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 плазмонных 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, называющийся 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 наноцилиндров 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 излучениея 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 случае гармоник высокого порядка, генерируемых в газах, интенсивность излучения как минимум на 4 порядка ниже, чего недостаточно для ионизации мишени и генерации плазмы с полностью мнимым показателем преломления. Для решения подобной проблемы предлагается использовать предимпульс с целью предварительной ионизации мишени и достижения генерации в заданых условиях.

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).

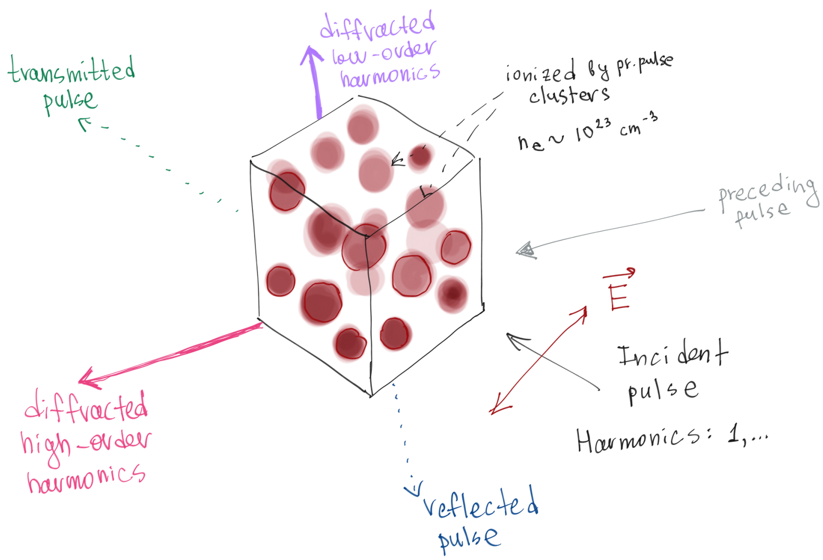


Рис. 1: Схема взаимодействия. Плоскость поляризации параллельна одной из граней кубической области. Размеры сферических кластеров порядка единиц нанометров, расстояния между ними не менее сотни нанометров. Распределение кластеров внутри кубической области в общем случае произвольно, кластеры не пересекают 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/см^2, полученной в результате преобразования лазерной гармоники с коэффициентом преобразования 10^{-4}. Модель Друде даёт представление диэлектрической функции плазмы:

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

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. $\beta_e = \nu_e/\omega$ и ν_e коэффициент электрон-ионных столкновений в приближении Спитцера. Так как предполагается рассмотрение рассеяния, 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 с длиной волны $\lambda_{10} = 83$ нм мы получаем условие $n_e > 1.3 \cdot 10^{23}$ см$^{-3}$.

Теория Ми может быть использована для описания упругого рассеяния электромагнитных волн частицами произвольного 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:

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

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

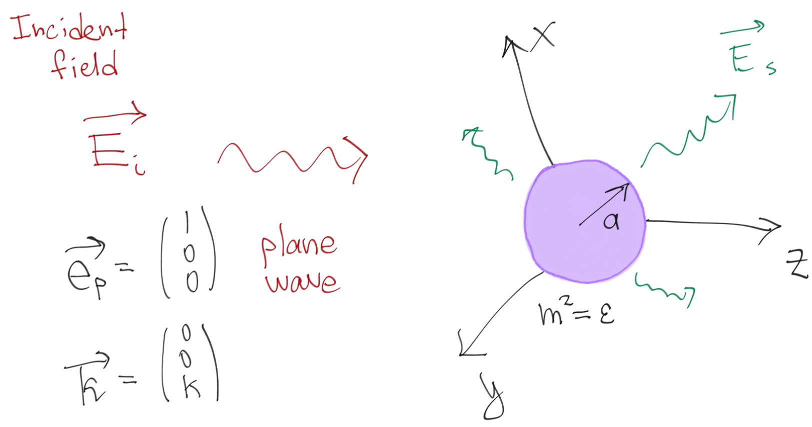


Рис. 2: Схема базовой модели.

