

О генерации аттосекундных всплесков и высоких гармоник излучения при ионизации молекул сверхкоротким лазерным импульсом

М. Ю. Емелин, М. Ю. Рябкин¹⁾, А. М. Сергеев, М. Д. Чернобровцева, Т. Пфайфер⁺, Д. Вальтер⁺, Г. Гербер⁺

Институт прикладной физики РАН, 603950 Нижний Новгород, Россия

⁺ Вюрцбургский университет, Вюрцбург, Германия

Поступила в редакцию 5 декабря 2002 г.

После переработки 14 января 2003 г.

Показано, что эффективность генерации аттосекундных импульсов и высоких гармоник излучения при ионизации возбужденных молекулярных структур мощным фемтосекундным оптическим импульсом может значительно превосходить эффективность аналогичных процессов в атомных системах. Это обусловлено присутствием делокализованной компоненты в электронном волновом пакете неравновесных молекулярных состояний, что увеличивает число частиц, эффективно участвующих в генерации тормозного излучения в процессе возвратных соударений ускоренных лазерным полем электронов с молекулярным остовом. Приведенные расчеты подтверждают, что при оптимизации нелинейного отклика молекулярных систем в процессе ионизации возможно создание компактных источников когерентного вакуумного ультрафиолетового (ВУФ) и рентгеновского излучений с яркостью на уровне, достигнутом в настоящее время только на крупномасштабных ускорительных комплексах с лазерами на свободных электронах.

PACS: 42.65.Ky

Генерация высоких гармоник оптического излучения при ионизации атомов мощными фемтосекундными лазерными импульсами представляет значительный интерес для разработки компактных источников когерентного ВУФ и рентгеновского излучений. Последние экспериментальные достижения в этой области [1–3], связанные с оптимизацией условий взаимодействия фемтосекундного излучения с разреженными инертными газами, продемонстрировали возможность создания “настошных” источников ВУФ излучения с импульсной яркостью, всего на 1–2 порядка уступающей лучшим мировым результатам на крупномасштабных ускорительных комплексах с лазерами на свободных электронах [4, 5]. Дальнейшее продвижение по пути улучшения эффективности генерации высоких гармоник могло бы быть связано с использованием вместо атомов молекул или кластеров как частиц с потенциально бóльшим нелинейным откликом для преобразования энергии оптического излучения в коротковолновый диапазон. В данной работе на основе исследования особенностей возбуждения высоких гармоник и всплесков аттосекундного излучения при ионизации простейших молекулярных структур сверхкоротким лазерным им-

пульсом, продемонстрирована возможность оптимизации нелинейного отклика в ВУФ и мягком рентгеновском диапазоне на уровне, значительно превосходящем аналогичный атомный отклик.

По сравнению с атомами молекулы и кластеры обладают разнообразием размеров, форм, ориентаций по отношению к возбуждающему лазерному полю, – то есть новых факторов, которые могут быть использованы для оптимизации нелинейного отклика. В выполненных в последние годы теоретических исследованиях сформулирован ряд возможных преимуществ молекулярных систем. Среди них — расширение области коротковолнового плато в спектрах генерации гармоник за счет соударения ускоренного лазерным полем электрона с “чужим” ионом в молекуле [6–9]; возбуждение, наряду с традиционными нечетными, также и четных гармоник со сравнимой по величине амплитудой при ионизации молекул, состоящих из разных атомов [10]; возрастание эффективности генерации гармоник при ориентации возбуждающего поля поперек оси молекулы [11]. Однако в проведенных к настоящему времени экспериментальных исследованиях с молекулярными газами [12–15] пока не удалось обнаружить режимы с заметным увеличением эффективности генерации гармоник по сравнению с инертными газами. Как показано в данной работе,

¹⁾e-mail: mike@ufp.appl.sci-nnov.ru

возможным объяснением является то, что режим оптимального нелинейного отклика соответствует существенно неравновесному расположению ядер в молекуле с расстоянием между ними, превышающим значение, определяемое минимумом кривой потенциальной энергии молекулы. Другими словами, для эффективной трансформации оптического излучения в коротковолновый диапазон молекула должна находиться в высоковозбужденном колебательном состоянии либо в распадном терме в процессе начавшейся диссоциации. Такие условия, очевидно, требуют специальной подготовки молекулярной среды в эксперименте.

