

# Усиление угловой дисперсии лазерных гармоник высокого порядка при взаимодействии с плотными плазменными кластерами

Л.А. Литвинов<sup>1</sup>, А.А. Андреев<sup>1, 2</sup>

<sup>1</sup>Санкт-Петербургский государственный университет, Санкт-Петербург

<sup>2</sup>Физико-технический институт имени А.Ф.Иоффе, Санкт-Петербург

## Аннотация

Периодические поверхностные решетки и фотонные кристаллы являются отличными инструментами для дифракции и направления света. Однако этот метод менее эффективен в случае экстремального ультрафиолетового света из-за высокого поглощения любого материала в этом диапазоне частот. В работе исследуется возможность усиления угловой дисперсии излучения XUV-диапазона за счет рассеяния на подходящих сферических кластерах. В рамках работы была разработана аналитическая модель с использованием диэлектрической функции Друде плазмы и теории рассеяния Ми. Модель построена в квазистатическом приближении, так как время ионизации меньше длительности импульса, что значительно меньше времени разлета плазмы. В рамках модели мы используем предельные формы функций Бесселя, поскольку нас интересуют только частицы, размеры которых меньше длины волны падающего излучения. Оценены резонансные параметры мишени для десятой гармоники Ti:Sa лазер, найдено усиление рассеянного поля в резонансном случае по сравнению с лазерной гармоникой. Используя те же условия резонанса для одного кластера, мы моделируем дифракцию на массиве таких кластеров с помощью кода CELES. Полученные результаты показывают значительное усиление рассеянного поля в резонансном случае для больших углов и соответствуют теории дифракции Брэгга-Вульфа. При помощи particle-in-cell моделирования была подтверждена квазистационарность плотности плазменных кластеров, что дает возможность значительно упростить расчет структур, подходящих для управления высокими гармониками лазерного излучения в XUV-диапазоне с помощью ионизированного кластерного газа.

## 1 Введение

## 2 Аналитическая модель

## 3 Стационарные вычисления

### 3.1 Одиночный кластер

### 3.2 Оправдание стационарной модели

### 3.3 Множество кластеров

В рамках в рамках стационарной теории рассеяния Ми было рассмотрено множество кластеров в виде протяженной цилиндрической газовой струи (в дальнейшем мишень) с регулярной и квазирегулярной пространственной конфигурацией для исследования возможности рассеяния такими структурами на большие углы жёсткого ультрафиолетового излучения, в частности соответствующего гармоникам высокого порядка.

В качестве регулярного распределения была выбрана примитивная кубическая решетка с расстоянием между соседними узлами  $d$ . Квазирегулярное распределение было построено при помощи внесения случайных

сдвигов координат узлов с произвольной нормой сдвига в диапазоне  $0 \leq |\Delta d| \leq \eta d$ , где  $0 \leq \eta < 0.5$  — степень нерегулярности. Тогда при кратном  $d = b\lambda$ ,  $b \in \mathbb{N}$  расстояние между соседними узлами после внесения сдвигов:

$$b(1-\eta)\lambda \leq d_{\text{irreg}} \leq b(1+\eta)\lambda \quad (1)$$

В квазирегулярном случае моделирование было проведено несколько раз с целью усреднения и получения обобщенной картины рассеянного поля. Для вычислений был использован программный код CELES [1].

### 3.3.1 Условие дифракции для решетки в пространстве

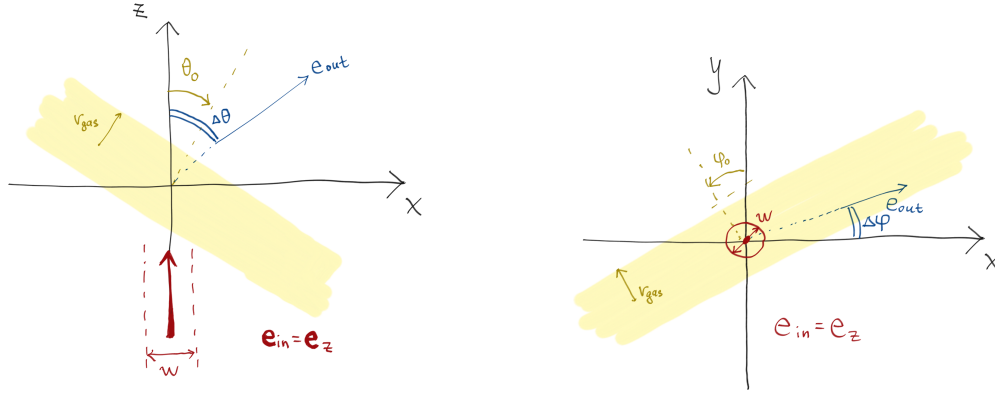
Условие дифракции в случае трехмерной регулярной решетки при упругом рассеянии принимает вид [2]:

$$\begin{cases} (\mathbf{D}_x, \mathbf{e}_{\text{out}} - \mathbf{e}_{\text{in}}) = h\lambda \\ (\mathbf{D}_y, \mathbf{e}_{\text{out}} - \mathbf{e}_{\text{in}}) = k\lambda \\ (\mathbf{D}_z, \mathbf{e}_{\text{out}} - \mathbf{e}_{\text{in}}) = l\lambda \end{cases} \quad (2)$$

