

# Генерация эллиптически поляризованных гармоник газовыми средами в двухчастотных лазерных полях в условиях квази-фазового согласования

С. Ю. Стремоухов<sup>1)</sup>

Физический факультет, МГУ имени М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”, 123182 Москва, Россия

Поступила в редакцию 15 ноября 2024 г.

После переработки 18 ноября 2024 г.

Принята к публикации 20 ноября 2024 г.

Исследовано влияние параметров среды, представляющей собой набор газовых струй, на генерацию эллиптически поляризованных гармоник при нелинейно-оптическом взаимодействии с двухчастотными фемтосекундными лазерными полями. Расчеты проводились для лазерного поля, образованного линейно поляризованными первой и второй гармониками Cr:F лазера для случая, когда угол между направлениями поляризации компонент поля составляет  $\pi/4$ . С использованием непертурбативного теоретического подхода в таких полях продемонстрирована генерация эллиптически поляризованных гармоник одиночными атомами Ar. С помощью интерференционной модели рассчитаны эффективность и поляризационные свойства генерируемых гармоник в условиях как фазового, так и квази-фазового согласования. Продемонстрирована возможность квази-фазового усиления эллиптически поляризованных гармоник.

DOI: 10.31857/S0370274X25010032, EDN: RTHNLE

**Введение.** Генерация гармоник высокого порядка (ГГВП), несмотря на более чем 30-летнюю историю [1, 2], продолжает привлекать к себе внимание исследователей [3]. Такое повышенное внимание в данному нелинейно-оптическому процессу, возникающему в интенсивных лазерных полях, связано, с одной стороны, с потенциальным спектром применения генерируемого когерентного излучения, а с другой стороны – с высокой чувствительностью данного явления к параметрам взаимодействия, – как параметрам среды, так и к параметрам лазерного поля [3].

Среди основных направлений исследований в данной области главными можно выделить поиск путей повышения эффективности генерации гармоник, а также управления их поляризационными свойствами. В рамках первого направления активно исследуются эффекты как фазового, так и квази-фазового согласования (КФС), возникающие в среде [4, 5], анализируются особенности распространения лазерного излучения в среде и их роль в фазовом согласовании при генерации гармоник [6]. Кроме того, изучается ГГВП в лазерных полях среднего инфракрасного диапазона, предлагаются методы компенсации существенного уменьшения эффективности ГГВП [7–9].

Поиск методов генерации эллиптически поляризованных гармоник высокого порядка связан, в первую очередь, с вариацией параметров лазерного поля. Так, высокая эллиптичность у генерируемого излучения наблюдалась при взаимодействии газовых сред с двухчастотными линейно [10–12], эллиптически [13] и циркулярно поляризованными [14], а также скрещенными полями [15]. Кроме того, развиты подходы, связанные с резонансным усилением эллиптически поляризованных гармоник [16, 17], с использованием ориентированных молекул [18, 19], преобразованием линейно поляризованных гармоник в эллиптически поляризованные с помощью фазосдвигающей оптики [20, 21]. Перспективными также являются методы увеличения амплитуды и величины эллиптичности гармоник, распространяющихся в специально подготовленной плазме совместно с интенсивным лазерным полем среднего инфракрасного диапазона [22, 23].

Вместе с тем исследование влияния эффектов КФС на генерацию эллиптически поляризованного когерентного излучения пока слабо изучено. Так, было предложено использовать круговое двулучепреломление для генерации спектрально селективных, согласованных по фазе и циркулярно поляризованных гармоник [24, 25]. Кроме того, предложены методы по квази-фазовому подавлению групп гармоник,

<sup>1)</sup>e-mail: sustrem@gmail.com

обладающих одинаковой спиральностью, в составных средах [26]. Вместе с тем, вопрос использования газовых (плазменных) сред, разделенных вакуумными промежутками, взаимодействующих с двухчастотными лазерными полями, в которых за счет эффектов КФС удается увеличить эффективность генерации групп гармоник [5], в качестве источника эллиптически поляризованных гармоник пока не изучался.

