

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

17 февраля 2022 г.

1 Введение

Мишени конечного размера, взаимодействующие с высокоинтенсивным когерентным излучением представляют собой хорошо изученное явление линейно возбужденных поверхностных плазменных колебаний. Поглощение и рассеяние падающего света в таком случае с хорошей точностью могут быть описаны при помощи теории Ми, которая предсказывает существование резонанса, соответствующего мультипольным колебаниям части свободных электронов мишени относительно положительно заряженных ионов. В режиме резонанса эффективное возбуждение поверхностных плазмонов может привести к значительному усилению внутреннего и внешнего поля на собственной частоте кластера. Что может привести к усилению поля, рассеянного на большие углы относительно исходного направления падающей волны.

В пределах длин волн порядка микрометра могут быть использованы фотонные кристаллы и решетки для направления или дифракции электромагнитных волн [1], в то время как для подобных манипуляций с рентгеновским излучением могут быть использованы кристаллы с атомами, регулярно расположенными на расстоянии нескольких нанометров, в качестве рассеивающих центров [2]. При этом большой промежуток между этими диапазонами длин волн, называемый XUV (extreme-ultraviolet) или жесткий ультрафиолет, оказывается трудно манипулируемым.

В данной работе предлагается использование массивов сферических нанокластеров для направленного рассеяния жесткого ультрафиолетового излучения. Аналогичная задача в случае цилиндрической симметрии – массивов нанопроволок в качестве рассеивателей – была исследована ранее [3]. Полученные результаты показали эффективность подхода, что делает рассмотрение сферической конфигурации многообещающим. Конечно, использование цилиндров более удобно с точки зрения контроля радиусов одиночных рассеивателей и дистанций между ними, но массивы сферических кластеров могут позволить оперировать направлением излучения в трехмерном пространстве, а также могут быть собраны в более оптимальную пространственную конфигурацию, нежели цилиндры.

Известно, что при помощи короткого интенсивного лазерного импульса можно генерировать лазерные гармоники высокого порядка при взаимодействии с плотными твердыми поверхностями [4]. В рассматриваемом диапазоне интенсивностей (порядка 10^{18} Вт/см²) коэффициент преобразования в лучшем случае около 10^{-4} , что дает интенсивности гармоник высокого порядка не выше 10^{14} Вт/см², чего недостаточно для ионизации мишени и генерации плазмы с чисто мнимым коэффициентом преломления. Для решения подобной проблемы предлагается использовать предимпульс.

Обобщенная схема взаимодействия приведена на рис. 1. Гармоники, которые содержит основной импульс, обладают различной интенсивностью под различными углами, что приводит к угловой зависимости формы выходного излучения. Рассеяние одиночным сферическим кластером с хорошей точностью описывается в рамках теории Ми, поэтому такое линейное приближение предлагается использовать и в случае множества кластеров с целью качественной оценки и дальнейшего уточнения при помощи PIC моделирования (метод частиц-в-ячейках).

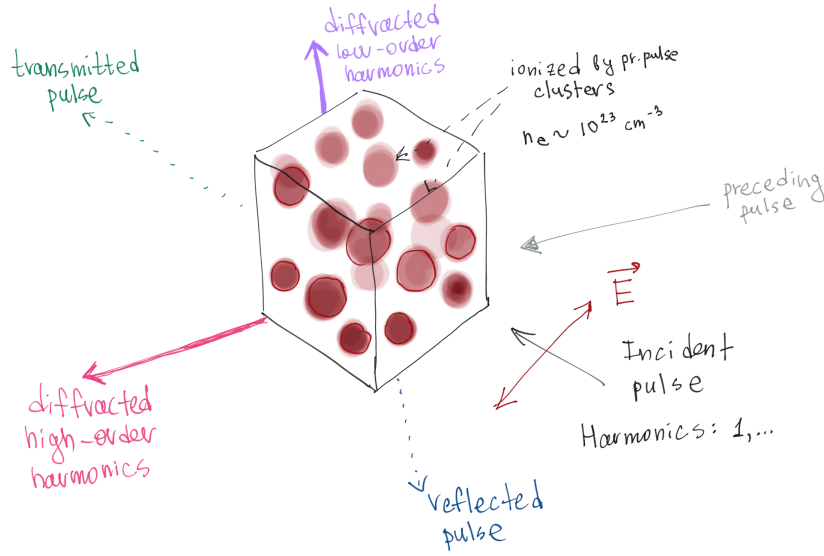


Рис. 1: Схема взаимодействия. Плоскость поляризации параллельна одной из граней кубической области. Размеры сферических кластеров порядка единиц нанометров, расстояния между ними не менее сотни нанометров. Распределение кластеров внутри кубической области в общем случае произвольно, кластеры не пересекают грани области.