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

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

$$a_n(x,m) = \frac{m\psi_n'(x)\psi_n(mx) - \psi_n'(mx)\psi_n(x)}{m\xi_n'(x)\psi_n(mx) - \psi_n'(mx)\xi_n(x)}, \tag{4}$$

$$b_n(x,m) = \frac{\psi_n'(x)\psi_n(mx) - m\psi_n'(mx)\psi_n(x)}{\xi_n'(x)\psi_n(mx) - m\psi_n'(mx)\xi_n(x)}, \tag{5}$$

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).

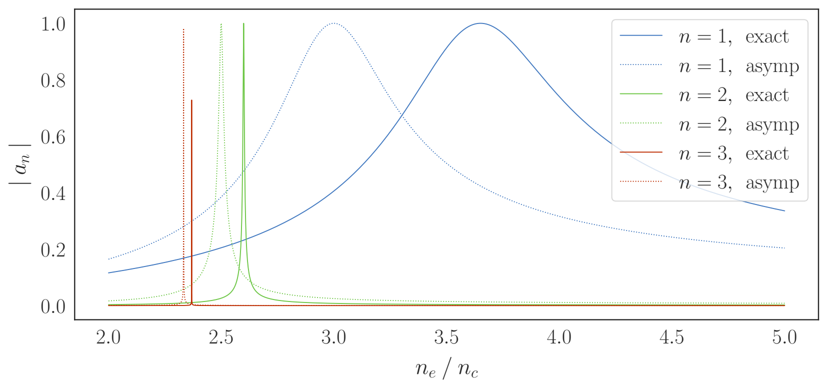
В случае сферической симметрии амплитуда рассеянного поля максимальна для $m^2 = -(n+1)/n$ при $ka \ll 1$, что даёт соответствующий набор резонансных плотностей в бесстолкновительном случае $n_e = n_c(2n+1)/n$. Это можно получить, используя нулевое асимптотическое приближение функций Бесселя, в результате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

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

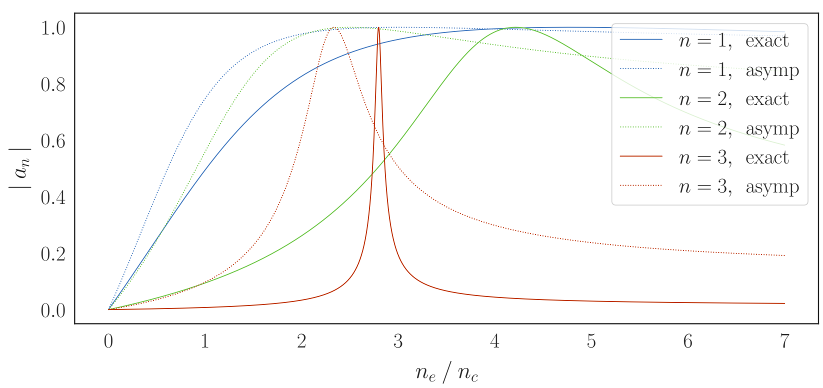
Такое приближение можно использовать вместо (выр. 4, 5) для объектов достаточно маленького радиуса, но уже при $ka \sim 1$ оно перестаёт быть разумным, особенно для больших n. Вместо него в таком случае лучше подходит аппроксимация первого порядка:

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

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 бо́льшим радиусам (безразмерным) ka соответствует бо́льшая их ширина. Помимо этого, с ростом радиуса растет и значение резонансной плотности, что видно на рис. 5.



a: $ka = 0.5$.



b: $ka = 1.5$.

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

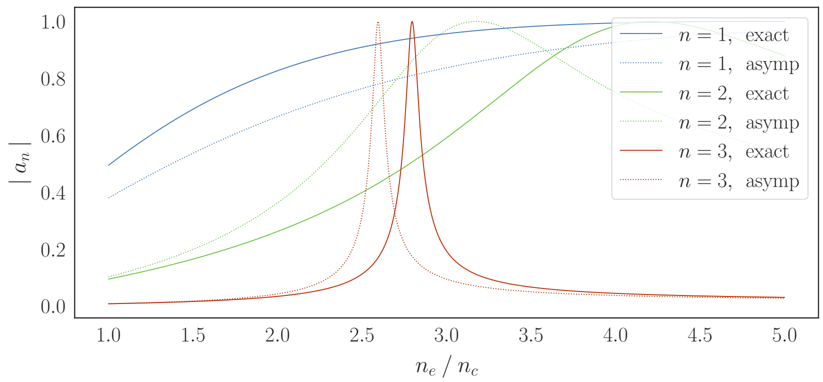


Рис. 4: $ka = 1.5$ в приближении первого порядка. $\beta_e = 0$. Кривые "exact"построены с использованием полных разложений.