В настоящей работе представлены первые результаты исследования в данном направлении, в частности обсуждается влияние параметров среды (давления и ее геометрических размеров) на генерацию эллиптически поляризованных гармоник при ее взаимодействии с двухчастотными лазерными полями, образованными первой и второй гармониками лазерного источника, в условиях КФС.

**Отклик одиночных атомов.** Для исследования нелинейно-оптического отклика одиночных атомов применялся непертурбативный теоретический подход [11, 27, 28]. Он заключается в использовании базиса волновых функций – точных решений краевой задачи “об атоме в поле” в разложении волновой функции нестационарного уравнения Шредингера, что приводит к получению системы уравнений для амплитуд населенностей уровней дискретного и непрерывного спектра атома  $a_{nlm}(t)$  (где  $n$  – главное квантовое число,  $l$  – орбитальное квантовое число,  $m$  – проекция орбитального квантового числа). Рассчитанные в рамках модельной структуры уровней атома аргона [29] динамики амплитуд населенностей уровней атома применяются для расчета тока атомного отклика, спектр которого совпадает со спектром генерируемого излучения в дальней зоне [30]:

$$\begin{aligned} \mathbf{J}(t) = & i \sum_{n_1, l_1, m_1, n_2, l_2, m_2} a_{n_1 l_1 m_1}^*(t) a_{n_2 l_2 m_2}(t) \times \\ & \times \sum_{n_3 l_3 m_3} \sum_{n_4 l_4 m_4} \frac{(E_{n_3 l_3} - E_{n_4 l_4})}{\hbar} \langle n_1 l_1 m_1 | V^{-1} | n_3 l_3 m_3 \rangle \times \\ & \times \langle n_3 l_3 m_3 | \mathbf{d} | n_4 l_4 m_4 \rangle \langle n_4 l_4 m_4 | V | n_2 l_2 m_2 \rangle, \end{aligned}$$

где  $E_{n_i l_i}$  – значение энергии уровня атома,  $\mathbf{d}$  – оператор дипольного момента,  $\langle n_3 l_3 m_3 | V | n_2 l_2 m_2 \rangle$  – матричный элемент оператора  $\hat{V} = \exp(-i \frac{q}{\hbar c} \mathbf{A}(t) \mathbf{r})$ , связывающего волновые функции краевых задач свободного атома и “об атоме в поле”,  $\mathbf{A}(t)$  – векторный потенциал лазерного поля  $\mathbf{E}_0 e^{i\omega_0 t}$ ,  $\mathbf{r}$  – радиус-вектор,  $q$ ,  $\hbar$ ,  $c$  – заряд, приведенная постоянная Планка и скорость света соответственно. Главное преимущество непертурбативного подхода с точки зрения описания нелинейно-оптического отклика атома заклю-

чатся в том, что оператор  $\hat{V}$  учитывает многоквантовость процесса произвольного порядка, так как представляет собой экспоненту, содержащую поле, а значит – учитывая степенное представление экспоненты – поле в произвольной степени, т.е.  $E_0^k e^{ik\omega_0 t}$ , где  $k$  пробегает значения от 0 до  $\infty$ , а  $\omega_0$  – несущая частота электромагнитного поля. Разработанный подход позволяет описывать взаимодействие одиночных атомов с лазерными полями дорелятивистских напряженностей, при этом не накладывается никаких ограничений на поляризационный и компонентный состав лазерного поля. Исследование отклика атома на воздействие многочастотных многокомпонентных лазерных полей открывает ряд дополнительных управляющих параметров, от которых зависят характеристики генерируемого излучения. В частотности, для двухчастотных лазерных полей, образованных линейно поляризованными гармониками излучения лазерной системы, таковыми параметрами являются временная задержка между импульсами, угол между поляризациями компонент поля [27] и соотношение частот компонент поля.