2 Базовая модель

Рассмотрим одиночный сферический кластер радиуса a , облученный коротким фемтосекундным импульсом длительностью τ и интенсивностью порядка $I_h \approx 10^{14}$ Вт/см², полученной в результате преобразования лазерной гармоники с коэффициентом преобразования 10^{-4} . Модель Друде даёт представление диэлектрической функции плазмы:

$$\epsilon(\omega) = 1 - \left(\frac{\omega_{pe}}{\omega} \right)^2 \frac{1}{1 + i\beta_e}, \quad \omega_{pe} = \sqrt{\frac{4\pi e^2 n_e}{m_e}}, \quad (1)$$

где ω – рассматриваемая гармоническая частота, ω_{pe} – электронная плазменная частота, e и m_e – заряд и масса электрона, $n_e = Zn_i$ – электронная плотность, где Z – средняя степень ионизации, n_i – ионная плотность. $\beta_e = v_e/\omega$ и v_e коэффициент электрон-ионных столкновений в приближении Спитцера. В условиях твердотельной плазмы ионная плотность кластера порядка $n_i = 6 \cdot 10^{22}$ см⁻³, при этом электронная плотность кластера должна быть выше критической для заданной частоты $n_c = \omega^2 m_e / 4\pi e^2$. Для 10-ой гармоники лазерного излучения $\lambda_{10} = 83$ нм мы получаем условие $n_e > n_c = 1.3 \cdot 10^{23}$ см⁻³, что согласуется с условием на ионную плотность при средней степени ионизации $Z > 2$.

Теория Ми может быть использована для описания упругого рассеяния электромагнитных волн частицами произвольного размера в случае линейных взаимодействий, а также позволяет получить описание рассеянного поля и поля внутри рассеивающего объекта. Основной шаг – решение скалярного уравнения Гельмгольца в правильной системе координат (в данном случае сферической) и получение векторных решений. Для сферического кластера можем записать решение соответствующего уравнения, используя сферические функции Бесселя и Ханкеля n -ого порядка, включая присоединенные полиномы Лежандра [5].

Возьмем плоскую волну, распространяющуюся вдоль оси z декартовой системы координат, поляризованную вдоль оси x , что может быть записано как:

$$\mathbf{E}_i = E_0 e^{i\omega t - ikz} \mathbf{e}_x, \quad (2)$$

где $k = \omega/c$ - волновое число, \mathbf{e}_x - единичный вектор оси x , также являющийся вектором поляризации (рис. 2).

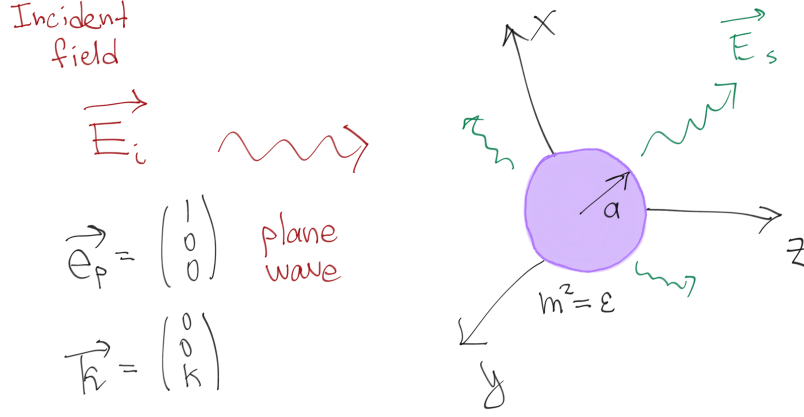


Рис. 2: Схема базовой модели.

$$\mathbf{E}_s = \sum_{n=1}^{\infty} E_n \left[ia_n(ka, m) \mathbf{N}_{e1n}^{(3)} - b_n(ka, m) \mathbf{M}_{o1n}^{(3)} \right], \quad E_n = i^n E_0 \frac{2n+1}{n(n+1)} \quad (3)$$