При численных расчетах будем использовать широко принятую модель (см., например, [7, 11, 16]) простейшей молекулярной системы – двумерный аналог иона X_2^+ со сглаженным кулоновским потенциалом $V(x, y)$, образованным двумя одинаковыми однозарядными центрами, удерживающими единственный электрон:

$$V(x, y) = - \left[(x - R/2)^2 + y^2 + a^2 \right]^{-1} - \left[(x + R/2)^2 + y^2 + a^2 \right]^{-1}. \quad (1)$$

Здесь R – расстояние между ядрами, a – параметр сглаживания, выбираемый обычно из условия совпадения энергии ионизации модельного иона из нижнего электронного терма с ее величиной для реального молекулярного иона. Динамика процесса ионизации частицы лазерным импульсом с электрическим полем $E(t)$, линейно поляризованным вдоль оси y , в дипольном приближении описывается уравнением Шрёдингера (в атомных переменных):

$$i \frac{\partial \psi}{\partial t} = -\frac{1}{2} \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) \psi + V(x, y) \psi + y E(t) \psi. \quad (2)$$

В данной работе мы будем считать ориентацию молекулы фиксированной, перпендикулярной направлению возбуждающего лазерного поля. Это предположение вполне может быть оправдано экспериментально доказанной возможностью преориентации простейших молекул длинным лазерным импульсом [15, 17–19], предшествующим основному, и малой длительностью основного мощного лазерного импульса и вызываемого им процесса генерации гармоник при ионизации молекул. В настоящей работе мы также не учитываем коллективные эффекты, обусловленные взаимодействием излучения с большим числом частиц при распространении в ионизируемом газе, такие как фазовый и групповой рассинхронизм, синий сдвиг основной и высоких

гармоник излучения и т.д. Исследуемая в работе проблема оптимизации нелинейного отклика одной частицы может рассматриваться как первая часть задачи о возможности создания высокоэффективного источника когерентного ВУФ и рентгеновского излучения на молекулярном газе.

Стационарные состояния электрона в потенциале (1) могут быть получены, например, методом численного интегрирования в мнимом времени уравнения (2) с нулевым внешним полем. Найденная таким образом кривая потенциальной энергии молекулярного иона $U(R)$ с учетом отталкивания ядер представлена на рис.1 для параметра сглаживания $a = (0.5)^{1/2}$. Равновесному расстоянию между ядра-

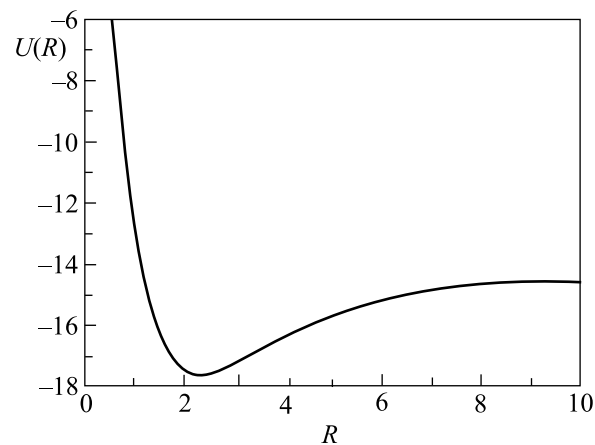


Рис.1. Кривая потенциальной энергии основного электронного состояния для двумерной модели молекулярного иона (1) с $a = (0.5)^{1/2}$. Межъядерное расстояние дано в атомных единицах, энергия – в электронвольтах

ми $R = 2.4$ соответствует значение потенциала ионизации $I_p = 28.5$ эВ; энергия диссоциации D равна 2.9 эВ. Указанные величины близки к их экспериментальным значениям для реального молекулярного иона H_2^+ ($R = 2$, $I_p = 29.9$ эВ и $D = 2.8$ эВ).