где  $h, k, l$  — индексы Миллера представленные целыми числами,  $\mathbf{D}_i$  — вектор, соединяющий соседние узлы решетки вдоль направления  $i$ ,  $\mathbf{e}_{\text{in}}$  — единичный вектор направления падающего излучения,  $\mathbf{e}_{\text{out}}$  — единичный вектор направления прошедшего излучения. Переходя к сферическим координатам, связанными с  $\mathbf{e}_{\text{in}}$  так, что в декартовом представлении  $\mathbf{e}_{\text{in}} = \mathbf{e}_z$ , выр. 2 можно преобразовать следующим образом, учитывая, что  $|\mathbf{D}_x| = |\mathbf{D}_y| = |\mathbf{D}_z| = d$  для рассматриваемой кубической решетки:

$$\begin{cases} \cos\theta_0 \sin\Delta\theta \cos(\Delta\varphi - \varphi_0) - \sin\theta_0 (\cos\Delta\theta - 1) = \frac{h'\lambda}{d} \\ \sin\Delta\theta \sin(\Delta\varphi - \varphi_0) = \frac{k'\lambda}{d} \\ \sin\theta_0 \sin\Delta\theta \cos(\Delta\varphi - \varphi_0) + \cos\theta_0 (\cos\Delta\theta - 1) = \frac{l'\lambda}{d} \end{cases} \quad (3)$$

где  $\Delta\theta, \Delta\varphi$  — углы, характеризующие отклонение направления дифрагировавшего излучения относительно падающего,  $\theta_0, \varphi_0$  — углы, характеризующие поворот мишени (решетки) в пространстве,  $h', k', l'$  — новые индексы Миллера (рис. 1). Используя выр. 3, можем получить угловое распределение дифрагировавшего излучения при заданных начальных параметрах  $d, \lambda, \theta_0, \varphi_0$ .

а: Проекция на плоскость  $xz$ .б: Проекция на плоскость  $xy$ .

**Рис. 1:** Общая схема взаимодействия падающего излучения с решеткой.  $\theta_0, \varphi_0$  — характеризуют углы поворота мишени в пространстве,  $\Delta\theta, \Delta\varphi$  — углы отклонения направления дифрагировавшего излучения относительно падающего,  $r_{\text{gas}}$  — радиус газовой струи, представляющей мишень,  $w$  — диаметр гауссова пучка падающего излучения.  $\Delta\theta$  отсчитывается вокруг  $y$  против часовой стрелки,  $\Delta\varphi$  — вокруг  $z$  против часовой стрелки.

### 3.3.2 Рассеяние монохроматического излучения

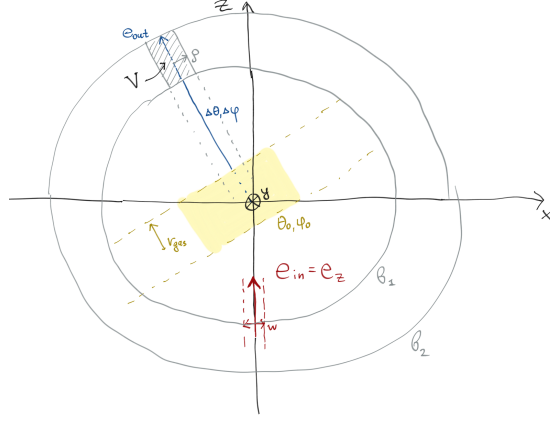
Для того, чтобы проверить достоверность полученной теории, смоделируем стационарное взаимодействие в регулярном случае при различных параметрах решётки и ширине гауссова пучка  $w = 800 \text{ nm}$ , радиусе цилиндра, ограничивающего решетку (радиус газовой струи)  $r_{\text{gas}} = a + 12d \approx 2 \text{ }\mu\text{m}$ , где множитель при  $d$  — количество узлов решетки между центральной осью и границей цилиндра. Несмотря на то, что в реальных условиях гауссов пучок 10-ой гармоники Ti:Sa лазера с шириной 800 nm получить практически невозможно, в силу стационарности вычислений отношение  $w/r_{\text{gas}}$  может быть корректно масштабировано при  $w \ll 2r_{\text{gas}}$ . Использованное малое значение  $w$  в таком случае ускоряет вычисления, но принципиально не изменяет их результат.