Далее эту плоскую можно разложить в ряд, используя обобщённое разложение Фурье. В случае изотропной среды имеем следующий вид коэффициентов рассеянного поля [5]:

$$a_n(x, m) = \frac{m\psi'_n(x)\psi_n(mx) - \psi'_n(mx)\psi_n(x)}{m\xi'_n(x)\psi_n(mx) - \psi'_n(mx)\xi_n(x)}, \quad (4)$$

$$b_n(x, m) = \frac{\psi'_n(x)\psi_n(mx) - m\psi'_n(mx)\psi_n(x)}{\xi'_n(x)\psi_n(mx) - m\psi'_n(mx)\xi_n(x)}, \quad (5)$$

где $\psi_n(\rho) = zj_n(\rho)$, $\xi_n(\rho) = zh_n(\rho)$ – функции Риккати-Бесселя, $h_n = j_n + i\gamma_n$ – сферические функции Ханкеля первого рода, $x = ka$ – безразмерный радиус кластера, $m = \sqrt{\varepsilon}$ – комплексный коэффициент преломления (выр. 1).

В случае сферической симметрии амплитуда рассеянного поля максимальна для $m^2 = -(n+1)/n$ при $ka \ll 1$, что даёт соответствующий набор резонансных плотностей в бесстолкновительном случае $n_e = n_c(2n+1)/n$. Это можно получить, используя нулевое асимптотическое приближение функций Бесселя, в результате чего коэффициенты (выр. 4, 5) значительно упрощаются:

$$a_n(x \rightarrow 0, m) = \left(1 + 2i \frac{(2n-1)!(2n+1)!}{4^n n!(n+1)!} \frac{(m^2 + \frac{n+1}{n})}{(m^2 - 1)} \frac{1}{x^{2n+1}} \right)^{-1}, \quad b_n(x \rightarrow 0, m) = 0 \quad (6)$$

Такое приближение можно использовать вместо (выр. 4, 5) для объектов достаточно маленького радиуса, но уже при $ka \sim 1$ оно перестаёт быть разумным, особенно для больших n . Вместо него в таком случае лучше подходит аппроксимация первого порядка:

$$a_n(x, m) = \left(1 + i \frac{C_n x^{-1-2n} ((4(1+n+m^2n)(-3+4n(1+n)) - 2(m^2-1)(3+n(5+2n+m^2(2n-1)))x^2))}{\pi(m^2-1)(2n+3)(n+1)(4(2n+3)-2(m^2+1)x^2)} \right)^{-1} \quad (7)$$

$$C_n = 2^{1+2n} \Gamma(n - \frac{1}{2}) \Gamma(n + \frac{5}{2})$$

На рис. 3 показана зависимость коэффициента рассеяния от электронной плотности для двух различных значений радиуса в рамках нулевого асимптотического приближения и сравнение первого и нулевого приближений. Видно, что с ростом n ширина резонансного пика быстро уменьшается, а также большим радиусам (безразмерным) ka соответствует большая их ширина. Помимо этого, с ростом радиуса растет и значение резонансной плотности, что видно на рис. 5.