Период колебаний ядер с массой 1836 а.е. вблизи дна потенциальной ямы составляет около 15 фс. Это означает, что при изучении процессов, происходящих при ионизации легкой молекулы под действием мощного фемтосекундного оптического импульса, необходимо, вообще говоря, учитывать динамику ядер [10, 20] и, по меньшей мере, дополнить систему (1), (2) уравнением для самосогласованной эволюции межъядерного расстояния $R(t)$ [21]. Однако, как показывают наши расчеты, в случае более тяжелых ядер и/или ионизации молекулы в течение малого числа периодов оптического поля расстояние R можно полагать фиксированным и соответствующим

текущему размеру молекулы в момент начала ионизации, что и будет предполагаться далее в работе.

Механизм, лежащий в основе генерации высоких гармоник оптического излучения при ионизации атомов, хорошо известен [22,23]. Это синхронизованное лазерным полем тормозное излучение электронов, вырываемых из атомов, ускоряемых оптическим полем и соударяющихся вновь с родительскими ионами. Повторение с полупериодом ионизирующего поля идентичных всплесков тормозного излучения из данного физически малого (по сравнению с длиной излучаемой волны) объема приводит к появлению резких пиков (гармоник) в спектре нелинейного отклика атомной системы. Наоборот, если ионизация практически всех атомов и возвратные соударения электронов с родительскими ионами происходят в течение одного периода лазерного поля, атомный отклик соответствует возбуждению электромагнитного импульса аттосекундной длительности с широким сплошным спектром, тянущимся до рентгеновского диапазона частот.

Основным фактором, ограничивающим величину нелинейного отклика ионизируемой частицы в линейно поляризованном оптическом поле с нерелятивистской интенсивностью, является диффузия волнового пакета электронов при их ускорении вне атома (молекулы). Время ускорения, составляющее часть оптического периода, значительно (на порядок или более) превосходит внутриатомные времена изменения волновой функции электронов, в результате чего к моменту возвратного соударения волновой пакет существенно расплывается, и в генерацию тормозного излучения дает вклад лишь малая часть ускоренных электронов. В терминах классического описания поперечная (по отношению к ионизирующему полю) компонента импульса у большей части освобожденных из атомов электронов отклоняет траекторию их движения далеко в сторону от рассеивающего центра.

Очевидно, что расплывание электронного волнового пакета при ускорении оптическим полем будет замедлено, если в начальной ψ -функции будет увеличена составляющая, характеризующая малым значением поперечной компоненты импульса. Именно такая ситуация характерна, в отличие от атома, для молекулярных систем, само существование которых обусловлено наличием делокализованной компоненты в ψ -функции электронов, расположенной в межъядерной области и обеспечивающей взаимное притяжение ядер.

Уменьшение расплывания электронного волнового пакета при увеличении межъядерного расстояния и, как следствие, значительное возрастание нелиней-

ного отклика в коротковолновой части спектра наиболее наглядно прослеживаются в режиме генерации аттосекундных импульсов при надбарьерной ионизации молекулы в течение одного периода быстро нарастающего лазерного поля. Соответствующая картина свободна от множественной интерференции волновых пакетов, которая неизбежно возникает при ионизации, растянутой на несколько периодов поля, и затрудняет четкую идентификацию эффекта. На рис.2 представлены полученные в результате чис-

