

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

Л.А. Литвинов¹, А.А. Андреев^{1, 2}

¹Санкт-Петербургский государственный университет, Санкт-Петербург

²Физико-технический институт имени А.Ф.Иоффе, Санкт-Петербург

Аннотация

Периодические поверхностные решетки или фотонные кристаллы являются отличными инструментами для дифракции и направления света. Однако этот метод менее эффективен в случае экстремального ультрафиолетового (XUV) света из-за высокого поглощения любого материала в этом диапазоне частот. В работе исследуется возможность углового усиления 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 по десятой гармонике титан-сапфирового лазера и найдено усиление рассеянного поля в резонансном случае по сравнению с первой 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, что соответствует теории дифракции Брэгга-Вольфа, согласуются с нестационарными вычислениями при помощи particle-in-cell метода, что показывает возможность управления высокими гармониками лазерного излучения в XUV-диапазоне с помощью ионизированного кластерного газа.

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 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 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).

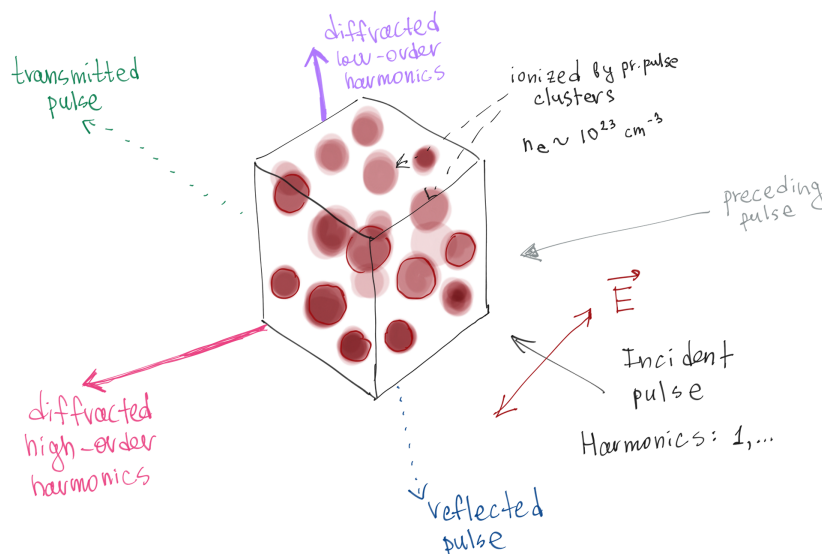


Рис. 1: Схема взаимодействия. Плоскость поляризации параллельна одной из граней кубической области. Размеры сферических кластеров порядка единиц нанометров, расстояния между ними не менее сотни нанометров. Распределение кластеров внутри кубической области в общем случае произвольно, кластеры не пересекают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

2 Аналитическая 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:

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

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 $n_i = 6 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$, 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 $\lambda_{10} = 83 \text{ нм}$ мы получаем условие $n_e > n_c = 1.3 \cdot 10^{23} \text{ см}^{-3}$, 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).

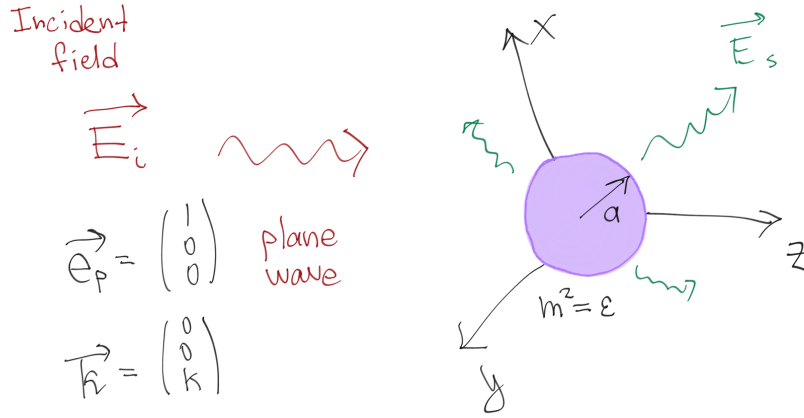


Рис. 2: Схема базовой модели.

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

Далее эту плоскую волну 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 $\psi_n(\rho) = z j_n(\rho)$, $\xi_n(\rho) = z h_n(\rho)$ — 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).

2.1 Асимптотическое приближение коэффициентов рассеянного поля

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 (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 (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:

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

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

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

Такие аппроксимации позволяют оценить резонансные параметры кластера, в частности электронную плотность и радиус. Устремив выр. 7 к единице, можем определить выражение для резонансного коэффициента преломления, что в свою очередь даёт выражение на резонансную электронную плотность, используя выр. 1:

В соответствии с выр. 13, рис. 5 резонанс рассеянного поля при $\lambda_{10} = \lambda_L/10 = 83$ нм отвечает резонансной электронной плотности $n_{el} \approx 5.7 \cdot 10^{23} \text{ см}^{-3}$ для $ka = 0.7$ и $n_{el} \approx 3.9 \cdot 10^{23} \text{ см}^{-3}$ для $ka = 0.3$, со средними степенями ионизации $Z|_{ka=0.7} \approx 9$ и $Z|_{ka=0.3} \approx 6$.