Расчет поляризационных характеристик генерируемого излучения проводился в соответствии с методом, описанным в [31]. Анализ отклика одиночного атома позволяет для каждой гармоники получить распределение ее комплексной амплитуды в пространстве, которое в общем случае будет иметь три ненулевые проекции на ортогональные оси. Вместе с тем в настоящих исследованиях предполагается, что направление поляризации компоненты двухчастотного поля на основной частоте и направление углового момента атома совпадают, а лазерное поле представляет собой плоскую волну. Это означает, что поляризация генерируемого излучения распределена в плоскости  $xz$  (где направление  $z$  декартовой системы координат определяется угловым моментом атома, а  $x$  – находится в плоскости поляризации лазерного излучения). Следовательно, две ненулевые проекции поля могут быть представлены в виде:  $E_x = E_{x_0} e^{i\delta_x}$ ,  $E_z = E_{z_0} e^{i\delta_z}$ . Тогда эллиптичность излучения может быть вычислена с использованием следующей формулы:

$$e = \text{Tan} \left[ \frac{1}{2} \text{Arcsin} \left( \frac{2 \frac{E_{x_0}}{E_{z_0}} \sin(\delta_x - \delta_z)}{1 + \left| \frac{E_{x_0}}{E_{z_0}} \right|^2} \right) \right].$$

Расчеты поляризационных характеристик генерируемого излучения, выполненные с помощью указанной формулы и с помощью параметров Стокса, демонстрируют совпадающие результаты [32].

С использованием непertурбативной теории произведено исследование параметров гармоник, генерируемых одиночными атомами аргона в двухчастотных лазерных полях, образованных линейно поляризованными первой и второй гармониками Cr:Fosterite лазера (длина волны лазерного источника 1.24 мкм, длительность импульсов 120 фс, интенсивности  $\sim 10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup> для первой гармоники и  $\sim 10^{12}$  Вт/см<sup>2</sup> для второй гармоники), угол между направлениями поляризации компонент двухчастотного лазерного поля был выбран равным  $\pi/4$ . Ранее нами было показано, что при такой конфигурации двухчастотного поля генерируемые гармоники являются эллиптически поляризованными [12]. В численных расчетах изменялась временная задержка между импульсами. Расчеты откликов одиночных атомов демонстрируют, что при таком взаимодействии происходит генерация эллиптически (до величины эллиптичности 0.6) поляризованных гармоник (в области гармоник низкого порядка) при определенных величинах временной задержки между импульсами (см. рис. 1). Видно, что указанные зависимости имеют периодическую структуру (с величиной периода  $\sim 1$  фс, что соответствует половине периода осциллирующей излучения на частоте 2-й гармоники; такая величина временной задержки достигается при распространении двухчастотного поля в аргоновой кювете на расстояние 10.33 см за счет разницы в показателях преломления для излучения на основной и удвоенной частотах [33]). Полученные зависимости амплитуд и фаз проекций электрической компоненты излучения на заданных гармониках от временной задержки между импульсами, и, соответственно, от расстояния, прошедшего лазерным полем в среде, были использованы для расчета характеристик излучения для заданных гармоник протяженной средой при вариации ее параметров [34]. Газовая среда моделировалась цепочкой атомов, расположенных вдоль оси распространения лазерных импульсов [35].