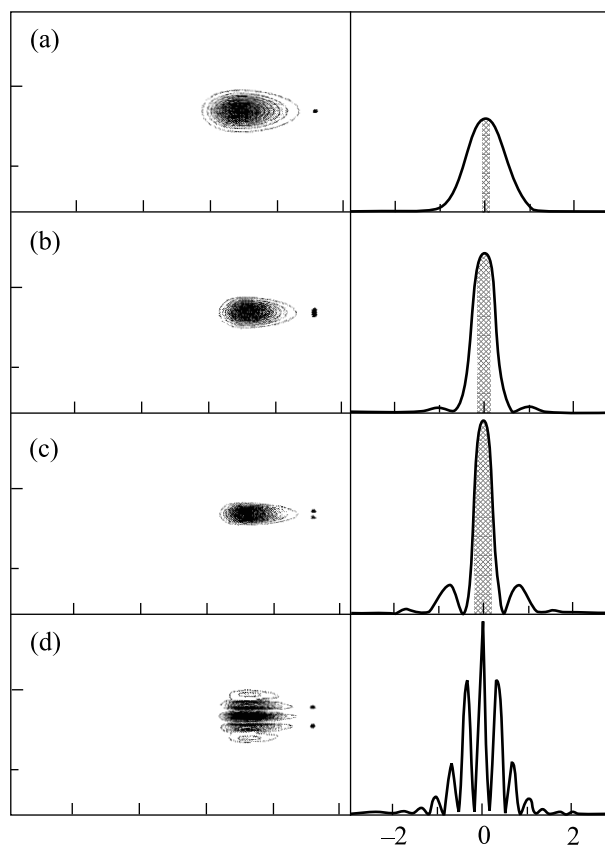


Рис.2. Слева – электронный волновой пакет перед возвратным соударением с ионным остовом (также изображен на рисунке); справа – распределение электронов по поперечному импульсу в исходном состоянии. Результаты приведены для $R = 2.4$ (a), 5 (b), 7.2 (c) и 18 (d)

ленного интегрирования уравнения Шрёдингера (2) “мгновенные снимки” электронного волнового пакета перед его возвратным соударением с молекулярным остовом с размерами $R = 2.4$ (a); 5 (b) и 7.2 (c) при наложении электрического поля $E(t) = E_0 [\exp(2\omega_0 t/\pi) - 1] \sin \omega_0 t$ ($E_0 = 0.36$, $\omega_0 = 0.114$). Здесь же показаны распределения электронов по поперечному импульсу $p(k_x) = \int_{-\infty}^{\infty} |\psi(k_x, k_y)|^2 dk_y$ в исходном состоянии. Заштрихованная область соот-

ветствует электронам, которые за время свободного движения Δt смещаются в поперечном направлении на расстояние, не превышающее R : $|k_x|\Delta t \leq R$. Временная зависимость второй производной дипольного момента молекулярного иона в направлении лазерного поля ($\langle \ddot{d}_y \rangle$), демонстрирующая возбуждение всплеска с длительностью менее 200 аттос, и соответствующие спектры отклика при различных значениях R приведены на рис.3. Заметим, что эффективность генерации коротковолновых квантов с

личием R . Очевидно, что исследуемый нами молекулярный ион превращается в пределе $R \rightarrow \infty$ в пару невзаимодействующих однозарядных ионов с суммарным электронным зарядом, равным 1. Обратное тормозное излучение в такой системе в направлении, перпендикулярном ее оси, тождественно излучению одного атома с единичным электронным зарядом. Таким образом, увеличивая межъядерное расстояние, мы имеем возможность в рамках данной модели прямо ответить на вопрос, насколько молекулярная система является более эффективным генератором коротковолновых квантов, чем аналогичная атомная система, при одинаковом числе “работающих” на тормозное излучение электронов. На рис.3 жирной линией представлен спектр аттосекундного всплеска при ионизации атома с потенциалом $V(x, y) = -(x^2 + y^2 + 0.5)^{-1/2}$. Видно, что при оптимальном межъядерном расстоянии ($R \approx 7$) молекулярная система дает выигрыш почти на порядок во всей коротковолновой части спектра. Вместе с тем, вообще говоря, отклик атомной системы не мал по сравнению с молекулярным. Более того, он превосходит, по крайней мере в рамках рассматриваемой модели, отклик молекулы, находящейся в равновесном состоянии ($R = 2.4$).