Такие аппроксимации позволяют оценить резонансные случаи для материала с заданным коэффициентом преломления m, равно как и оценить m, отвечающий необходимой длине волны. Так как рассматривается XUV излучение, охватывающее длины волн порядка $20-120$ нм, радиусы сферических рассеивателей должны быть порядка нескольких нанометров, что обуславливает $ka \sim 1$. Очевидно, что для таких ka резонансные значения электронной плотности могут быть велики в рассмотрении $n = 1$ как слагаемого, дающего наибольший вклад в результирующее поле (рис. 5). Не выходя за рамки высокотемпературной плазмы, мы можем использовать только $n_e < 10^{24}$ см$^{-3}$. Тогда для $ka > 0.9$ разумнее оценивать резонансную плотность, используя $n = 2$.

Используя первое приближение (7), для обеспечения качественного резонанса рассеянного поля при $\lambda_{10} = \lambda_L/10 = 83$ нм получаем $n_e \approx 5 \cdot 10^{23}$ см$^{-3}$ в случае $ka \approx 0.5$ и $n_e \approx 5.7 \cdot 10^{23}$ см$^{-3}$ в случае $ka \approx 0.7$.

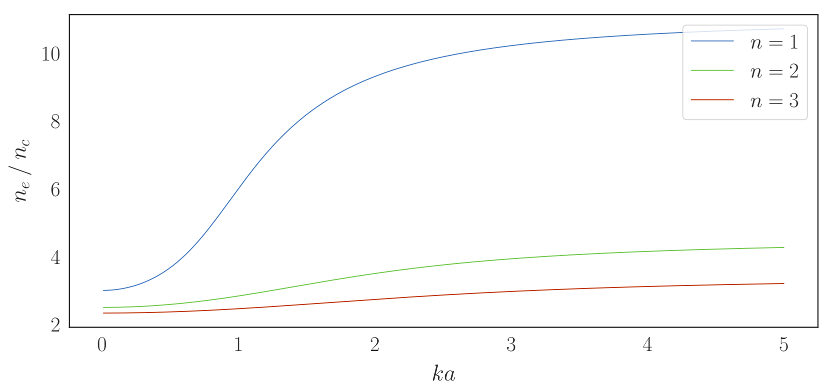


Рис. 5: Резонансная электронная плотность в зависимости от радиуса. Кривые посчитаны в точках максимума коэффициента (7), $\beta_e = 0$.

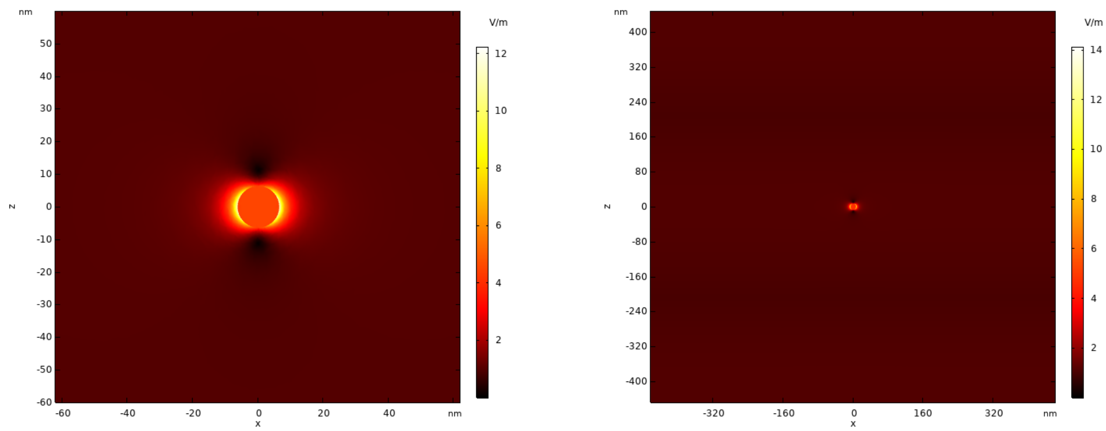
3 Одиночный кластер

В рамках теории рассеяния Ми известно, что амплитуду поля вблизи поверхности мишени можно значительно усилить. Для проверки этого было посчитаны значения m, отвечающие ранее рассмотренным условиям $\lambda = \lambda_{10}$, $ka = 0.5, 0.7$, которые оказались равны $m_{0.5} = 1.635i$, $m_{0.7} = 1.851i$.