**Эффекты фазового и квази-фазового согласования.** С использованием значений амплитуд и фаз проекций излучений на частотах, соответствующих 5–7 гармоникам, были проведены расчеты параметров генерируемого излучения протяженных газовых сред (длиной  $l = 0.1$  и  $l = 0.5$  см) и сред, представляющих собой набор газовых струй (5 струй шириной  $d = 0.05$  см, 25 струй шириной  $d = 0.01$  см, 50 струй шириной  $d = 0.005$  см), разделенных вакуумными промежутками шириной  $d$ . На рисунке 2а, б, с представлены соответственно зависимости интенсивности генерации 5-й, 6-й и 7-й гармоник от величины давления в среде. Видно, что в этих зависимостях

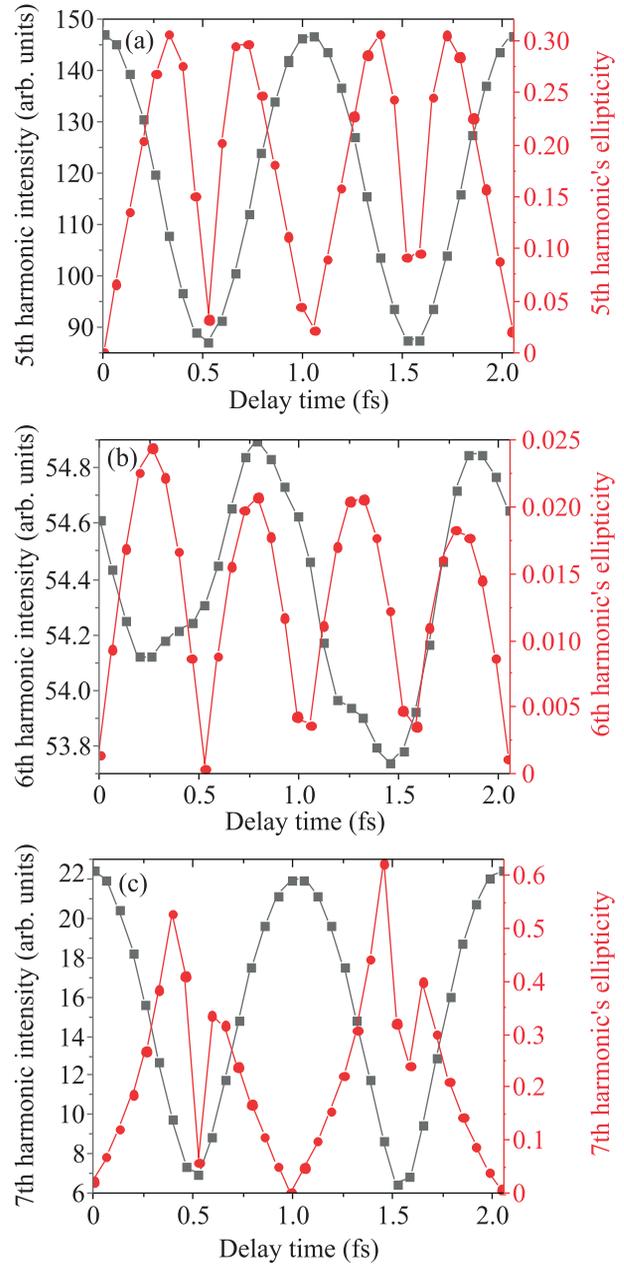


Рис. 1. (Цветной онлайн) Зависимость интенсивности (черные кривые с квадратами) и величины эллиптичности (красные кривые с кружками) откликов одиночных атомов аргона, взаимодействующего с двухчастотным лазерным полем, образованным первой и второй гармониками Cr:F лазера (длина волны лазерного источника 1.24 мкм, длительность импульсов 120 фс, интенсивности  $\sim 10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup> для первой гармоники и  $\sim 10^{12}$  Вт/см<sup>2</sup> для второй гармоники) от величины временной задержки между импульсами, рассчитанная для 5-й (а), 6-й (б) и 7-й (с) гармоники

можно выделить вклад фазового синхронизма (относительно широкий пик в области десятков-сотен