Отметим, что постепенный переход от молекулярного отклика к атомному сопровождается проявлением новой, “перекрестной” компоненты возвратного тормозного излучения в промежуточной области межъядерных расстояний. Она обусловлена электронами, вырываемыми из окрестности одного иона, ускоряемыми лазерным полем и соударяющимися с другим ионом. Присутствие таких электронов и их преобладание над делокализованными электронами при $R \geq 20$ отражается в интерференционной модуляции структуры волнового пакета при его возвращении к молекулярному остову (см. рис.2d). При еще большем раздвижении ядер части волнового пакета, соответствующие исходно локализованным вблизи притягивающих центров электронам, при расплывании в процессе ускорения не успевают существенно перекрыться, в результате чего отклик системы превращается в чисто атомный.

Аналогичный вывод о существовании оптимального межъядерного расстояния, намного превышающего равновесное, для трансформации энергии лазерного импульса в ВУФ и рентгеновский диапазон, подтверждается для процесса генерации высоких гармоник излучения при ионизации молекул в течение нескольких периодов оптического поля. В качестве примера приведем результаты исследования данного процесса для той же модели моле-

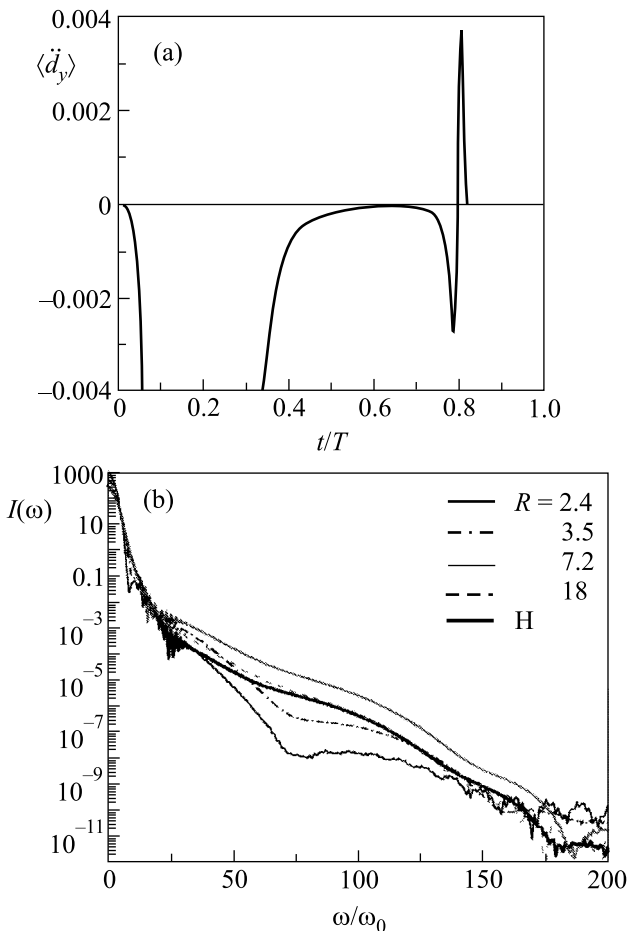


Рис.3. Временная зависимость поляризационного отклика молекулярного иона в направлении лазерного поля при $R = 7.2$ (a) и спектры молекулярного отклика при $R = 2.4, 3.5, 7.2$ и 18 (b). На рис.(b) приведен также спектр H отклика для двумерной модели атома водорода с $V(x, y) = -(x^2 + y^2 + 0.5)^{-1/2}$

частотами $\omega > 30\omega_0$ для межъядерного расстояния $R = 7.2$ по меньшей мере на порядок превышает соответствующее значение для равновесной конфигурации молекулы с $R = 2.4$.

