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. SJR = 0,35 / 0,56 печ.л. / вклад соискателя 40%.

2. E. I. Mareev, K. V. Lvov, B. V. Rumiantsev, E. A. Migal, I. D. Novikov, S.Yu. Stremoukhov, F.V. Potemkin. 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. SJR = 0,35 / 0,50 печ.л. / вклад соискателя 20%.

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. SJR = 0,57 / 0,38 печ.л. / вклад соискателя 40%.

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. SJR = 0,90 / 0,75 печ.л. / вклад соискателя 10%.

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. SJR = 0,67 / 0,56 печ.л. / вклад соискателя 60%.

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. IF RSCI = 0,34 / 0,50 печ.л. / вклад соискателя 80%.

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. SJR = 0,33 / 0,50 печ.л. / вклад соискателя 80%.

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. IF RSCI = 0,48 / 0,50 печ.л. / вклад соискателя 80%.

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. SJR = 0,21 / 0,31 печ.л. / вклад соискателя 80%.

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. IF RSCI = 0,90 / 0,38 печ.л. / вклад соискателя 80%.