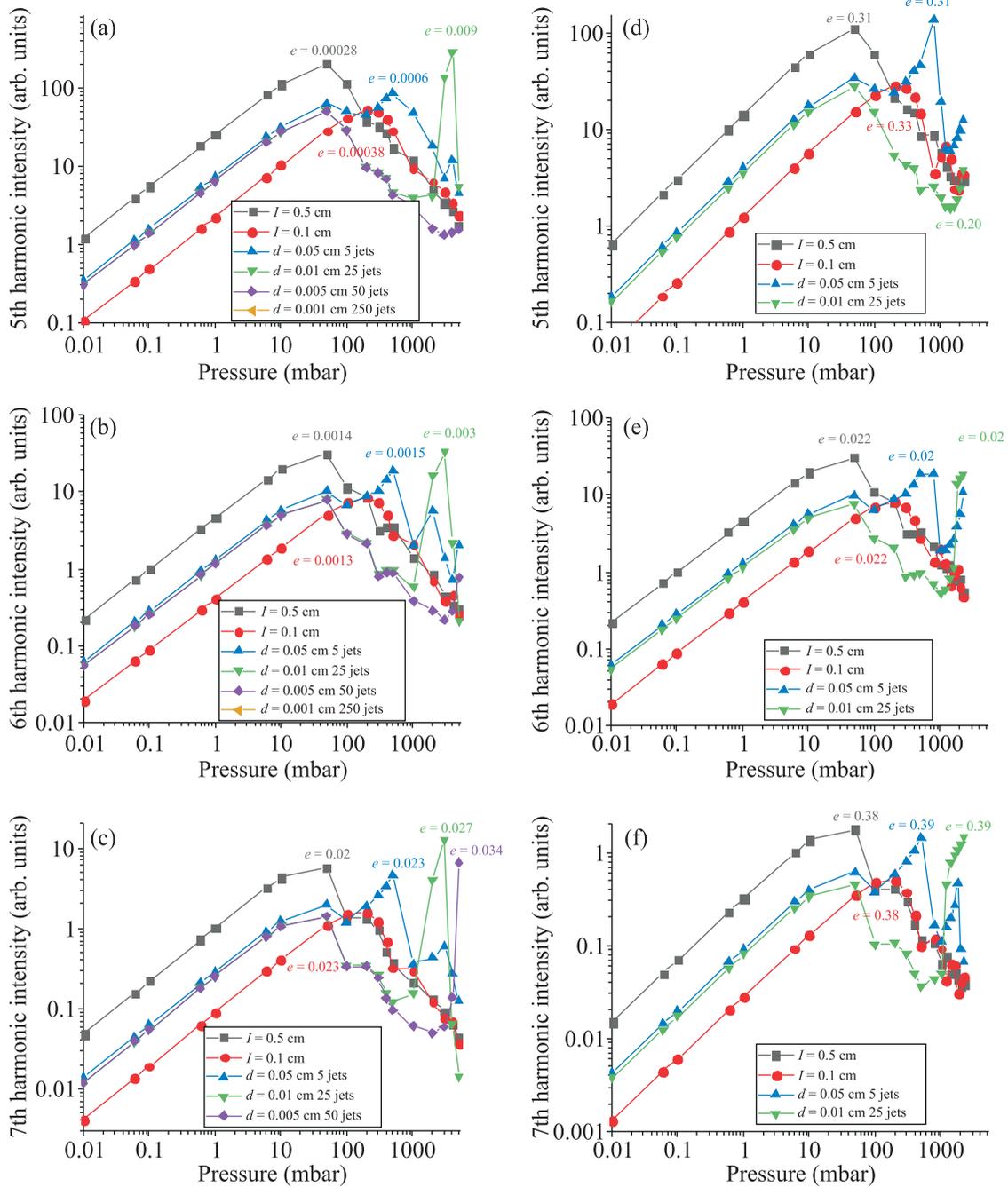


Рис. 2. (Цветной онлайн) Зависимости эффективности генерации 5-й (а), (d), 6-й (b), (e) и 7-й (c), (f) гармоник от величины давления, рассчитанные для нулевого значения начальной временной задержки между импульсами (а), (b), (c) и для ненулевого значения (0.33 фс) начальной величины временной задержки между импульсами (d), (e), (f). Остальные параметры поля, для которых проводился расчет, соответствуют параметрам, представленным в подписи к рис. 1. Геометрические параметры газовых сред представлены на графиках

мбар), а также для сред, представляющих собой набор струй, для некоторых значений ширины газовых струй – вклад КФС (узкие пики в области единиц бар). Положение пика КФС зависит от номера гармоники и размеров газовых струй [36], поэтому в пред-

ставленной области вариации давления среды не для всех ширины газовых струй присутствует пик КФС.