Принципиальным вопросом для сравнения откликов атомной и молекулярной систем является изменение эффективности преобразования частот с уве-

кулярного иона, помещенного в поле вида $E(t) = E_0 \sin^2(\omega_0 t/24) \sin \omega_0 t$ ($E_0 = 0.125$, $\omega_0 = 0.057$), что соответствует лазерному импульсу с длительностью 16 фс, пиковой интенсивностью $5 \cdot 10^{14}$ Вт/см² и длиной волны 0.8 мкм. На рис.4 показаны спектры генерации высоких гармоник оптической частоты

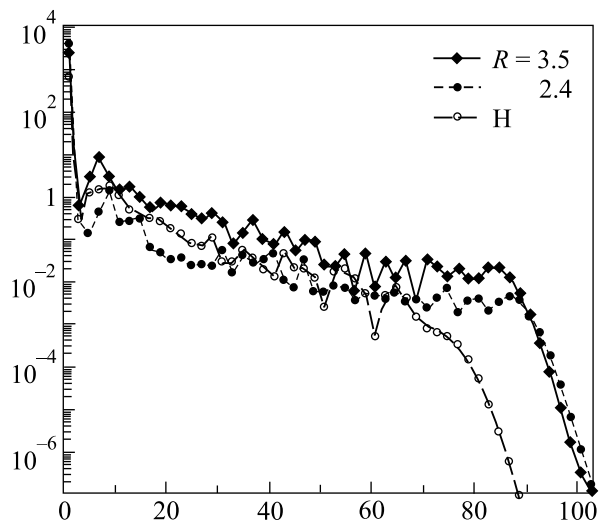


Рис.4. Спектры генерации гармоник молекулярным ионом с $R = 2.4$ и 3.5 и атомом H (штриховая кривая) при воздействии лазерным импульсом с $E_0 = 0.125$, $\omega_0 = 0.057$

ты с нечетными номерами после сглаживания с окном усреднения, равным частоте возбуждающего поля. Максимум интегральной эффективности генерации для участка спектра с $5\omega_0 < \omega < 85\omega_0$ соответствует здесь расстоянию $R = 3.5$ и также существенно (в 5–7 раз) превышает атомный отклик в области плато.

Обнаруженный на примере ионизации из нижнего электронного состояния простейшей молекулярной системы, эффект оптимизации нелинейного отклика может проявляться и для более сложных начальных условий и более сложных квантовых объектов. По-видимому, основным “признаком” при подборе молекулярных структур и их состояний должно быть наличие максимально большого числа делокализованных электронов с малым волновым импульсом в поперечном к ионизирующему полю направлении. В этом отношении, например, значительный интерес представляют возбужденные электронные состояния молекул, в том числе простейших, в которых электронное облако имеет больший пространственный размер по сравнению с нижним состоянием и поэтому меньше подвержено расплыванию при ускорении лазерным полем. Проведенные нами предварительные рас-

четы в той же модели молекулярного иона H_2^+ , находящегося исходно в одном из низших возбужденных электронных состояний, показывают, что при этом удастся по крайней мере еще в несколько раз повысить максимальную эффективность генерации аттосекундных всплесков по сравнению с ионизацией из основного электронного состояния.

Очевидно, для использования режима оптимального взаимодействия лазерного излучения с молекулами требуется специальная подготовка рабочего газа в эксперименте. Одна из возможностей заключается в предварительной ориентации молекул, их резонансном возбуждении или ионизации под действием сверхкороткого лазерного импульса с небольшой интенсивностью и последующем воздействии на газ мощным импульсом излучения с временной задержкой по отношению к ионизирующему импульсу, определяемой моментом оптимального “разбухания” молекулы в процессе ее колебаний или начавшейся диссоциации.