Различие рассеяния в резонансном и нерезонансном случае показано на рис. 3 — квадрат амплитуды рассеянного поля превышает таковой в отсутствии резонанса более, чем в 10 раз, а также в этом случае нет порядков дифракции, кроме нулевого, что напрямую следует из  $\lambda/d = \lambda_L/2\lambda_{10} = 5$  в выр. 3.

Определим наиболее интенсивные направления рассеяния при помощи следующей интегральной характеристики:

$$E_{\text{int}}(\eta, \lambda, V(\Delta\theta, \Delta\varphi), E_0, \varphi_0, \theta_0) = \int_{V(\Delta\theta, \Delta\varphi)} |\mathbf{E}_s(\eta, \lambda, E_0, \varphi_0, \theta_0)|^2 dV. \quad (4)$$

В данном случае выр. 4 представляет собой интегрирование интенсивности рассеянного поля, вычисленного как квадрат модуля напряженности рассеянного поля (без учета нормирующего множителя) в области пространства  $V$  для решётки, обладающей нерегулярностью  $\eta$ , то есть является энергией, рассеянной решёткой в область  $V$ ,  $\lambda$  представляет собой длину волны падающего поля,  $E_0$  — амплитуду, углы  $\varphi_0, \theta_0$  — задают положение мишени в пространстве в соответствии с рис. 1. Область  $V$  должна быть задана так, чтобы характеризовать некоторое направление в пространстве, и, как правило, для этой цели используется область в виде конуса, образованного некоторым раствором телесного угла  $\delta\Omega$  и направлением при помощи углов  $\Delta\theta, \Delta\varphi$ . Для рассматриваемой задачи необходимо исключить из вычисления ближнее поле, ввиду чего накладывается дополнительное ограничение  $V$  внутренностью сферического слоя пространства с границами  $b_1$  и  $b_2$ , где  $b_2$  — граница области численного моделирования,  $b_1$  — больше радиуса сферы, описанной вокруг мишени. Хотя газовая струя является протяженным объектом, в моделировании используется только её сегмент, так как падающий пучок ограничен и рассеяное поле слабо зависит от частей струи, удаленных от области падения пучка, что позволяет описать вокруг такого сегмента соответствующую окружность.

Рис. 2: Схематическое изображение области  $V$  (выр. 6).

Пересечение конической области и сферического слоя вдали от мишени можно приблизить цилиндром, считая  $\rho \approx 0.5b_2 \cdot \delta\Omega$ , где  $\rho$  — радиус цилиндра. В таком случае, при помощи вспомогательного вектора  $\mathbf{c}$  (выр. 5) получаем область  $V$  (рис. 2).

$$\mathbf{c} = \mathbf{c}(\mathbf{x}, \Delta\theta, \Delta\varphi) = \begin{pmatrix} c_x \\ c_y \\ c_z \end{pmatrix} = M_y(\Delta\theta)M_z(\Delta\varphi)\mathbf{x}, \quad \mathbf{x} = \begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix}, \quad (5)$$

$$V(\Delta\theta, \Delta\varphi) = \left\{ \mathbf{x} : c_x^2 + c_y^2 \leq \rho^2, b_1^2 \leq |\mathbf{x}|^2 \leq b_2^2 \right\}, \quad (6)$$

где  $M_y(\Delta\theta)$  — матрица поворота вокруг декартовой оси  $y$  на угол  $\Delta\theta$  против часовой стрелки,  $M_z(\Delta\varphi)$  — матрица поворота вокруг декартовой оси  $z$  на угол  $\Delta\varphi$  против часовой стрелки. В дальнейшем взяты значения  $\rho = w/4$ ,  $b_1 = 4r_{\text{gas}}$  где  $w$  — ширина гауссова пучка падающего поля,  $r_{\text{gas}}$  — радиус газовой струи, формирующей мишень.