Были вычислены дальние и ближние результирующие электрические поля для этих двух случаев при $\lambda = \lambda_L$ и $\lambda = \lambda_{10}$ с целью сравнения профилей и амплитуды. Видно, что рассеяние первой гармоники в обоих случаях очень близко к рэлеевскому (рис. 6b, 8b) - профиль плоской падающей волны практически не изменяется.

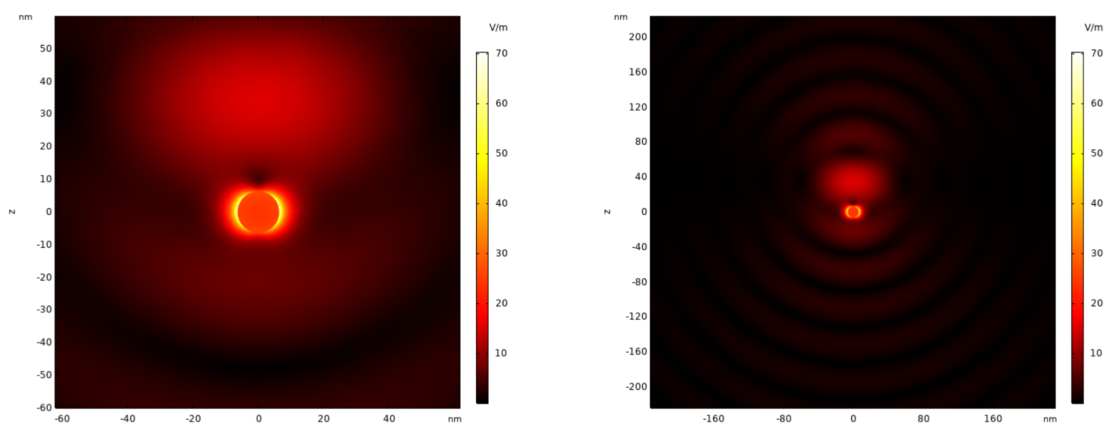
Совсем другая ситуация в случае $\lambda = \lambda_{10}$ – профиль волны искажен в результате рассеяния и становится похож на расходящуюся сферическую волну (рис. 7b, 9b). Амплитуда поля в окрестности рассеивающего кластера выше, чем при $\lambda = \lambda_L$ (примерно в 5 раз для обоих случаев) (рис. 7a, 9a).

Случай $ka = 0.7$ был также сравнён с аналогичной ситуацией для одиночного наноцилиндра [3] (рис. 9c). Видно, что картины поля похожи, в том числе и область локализованного поля в направлении рассеяния на угол 0° относительно направления распространения плоской волны.



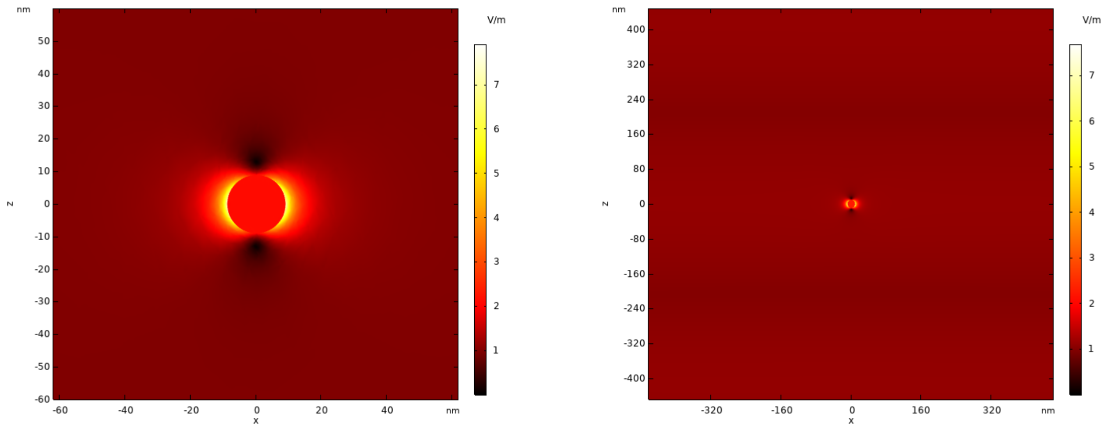
a: Near-field. **b:** Far-field.