В заключение приведем оценку возможностей, которые открываются при использовании в эксперименте оптимального режима генерации высоких гармоник при ионизации молекул. Достигнутый к настоящему времени коэффициент конверсии энергии мощного фемтосекундного оптического импульса в высокую гармонику излучения в ВУФ диапазоне при выполнении условия фазового синхронизма в инертном газе приближается к 10^{-4} [2]. При увеличении этого коэффициента на порядок за счет перехода к молекулярным газам и при использовании компактного Ti:Sa-лазера с длительностью импульсов 20 фс, частотой повторения 1 кГц и энергией 5 мДж средняя мощность когерентного ВУФ излучения составит 5 мВт. Этот уровень соответствует рекордным значениям, достигнутым в настоящее время только на крупномасштабных ускорительных комплексах с лазерами на свободных электронах в области длин волн $\lambda \sim 100$ нм.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований, грант # 01-02-18006 и Президиума РАН (программы “Фемтосекундная оптика” и “Квантовая макрофизика”).

1. R. A. Bartels, A. Paul, H. Green et al., Science **297**, 376 (2002).
2. J.-F. Hergott, M. Kovacev, H. Merdji et al., Phys. Rev. **A66**, 021801 (2002).
3. E. Takahashi, Y. Nabekawa, T. Otsuka et al., Phys. Rev. **A66**, 021802 (2002).
4. J. Andruskow, B. Aune, V. Ayvazyan et al., Phys. Rev. Lett. **85**, 3825 (2000).

5. V. Ayzvazyan, N. Baboi, I. Bohnet et al., *Phys. Rev. Lett.* **88**, 104802 (2002).
6. P. Moreno, L. Plaja, and L. Roso, *Phys. Rev.* **A55**, R1593 (1997).
7. R. Kopold, W. Becker, and M. Kleber, *Phys. Rev.* **A 58**, 4022 (1998).
8. A. D. Bandrauk and H. Yu, *Phys. Rev.* **A59**, 539 (1999).
9. R. Numico, D. Giulietti, A. Giulietti et al., *J. Phys.* **B: At. Mol. Opt. Phys.** **33**, 2605 (2000).
10. T. Kreibich, M. Lein, V. Engel, and E. K. U. Gross, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 103901 (2001).
11. D. G. Lappas and J. P. Marangos, *J. Phys.* **B: At. Mol. Opt. Phys.** **33**, 4679 (2000).
12. Y. Liang, S. Augst, S. L. Chin et al., *J. Phys.* **B: At. Mol. Opt. Phys.** **27**, 5119 (1994).
13. C. Lynga, A. L'Huillier, and C.-G. Wahlstrom, *J. Phys.* **B: At. Mol. Opt. Phys.** **29**, 3293 (1996).
14. N. Hay, R. de Nalda, T. Halfmann et al., *Phys. Rev.* **A62**, 041803 (2000).
15. R. Velotta, N. Hay, M. B. Mason et al., *Phys. Rev. Lett.* **87**, 183901 (2001).
16. M. Lein, N. Hay, R. Velotta et al., *Phys. Rev. Lett.* **88**, 183903 (2002).
17. B. Friedrich and D. Herschbach, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 4623 (1995).
18. J. J. Larsen, H. Sakai, C. P. Safvan et al., *J. Chem. Phys.* **111**, 774 (1999).
19. J. J. Larsen, I. Wendt-Larsen, and H. Stapelfeldt, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 1123 (1999).
20. W. Qu, Z. Chen, Z. Xu, and C.H. Keitel, *Phys. Rev.* **A65**, 013402 (2002).
21. B. Rotenberg, R. Taieb, V. Veniard, and A. Maquet, *J. Phys.* **B: At. Mol. Opt. Phys.** **35**, L397 (2002).
22. P. B. Corkum, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1994 (1993).
23. K. C. Kulander, K. J. Schafer, and J. L. Krause, in *Super-Intense Laser-Atom Physics*, NATO AST Series, Series B: Physics, **316**, Eds. B. Piraux et al., Plenum Press, New York, 1993, p. 95.