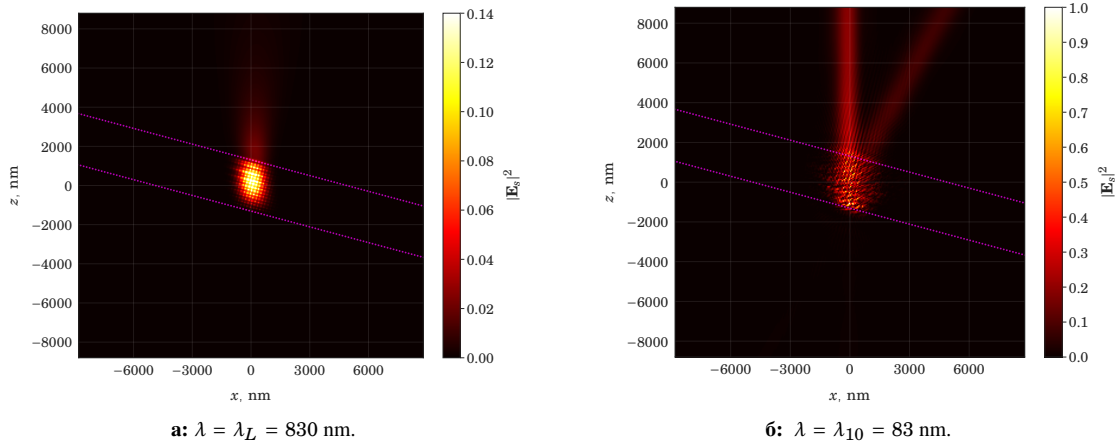
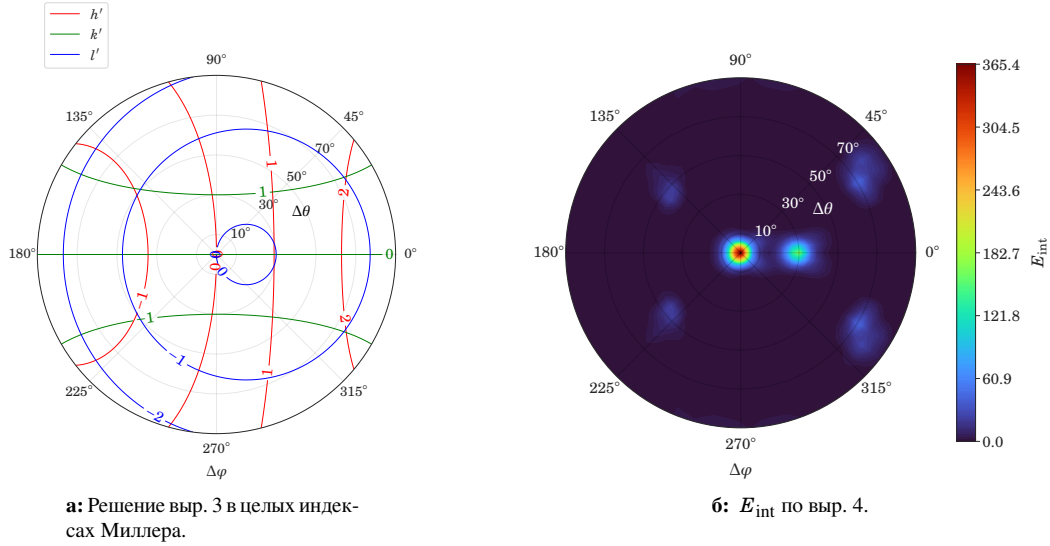


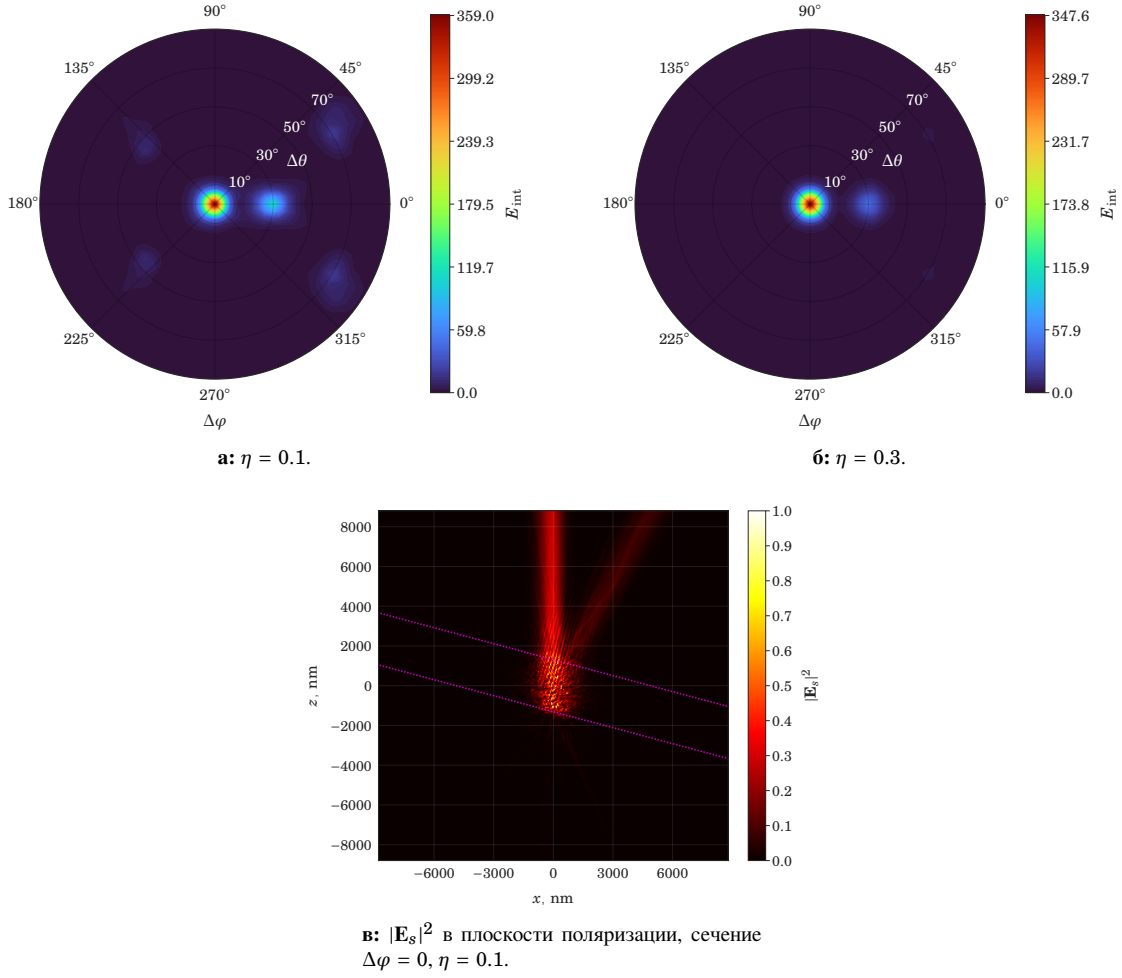
Рис. 3:  $|E_s|^2$  в плоскости поляризации, сечение  $\Delta\varphi = 0$  — рассеяние гауссового пучка на слое квазирегулярно расположенных кластеров радиуса  $a = 20 \text{ nm}$ ,  $\theta_0 = 15^\circ$ ,  $\varphi_0 = 0^\circ$ . Границы газового слоя обозначены пурпурным цветом. Амплитуда рассеянного поля нормирована на максимальное значение в случае 10 гармоник.