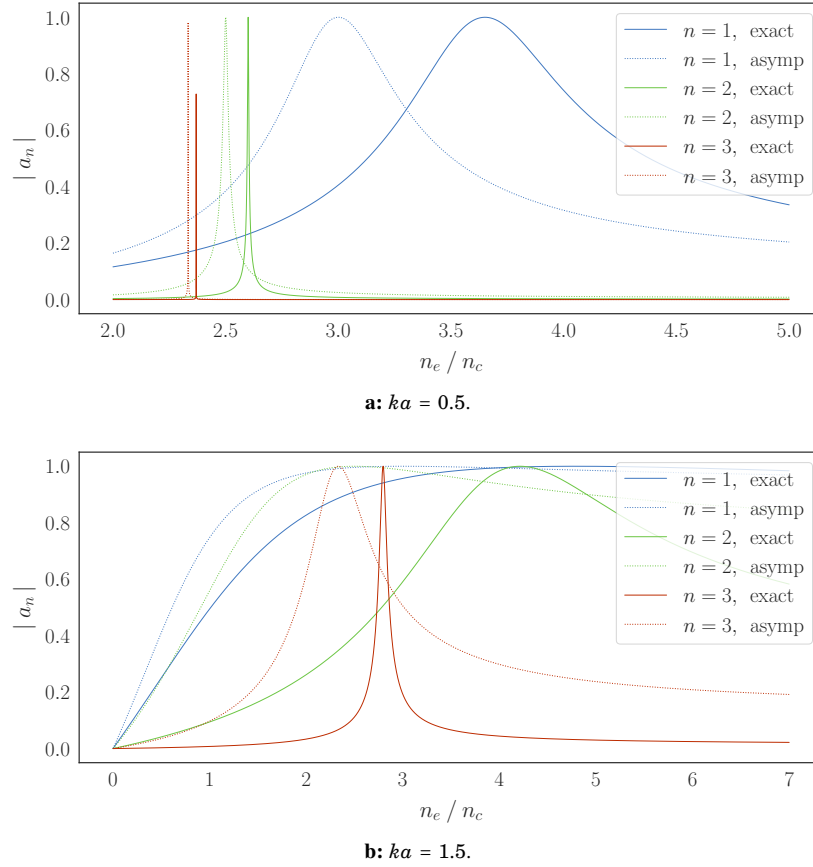


Рис. 3: Коэффициенты сферических гармоник в приближении нулевого порядка, $\beta_e = 0$. Кривые "exact" построены с использованием полных разложений.

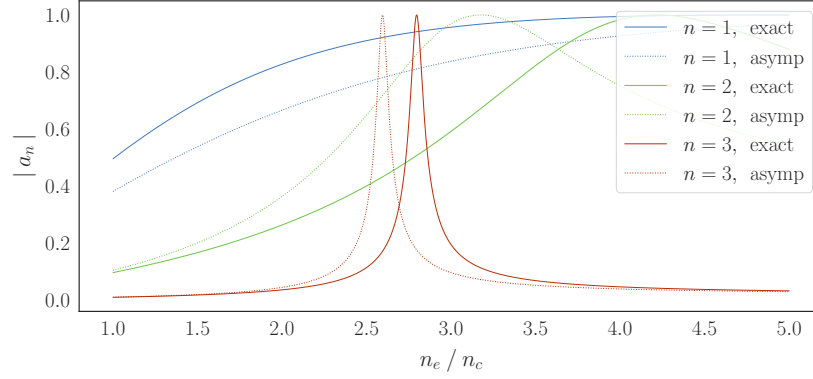


Рис. 4: $ka = 1.5$ в приближении первого порядка. $\beta_e = 0$. Кривые "exact" построены с использованием полных разложений.

Такие аппроксимации позволяют оценить резонансные параметры кластера, в частности электронную плотность и радиус. Так как рассматривается XUV излучение в диапазоне 70 – 100 нм, радиусы сферических рассеивателей для обеспечения сильного резонанса рассеяния должны быть порядка $ka \sim 1$.

Используя первое приближение (7), для обеспечения качественного резонанса рассеянного поля при $\lambda_{10} = \lambda_L/10 = 83$ нм получаем резонансную электронную плотность $n_{el} \approx 5.7 \cdot 10^{23} \text{ см}^{-3}$ для $ka = 0.7$ и $n_{el} \approx 3.9 \cdot 10^{23} \text{ см}^{-3}$ для $ka = 0.3$, соответствующие средней степени ионизации $Z|_{ka=0.7} \approx 9$ и $Z|_{ka=0.3} \approx 6$.

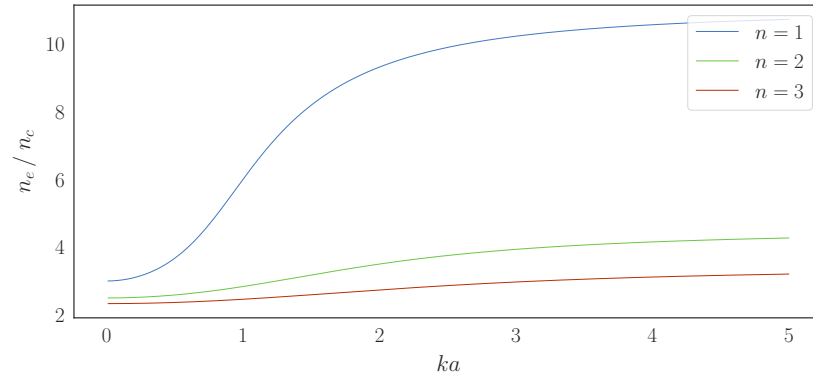


Рис. 5: Резонансная электронная плотность в зависимости от радиуса. Кривые посчитаны в точках максимума коэффициента (7), $\beta_e = 0$.