На рисунке 2 также отмечены значения эллиптичности генерируемого излучения  $e$  для давлений, соответствующих максимумам интенсивности соот-

ветствующих гармоник. Видно, что для 5-й и 6-й гармоники эллиптичность генерируемого излучения не превышает 1%, а для 7-й гармоники  $\sim 2\%$ . Таким образом, генерируется излучение, поляризация которого близка к линейной, несмотря на то, что при данных параметрах лазерного поля отклики одиночных атомов содержат эллиптически поляризованные гармоники (для 5-й и 7-й гармоник, см. рис. 1). Такое отличие поляризации откликов одиночных атомов от отклика протяженной среды связано с тем, что начальная величина временной задержки между импульсами не является оптимальной. Действительно, суммарная ширина среды не превышает 0.5 см, в то время, как период осцилляций интенсивности и эллиптичности гармоник составляет величину 10.33 см, таким образом, временная задержка между импульсами, возникающая из-за дисперсии при распространении, такова, что все атомы генерируют низкоэллиптическое излучение (см. рис. 1).

Для того, чтобы увеличить вклад эллиптического излучения отдельных атомов, были проведены расчеты откликов протяженной среды с двухчастотным лазерным полем, у которого введена ненулевая (0.33 фс) начальная временная задержка между импульсами. Результаты расчетов представлены на рис. 2d, e, f. Видно, что для нечетных гармоник рассчитанная эллиптичность излучения существенно увеличилась, вместе с тем, для 6-й гармоники величина эллиптичности практически не изменилась. Это связано с низкой эллиптичностью 6-й гармоники, генерируемой отдельными атомами. Важно отметить, что в условиях КФС подбором параметров поля удается получить эллиптически поляризованное излучение. Вместе с тем величина эллиптичности слабо зависит от геометрических размеров среды (от значений величин  $l$  и  $d$ ).

Также проведены исследования эллиптичности генерируемого излучения при увеличении количества струй, формирующих среду (при сохранении величины их ширины  $d$ ). Расчет проводился для струй шириной  $d = 0.05$  см при вариации их количества от 5 до 55 при давлениях, соответствующих максимуму КФС. В результате было показано (см. рис. 3), что увеличение эффективности квази-фазового усиления (за счет возрастания количества генерирующих излучение атомов) не приводит к изменению величины эллиптичности.

**Закключение.** Таким образом, проведено исследование влияния КФС на генерацию эллиптически поляризованных гармоник в средах, представляющих собой разделенные вакуумными промежутками аргоновые газовые струи, взаимодействующих с

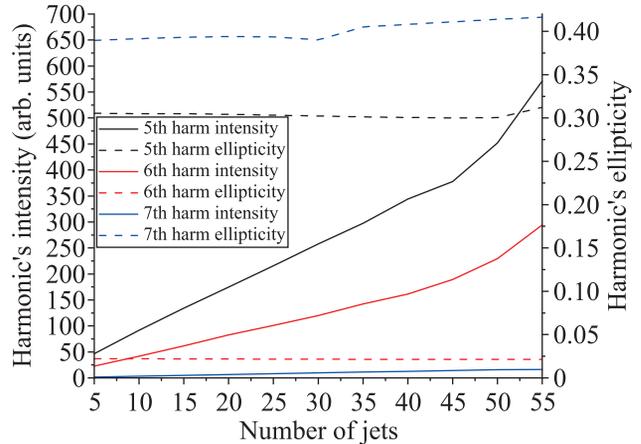


Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимости эффективности генерации гармоник (сплошные кривые) и их величин эллиптичности (штриховые кривые) от количества газовых струй в условиях КФС. Остальные параметры поля, для которых проводился расчет, соответствуют параметрам, представленным в подписи к рис. 1. Расчет проводился для струй шириной  $d = 0.05$  см и ненулевого значения (0.33 фс) начальной величины временной задержки между импульсами