**Рис. 4:** Рассеяние 10-ой гармоники при параметрах решетки  $a = 20 \text{ nm}$  и  $d = 2\lambda_{10}$ ,  $\varphi_0 = 0^\circ$ ,  $\theta_0 = 15^\circ$ ,  $\lambda = \lambda_{10} = 83 \text{ nm}$ , диапазон построения  $\Delta\theta \in [0, \pi/2]$ .

Также построим целочисленные решения для  $h', k', l'$  с заданными  $\theta_0, \varphi_0$  в осях  $\Delta\varphi, \Delta\theta$  при помощи выр. 3 (рис. 4а). Графики на рис. 4 представляют собой диаграммы в полярных координатах  $(\Delta\theta, \Delta\varphi)$ , то есть проекции поверхности сферы, ограниченной некоторым диапазоном угла  $\Delta\theta$ , на плоскость. Такой метод построения более удобный для изображения пространственного распределения рассеянного излучения, а также более естественный для отображения целочисленных решений на индексы Миллера (выр. 3), так как они в таком случае представляют собой наборы колец на сфере. По полученным результатам можно заметить, что наиболее интенсивные направления дифракции по  $E_{\text{int}}$  отвечают наиболее близкому расположению кривых, соответствующих целочисленным значениям индексов Миллера.

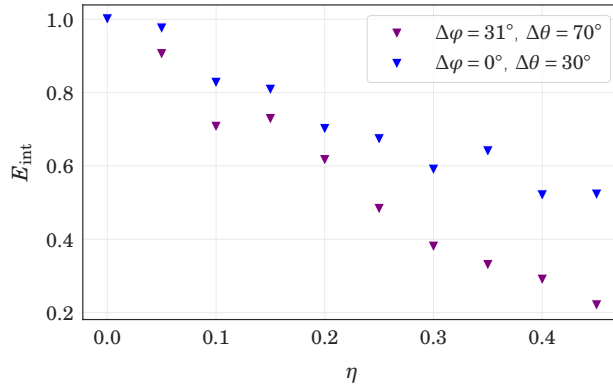
Рассмотрим влияние нерегулярности решетки на наиболее интенсивные направления рассеянного поля, то есть зависимость выр. 4 от нерегулярности решетки  $\eta$ . Для этого смоделировано рассеяние в случае квазирегулярной решетки при различных параметрах и нерегулярностью  $\eta$  от 0 до 0.5 (рис. 5).



**Рис. 5:** Рассеяние гауссового пучка на слое квазирегулярно расположенных кластеров радиуса  $a = 20$  nm,  $\theta_0 = 15^\circ$ ,  $\varphi_0 = 0^\circ$ .