3 Одиночный кластер

В рамках теории рассеяния Ми известно, что амплитуду поля вблизи поверхности мишени можно значительно усилить. Для проверки этого были вычислены значения комплексного коэффициента преломления m , отвечающие ранее полученным условиям на резонансную электронную плотность при $\lambda = \lambda_L/10 = \lambda_{10} = 83$, $ka = 0.7$ – $m_{0.7} = 1.851i$. Комплексный коэффициент преломления чисто мнимый, так как столкновительный коэффициент v_e в рассматриваемом случае несколько ниже частоты гармоники, поэтому взаимодействие можно считать бесстолкновительным [3].

Были посчитано результирующее электрическое поле для этого случая при $\lambda = \lambda_L$ и $\lambda = \lambda_{10}$ с целью сравнения профилей и амплитуды. Видно, что рассеяние первой гармоники очень близко к рэлеевскому (рис. 6b) – профиль плоской падающей волны практически не изменяется. Совсем другая ситуация в случае $\lambda = \lambda_{10}$ – профиль волны искажен в результате рассеяния и становится похож на расходящуюся сферическую волну (рис. 7b). Амплитуда поля в окрестности рассеивающего кластера выше, чем при $\lambda = \lambda_L$ (примерно в 5 раз) (рис. 7a).

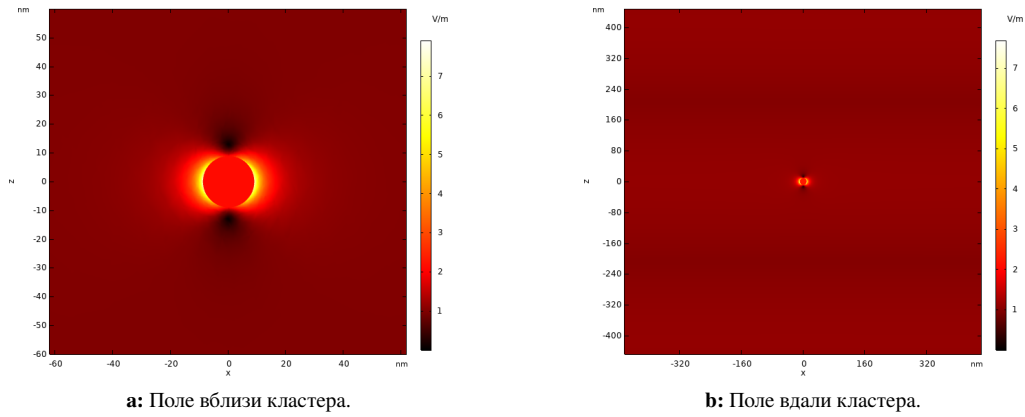
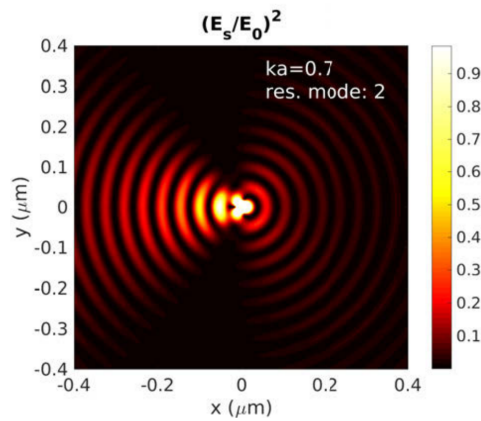
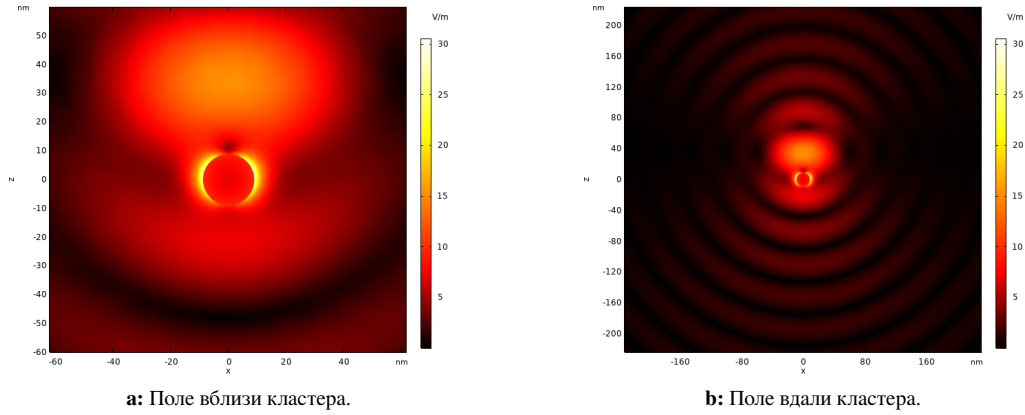