двухчастотными лазерными полями. Продемонстрировано, что в условиях КФС генерируются эллиптически поляризованные гармоники, в случае ненулевой эллиптичности излучения, генерируемого одиночными атомами. Исследовано влияние параметров среды (давления, длины, ширины и количества газовых струй) на характеристики генерируемого излучения. Показано, что увеличение количества газовых струй, вариация их геометрических размеров не приводит к существенному изменению эллиптичности генерируемого излучения. Вместе с тем, подстройка начальной временной задержки между импульсами способна существенно влиять на величину эллиптичности генерируемого излучения. Проведенные исследования открывают дополнительные возможности использования эффектов КФС для генерации интенсивных эллиптически поляризованных гармоник.

**Финансирование работы.** Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда # 24-22-00188, <https://rscf.ru/project/24-22-00188/>.

**Конфликт интересов.** Автор данной работы заявляет, что у него нет конфликта интересов.

1. М. Ю. Кучиев, Письма в ЖЭТФ **45**(7), 319 (1987).
2. P. B. Corkum, Phys. Rev. Lett. **71**, 1994 (1993).
3. R. Weissenbilder, S. Carlström, L. Rego, C. Guo, C. M. Heyl, P. Smorenburg, E. Constant, C. L. Arnold,

- and A. L'Huillier, *Nat. Rev. Phys.* **4**, 713 (2022).
4. L. Hareli, G. Shoulga, and A. Bahabad, *J. Phys. B* **53**, 233001 (2020).
  5. R. Ganeev, *App. Phys. B* **129**, 17 (2023).
  6. К. В. Львов, С. Ю. Стрёмухов, *Квантовая электроника* **54**(2), 113 (2024).
  7. E. A. Migal, S. Yu. Stremoukhov, and F. V. Potemkin, *Phys. Rev. A* **101**, 021401 (2020).
  8. S. Yu. Stremoukhov, *J. Opt. Soc. Am. B* **39**(4), 1203 (2022).
  9. A. S. Emelina, M. Yu. Emelin, and M. Yu. Ryabikin, *J. Opt. Soc. Am. B* **36**, 3236 (2019).
  10. G. Lambert, B. Vodungbo, J. Gautier, B. Mahieu, V. Malka, S. Sebban, P. Zeitoun, J. Luning, J. Perron, A. Andreev, S. Stremoukhov, F. Ardana-Lamas, A. Dax, C. P. Hauri, A. Sardinha, and M. Fajardo, *Nat. Commun.* **6**, 6167 (2015).
  11. S. Stremoukhov, A. Andreev, B. Vodungbo, P. Salieres, B. Mahieu, and G. Lambert, *Phys. Rev. A* **94**, 013855 (2016).
  12. S. Yu. Stremoukhov and A. V. Andreev, *Laser Phys. Lett.* **16**, 125402 (2019).
  13. A. Fleischer, O. Kfir, T. Diskin, P. Sidorenko, and O. Cohen, *Nat. Phot.* **8**, 543 (2014).
  14. O. Kfir, P. Grychtol, E. Turgut, R. Knut, D. Zusin, D. Popmintchev, T. Popmintchev, H. Nembach, J. M. Shaw, A. Fleischer, H. Kapteyn, M. Murnane, and O. Cohen, *Nature Photon. Nat. Phot.* **9**, 99 (2015).