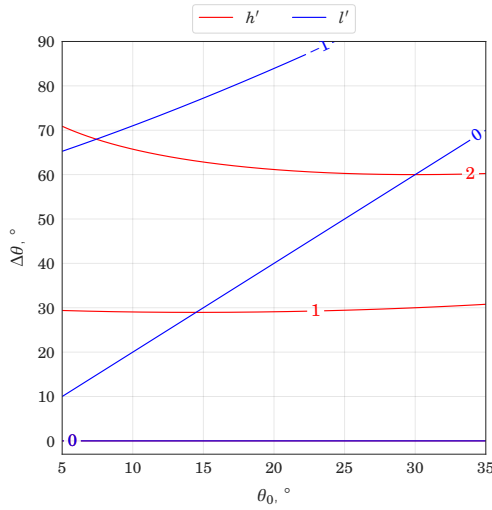
При помощи нормированного варианта  $E_{\text{int}}$  (выр. 7) была построена зависимость изменения рассеяния от нерегулярности решетки (рис. 6). С ростом нерегулярности решётки наиболее интенсивные направления, кроме нулевого, значительно ослабляются, при этом общая картина рассеяния в различных направлениях выравнивается вплоть до практически однородной при  $\eta \rightarrow 0.5$  (рис. 5).

$$E_{\text{int}}^{\text{norm}}(\eta, \lambda, V, E_0) = \frac{E_{\text{int}}(\eta, \lambda, V, E_0)}{E_{\text{int}}(0, \lambda, V, E_0)} \quad (7)$$

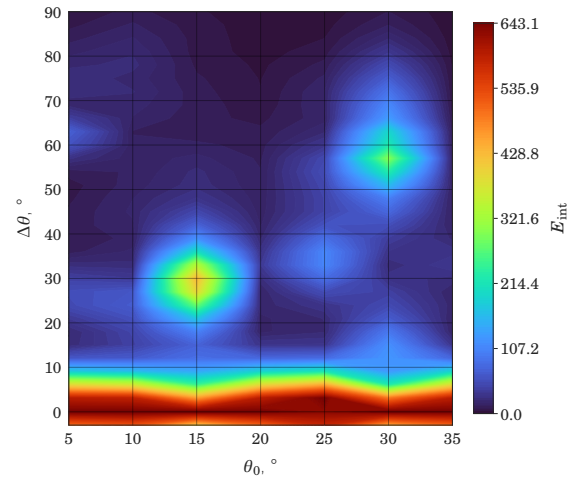


**Рис. 6:** Ослабление рассеяния в зависимости от нерегулярности решётки.

Была рассмотрена зависимость интенсивных направлений рассеяния по  $\Delta\theta$  в зависимости от  $\theta_0$  в сечении  $\Delta\varphi = 0$ . При этом было взято значение  $\varphi_0 = 0$ , так как любое ненулевое значение этого угла в сути поворачивает угловое распределение на тот же угол, что следует из выр. 3. Полученный результат полностью соотносится с описанной ранее теорией дифракции (выр. 3) — положение пятен, отвечающих наиболее интенсивным направлениям рассеянного поля, отличным от нулевого, на рис. 7б соответствуют пересечениям линий целочисленных значений индексов Миллера на рис. 7а.



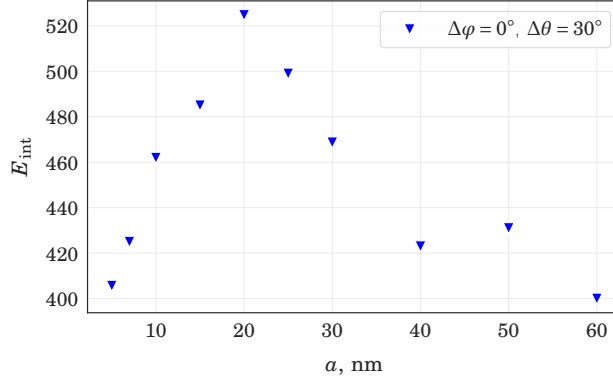
**а:** Решение выр. 3 в целых индексах Миллера.



**б:**  $E_{\text{int}}$  по выр. 4.

**Рис. 7:** Рассеяние 10-ой гармоники при различном угле  $\theta_0$ ,  $\varphi_0 = 0$ ,  $\Delta\varphi = 0$ ,  $\alpha = 20$  nm,  $d = 2\lambda_{10}$ . На (а)  $k' = 0$  для любых  $\theta_0$  и  $\Delta\theta$ .

Было выбрано наиболее интенсивное направление рассеяния, отвечающее  $\theta_0 = 15^\circ$ ,  $\Delta\theta = 30^\circ$ , для него рассмотрена зависимость величины ранее построенной интегральной характеристики (выр. 4) от радиуса кластеров (рис. 8). Видно наличие глобального максимума у построенной зависимости, что позволяет говорить о существовании наиболее оптимального значения радиуса для соответствующего направления.



**Рис. 8:** Ослабление рассеяния в зависимости от радиуса кластеров, значения нормированы на  $E_{\text{int}}$  при  $a = 20$  nm.