Рис. 6: Рассеяние лазерной гармоники. $\lambda = \lambda_L = 830$ нм, $a \approx 8.9$ нм ($ka = 0.7$); $|\mathbf{E}|$ построено в плоскости поляризации падающей волны.



с: Рассеяние нанопцилиндром [3].

Рис. 7: Рассеяние 10-ой гармоники. $\lambda = \lambda_{10} = 83$ нм, $a \approx 8.9$ нм ($ka = 0.7$); $|\mathbf{E}|$ построено в плоскости поляризации падающей волны. Качественное сравнение для такого же значения ka в цилиндрических координатах (с) — падающая волна распространяется справа налево (противоположно направлению оси x), y -поляризована.

Случай $ka = 0.7$ был также сравнен с аналогичной ситуацией для одиночного наноцилиндра [3] (рис. 7с). Видно, что картины поля похожи, в том числе и область локализованного поля в направлении рассеяния на угол 0° относительно направления распространения плоской волны.

4 Множество кластеров

В рамках теории рассеяния Ми было рассмотрено квазирегулярное распределение кластеров в газовом слое, построенное при помощи случайных отклонений от регулярного расположения примитивной кубической решетки в диапазоне $0.28\lambda_{10} \leq d \leq 3.72\lambda_{10}$, где d – расстояние между соседними кластерами в решетке. Такое распределение было достигнуто путем внесения случайных сдвигов координат центров кластеров относительно регулярного расположения с нормой сдвига не более $0.43d$, также выбранной случайно. Вычисления были проведены несколько раз, результаты были усреднены для получения обобщенной картины рассеянного поля в квазирегулярном случае. Для моделирования был использован программный код CELES [6].

В качестве падающего поля был использован гауссов пучок с параметром ширины $w = 1700$ нм, направленный вдоль оси z и поляризованный вдоль x , как и ранее. На рис. 8 видна значительная разница между резонансным и нерезонансным случаем - рассеяное поле 10-ой гармоники имеет более четкие очертания, хорошо видно рассеяние в двух направлениях, соответствующих нулевому и первому порядкам дифракции по теории Брэгга-Вульфа [5], амплитуда поля превышает таковую в отсутствии резонанса более, чем в 10 раз.