  15. B. Mahieu, S. Stremoukhov, D. Gauthier, C. Spezzani, C. Alves, B. Vodungbo, P. Zeitoun, V. Malka, G. De Ninno, and G. Lambert, *Phys. Rev. A* **97**, 043857 (2018).
  16. A. Ferré, C. Handschin, M. Dumergue, F. Burgy, A. Comby, D. Descamps, B. Fabre, G. A. Garcia, R. Geneaux, L. Merceron, E. Mével, L. Nahon, S. Petit, B. Pons, D. Staedter, S. Weber, T. Ruchon, V. Blanchet, and Y. Mairesse, *Nat. Phot.* **9**, 93 (2015).
  17. M. A. Khokhlova, M. Yu. Emelin, M. Yu. Ryabikin, and V. V. Strelkov, *Phys. Rev. A* **103**, 043114 (2021).
  18. X. Zhou, R. Lock, N. Wagner, W. Li, H. C. Kapteyn, and M. M. Murnane, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 073902 (2009).
  19. E. Skantzakis, S. Chatziathanasiou, P. A. Carpeggiani, G. Sansone, A. Nayak, D. Gray, P. Tzallas, D. Charalambidis, E. Hertz, and O. Faucher, *Sci. Rep.* **6**, 39295 (2016).
  20. B. Vodungbo, A. B. Sardinha, J. Gautier, G. Lambert, C. Valentim, M. Lozano, G. Iaquaniello, F. Delmotte, S. Sebban, J. Luning, and P. Zeitoun, *Opt. Exp.* **19**, 4346 (2011).
  21. J. Schmidt, A. Guggenmos, M. Hofstetter, S. H. Chew, and U. Kleineberg, *Opt. Express* **23**, 33564 (2015).
  22. I. R. Khairulin, V. A. Antonov, M. Y. Ryabikin, M. A. Berrill, V. N. Shlyaptsev, J. J. Rocca, and O. Kocharovskaya, *Sci. Rep.* **12**, 6204 (2022).
  23. V. A. Antonov, I. R. Khairulin, M. Yu. Ryabikin, M. A. Berrill, V. N. Shlyaptsev, J. J. Rocca, and O. Kocharovskaya, *Phys. Rev. A* **107**, 063511 (2023).
  24. L. Z. Liu, K. O'Keeffe, and S. M. Hooker, *Opt. Lett.* **37**, 2415 (2012).
  25. L. Hareli, G. Lerner, O. Cohen, and A. Bahabad, *Appl. Phys. Lett.* **118**, 221106 (2021).
  26. G. Lerner, T. Diskin, O. Neufeld, O. Kfir, and O. Cohen, *Opt. Lett.* **42**, 1349 (2017).
  27. A. V. Andreev, S. Yu. Stremoukhov, and O. A. Shoutova, *Eur. Phys. J. D* **66**, 16 (2012).
  28. С. Ю. Стрёмухов, *Известия РАН. Серия Физическая* **88**(1), 48 (2024).
  29. A. V. Andreev, S. Y. Stremoukhov, and O. A. Shoutova, *J. Opt. Soc. Am. B* **30**(7), 1794 (2013).
  30. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Теоретическая физика. Том 3. Квантовая механика (нерелятивистская теория)*, Физматлит, М. (2020).
  31. Р. Азам, Н. Башара, *Эллипсометрия и поляризованный свет*, Мир, М. (1981).
  32. G. G. Stokes, *Trans. Cambridge Philos. Soc.* **9**, 399 (1852).
  33. S. Yu. Stremoukhov and A. V. Andreev, *Laser Phys. Lett.* **12**, 015402 (2015).
  34. S. Y. Stremoukhov and A. V. Andreev, *EPJ Web of Conferences* **195**, 03009 (2018).
  35. S. Yu. Stremoukhov and A. V. Andreev, *Laser Phys.* **28**, 035403 (2018).
  36. S. Stremoukhov, *Atoms* **11**, 103 (2023).