Таким образом, мы имеем алгоритм нахождения оптимальных параметров для рассеяния в заданном направлении. Задавая большое  $d$  для решетки, мы увеличиваем количество реализуемых дифракционных максимумов, снижая эффективность (отношение диаметра кластера к расстоянию между кластерами уменьшается), но при этом увеличивая диапазон углов, куда можно потенциально отклонить излучение, при этом малое  $d$  обеспечивает наиболее интенсивное рассеяние в ближние порядки дифракции, но имеет ограниченный набор углов, расположенный вблизи пересечений кривых целочисленных решений для выр. 3, как это хорошо видно на рис. 76. Увеличение нерегулярности решётки  $\eta$  заставляет дифракционные максимумы расплываться и ослабляться, соответственно, чем более регулярная структура газовой струи, тем качественнее усиление рассеяния в заданном направлении.

### 3.3.3 Рассеяние волнового пакета

Рассмотрим рассеяние волнового пакета, образующегося в результате порождения из лазерного импульса первой гармоники. Амплитуда волнового пакета во времени описывается гауссовой функцией (выр. 8), при этом исходный импульс первой гармоники достаточно короткий, чтобы пренебречь изменением его временной ширины (длительности) при преобразовании. В рамках периодического продолжения промежутка  $[-\tau, \tau]$  этого импульса, где  $\tau$  — полуширина импульса, можем построить ряд Фурье (выр. 9), откуда имеем коэффициенты Фурье (выр. 10), представляющие собой вклад каждой из гармоник в общий импульс.

$$E_0(t) = \exp\left(-\frac{t^2}{\tau^2}\right) \quad (8)$$

$$E_0(t) = \frac{\sqrt{\pi}}{2} + \sum_{j=1}^{\infty} E_j \cos(\omega_j t), \quad \omega_j = \frac{2\pi j}{\tau} = \frac{c}{\lambda_j}, \quad \lambda_j = \frac{\lambda_L}{j}, \quad (9)$$

$$E_j = \frac{1}{\tau} \int_{-\tau}^{\tau} \exp\left(-\frac{t^2}{\tau^2}\right) \cos(\omega_j t) dt. \quad (10)$$

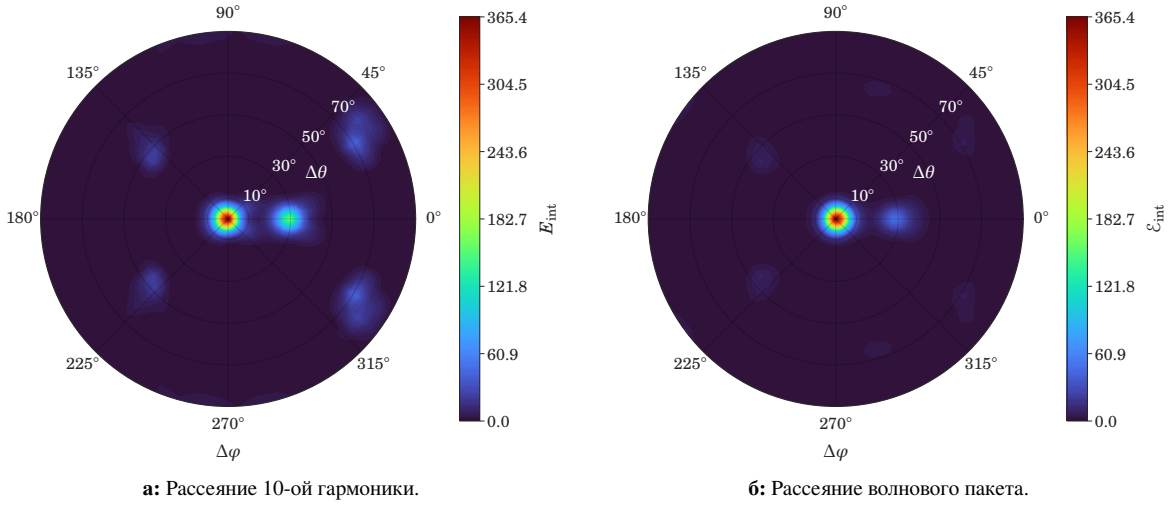
Для того, чтобы построить диаграмму рассеяния волнового пакета, была использована новая интегральная характеристика, определенная с учетом коэффициентов разложения в ряд Фурье волнового пакета (выр. 11). Такая характеристика разумна для описания направлений рассеяния в силу аддитивности энергии как количественной характеристики. Область  $V$  в данном случае представляет собой аналогичную той, что была использована для предыдущей интегральной характеристики (выр. 6, рис. 2).

$$\mathcal{E}_{\text{int}}(V, \eta, \varphi_0, \theta_0) = \sum_{j=N_1 > 0}^{N_2} E_{\text{int}}(\eta, \lambda_j, V, E_j, \varphi_0, \theta_0). \quad (11)$$



Определим наиболее интенсивные направления рассеянного поля для решётки с  $d = 2\lambda_{10}$ , радиусом кластеров  $a = 20$  nm,  $\theta_0 = 15^\circ$ ,  $\varphi_0 = 0^\circ$ , гармоники в волновом пакете с 8-ой по 12-ую, то есть  $N_1 = 8$ ,  $N_2 = 12$  в выр. 11, гауссова импульс имеет полуширину  $\tau \approx 17$  fs.