Рис. 6: Рассеяние лазерной гармоники. $\lambda = \lambda_L$, $a \approx 6.4$ nm ($ka = 0.5$); $|\mathbf{E}|$ построено в плоскости поляризации падающей волны.



a: Near-field. **b:** Far-field.

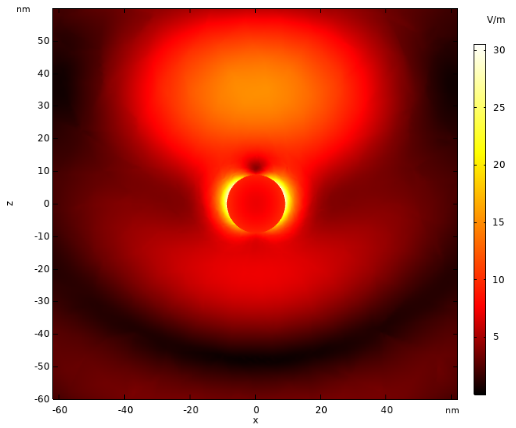
Рис. 7: Рассеяние 10-ой гармоники. $\lambda = \lambda_{10}$, $a \approx 6.4$ nm ($ka = 0.5$); $|\mathbf{E}|$ построено в плоскости поляризации падающей волны.



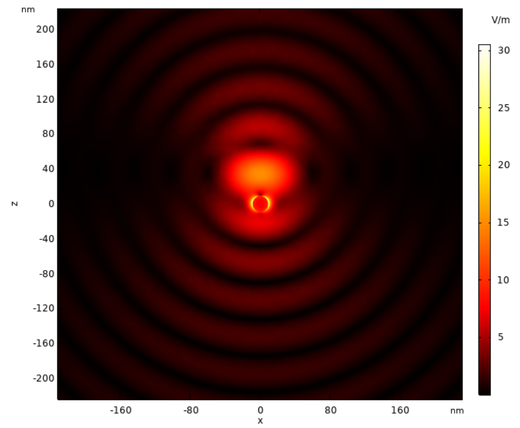
a: Near-field.

b: Far-field.

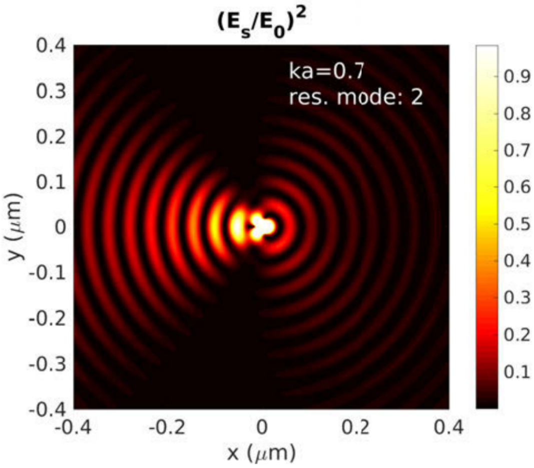
Рис. 8: Рассеяние лазерной гармоники. $\lambda = \lambda_L$, $a \approx 8.9$ nm ($ka = 0.7$); $|\mathbf{E}|$ построено в плоскости поляризации падающей волны.



a: Ближнее поле.



b: Дальнее поле.



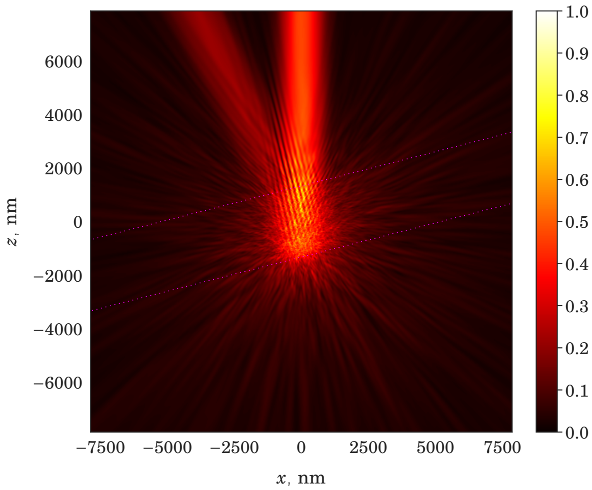
c: Рассеяние одиночным наноцилиндром [3].