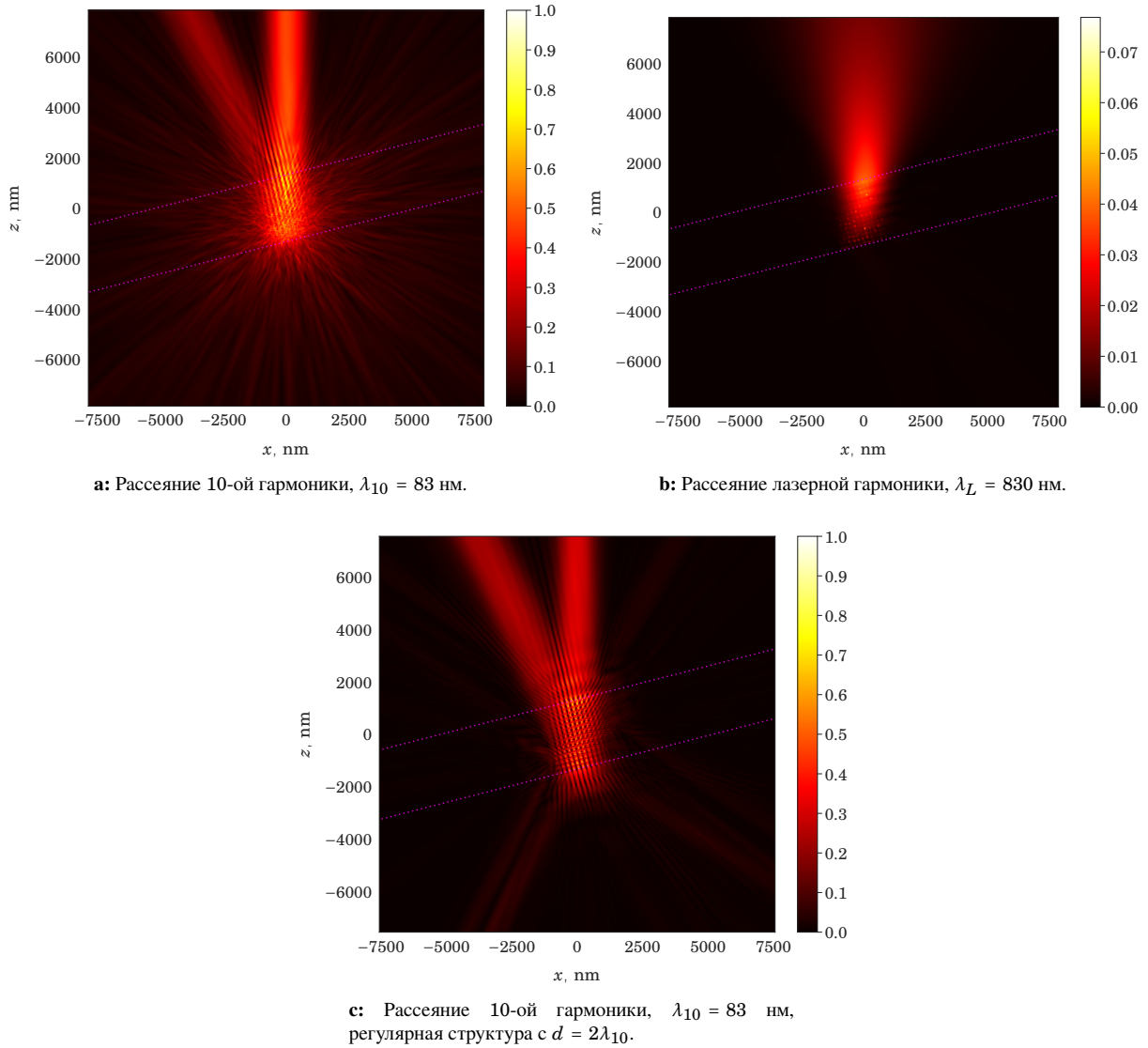


Рис. 8: Рассеяние гауссового пучка ширины $w = 850$ нм на слое квазирегулярно расположенных кластеров размера $ka = 0.7$ ($a \approx 8.9$ нм). Угол падения $\theta = 14.324^\circ$. Границы газового слоя обозначены пурпурным цветом. Амплитуда $|E_s|$ построена в плоскости поляризации падающей волны, нормированная на максимальную амплитуду в случае 10 гармоники.

Также приведено сравнение с регулярным случаем (рис. 8с), для которого амплитуда рассеянного в первый порядок излучения выше, а объем поля, локализованного в области газового слоя, ниже.

Список литературы

- [1] X. Lin, X. Zhang, K. Yao, and X. Jiang, “Wide-range and tunable diffraction management using 2d rectangular lattice photonic crystals,” *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 31(5), pp. 1145–1149, 2014.
- [2] B. W. Batterman and H. Cole, “Dynamical diffraction of x rays by perfect crystals,” *Rev. Mod. Phys.*, vol. 36(3), pp. 681–717, 1964.

- [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.
- [4] U. Teubner and P. Gibbon, “High-order harmonics from laser-irradiated plasma surfaces,” *Rev. Mod. Phys.*, vol. 81(2), pp. 445–479, 2009.
- [5] C. Bohren and D. R. Huffman, *Absorption and scattering of light by small particles*. Wiley Science Paperback Series, 1998.
- [6] 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.