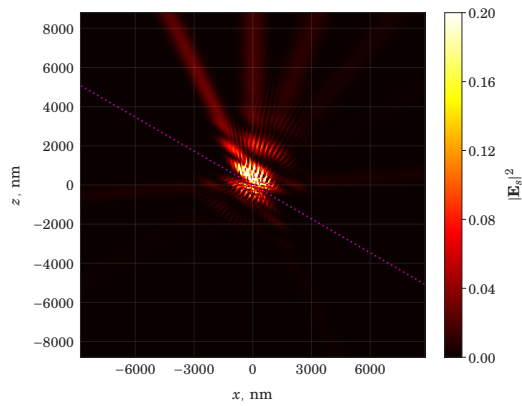
Сравнивая полученный результат с аналогичной диаграммой, вычисленной при помощи выр. 4 для 10-ой гармоники, можно заметить аналогичное значение для дифракционного максимума ( $h' = k' = l' = 0$ ), отвечающего за прошедшее излучение, и ослабление и расплывание остальных, что полностью соответствует выр. 3. В силу того, что индексы Миллера, отвечающие дифракционным уравнениям для разных длин волн, будут связаны между собой коэффициентами пропорциональности, имеем масштабирование кривых, отвечающих целочисленным значениям индексов Миллера, что и приводит к размытию дифракционной картины (рис. 9а и 9б).



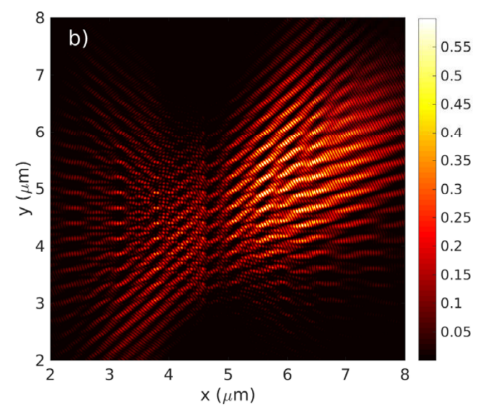
**Рис. 9:** Угловая диаграмма рассеяния гауссового волнового пакета и 10-ой гармоники.  $\theta_0 = 15^\circ$ ,  $\varphi_0 = 0^\circ$ ,  $d = 2\lambda_{10}$ , радиус кластеров  $a = 20$  nm.

### 3.3.4 Сравнение с цилиндрической симметрией

Было проведено сравнение результатов моделирования рассеяния на массиве цилиндров и массиве сферических кластеров с аналогичными начальными параметрами: радиус рассеивателей, пространственное расстояние между ними, параметры падающего поля. Результаты значительно отличаются, в частности в сферическом случае заметны отдельные дифракционные максимумы с малой эффективностью, при этом большая часть поля локализована около решетки кластеров. Направления дифракции соответствуют ранее описанной теории (выр. 3) с учетом  $\mathbf{D}_z = 0$ .



**а:** Рассеяние массивом сфер, падающее поле направлено вдоль оси  $z$ .



**б:** Рассеяние массивом цилиндров [3], падающее поле направлено из левого нижнего угла в правый верхний под углом  $\theta_0$ .

**Рис. 10:** Рассеяние гармоники с длиной волны  $\lambda \approx 89$  nm массивом сфер (а) и массивом цилиндров (б),  $\varphi_0 = 0^\circ$ ,  $\theta_0 = 30^\circ$ , радиус сферических кластеров и цилиндров  $a = 30$  nm, расстояние между кластерами и цилиндрами  $d = 3\lambda$ .

## Список литературы

- [1] A. Egel, L. Pattelli, G. Mazzamuto, D. Wiersma, and U. Lemmer, “CELES: CUDA-accelerated simulation of electromagnetic scattering by large ensembles of spheres,” *J Quant Spectrosc Radiat*, vol. 199C, pp. 103–110, 2017.
- [2] C. Kittel, *Introduction to Solid State Physics*. Wiley, New York, 1986.
- [3] Z. Lécz and A. A. Andreev, “Angular dispersion boost of high order laser harmonics with carbon nano-rods,” *Optics Express*, vol. 28(4), pp. 5355–5366, 2020.