Рис. 9: Рассеяние 10-ой гармоники. $\lambda = \lambda_{10}$, $a \approx 8.9$ nm ($ka = 0.7$); $|\mathbf{E}|$ построено в плоскости поляризации падающей волны. Качественное сравнение для такого же значения ka в цилиндрических координатах (с) — падающая волна распространяется слева направо (вдоль отрицательного направления оси x), y-поляризована.

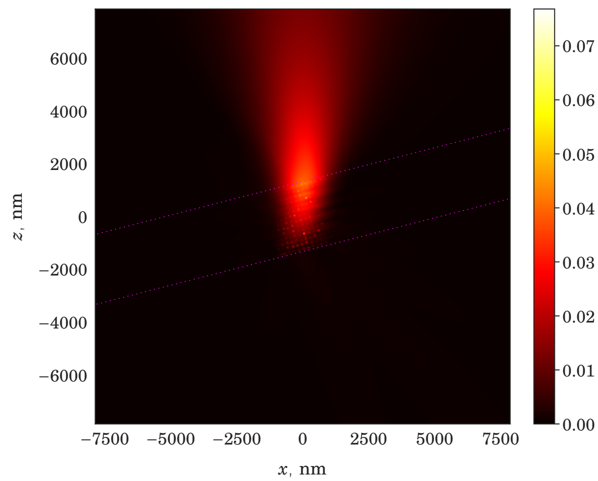
4 Множество кластеров

В рамках теории рассеяния Ми было рассмотрено квазирегулярное распределение кластеров в газовом слое, построенное при помощи случайных отклонений от регулярного расположения примитивной кубической решетки. 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].

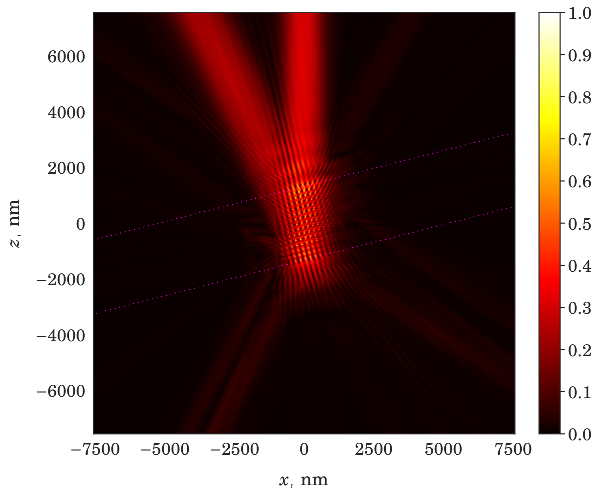
В качестве падающего поля был использован гауссов пучок с параметром ширины $w = 850$ нм, направленный вдоль оси z и поляризованный вдоль x, как и ранее. На рис. 10 видна значительная разница между резонансным и нерезонансным случаем - рассеяное поле 10-ой гармоники имеет более четкие очертания, хорошо 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.



a: Рассеяние 10-ой гармоники, $\lambda_{10} = 83$ нм.



b: Рассеяние лазерной гармоники, $\lambda_L = 830$ нм.



c: Рассеяние 10-ой гармоники, $\lambda_{10} = 83$ нм, регулярная структура с $d = 2\lambda_{10}$.

Рис. 10: Рассеяние гауссового пучка ширины $w = 850$ нм на слое квазирегулярно расположенных кластеров размера $ka = 0.7$ ($a \approx 8.9$ нм). Угол падения $\theta = 14.324^\circ$, расстояние между кластерами находится в пределах $0.28\lambda_{10} \leq d \leq 3.72\lambda_{10}$. Границы газового слоя обозначены пурпурным цветом. Амплитуда $|\mathbf{E}_s|$ построена в плоскости поляризации падающей волны, нормированная на максимальную амплитуду в случае 10 гармоники.

Также приведено сравнение с регулярным случаем (рис. 10c), 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.