3 Стационарные вычисления

3.1 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 n_{el} при $\lambda_{10} = 83$, $ka = 0.7$: $m = 1.851i$ (выр. 13). Комплексный коэффициент преломления чисто мнимый, так как столкновительный коэффициент v_e в рассматриваемом случае несколько ниже частоты гармоник, 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. 6б) — 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

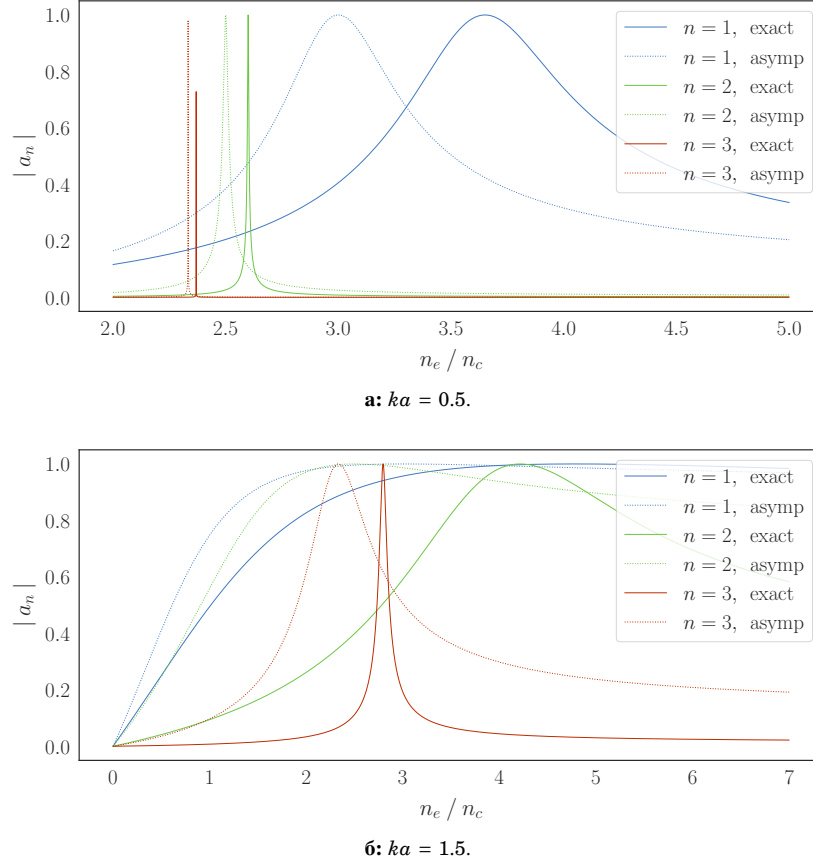


Рис. 3: Коэффициенты сферических гармоник в приближении нулевого порядка, $\beta_e = 0$. Кривые “exact” построены с использованием полных разложений.

(рис. 7б). Амплитуда поля в окрестности рассеивающего кластера выше, чем при $\lambda = \lambda_L$ (примерно в 5 раз) (рис. 7а).

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

3.2 Множество кластеров

В рамках теории рассеяния Ми было рассмотрено множество кластеров в виде протяженного газового слоя 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 кластерами $d = 2\lambda_{10}$, одинаковым во всех направлениях декартовой системы координат. Квазирегулярное распределение было построено при помощи внесения случайных сдвигов координат центров кластеров относительно регулярного расположения со случайной нормой сдвига в диапазоне $0 \leq |\Delta d| \leq 0.43d$. Таким образом расстояние между соседними кластерами имеет диапазон $0.28\lambda_{10} \leq d \leq 3.72\lambda_{10}$.

В квазирегулярном случае моделирование было проведено несколько раз с целью усреднения и получения обобщенной картины рассеянного поля. Для вычислений был использован программный код CELES [6].

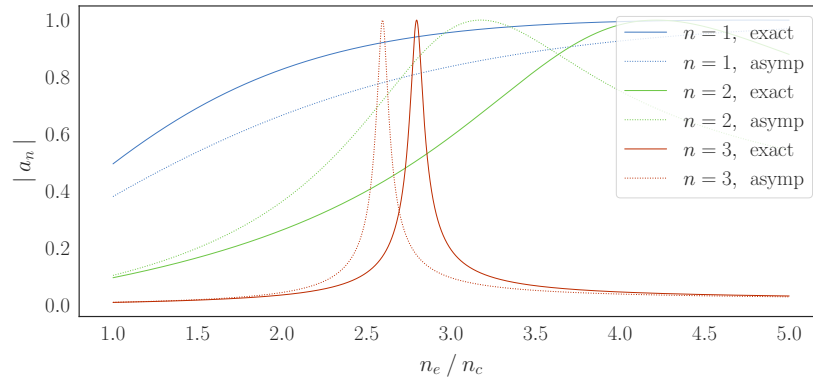


Рис. 4: $ka = 1.5$ в приближении первого порядка. $\beta_e = 0$. Кривые “exact” построены с использованием полных разложений.

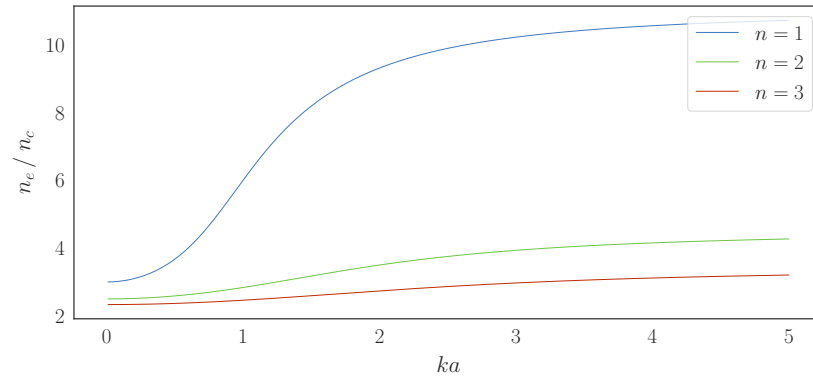


Рис. 5: Резонансная электронная плотность в зависимости от радиуса. Кривые посчитаны при помощи выр. 13; $\beta_e = 0$.

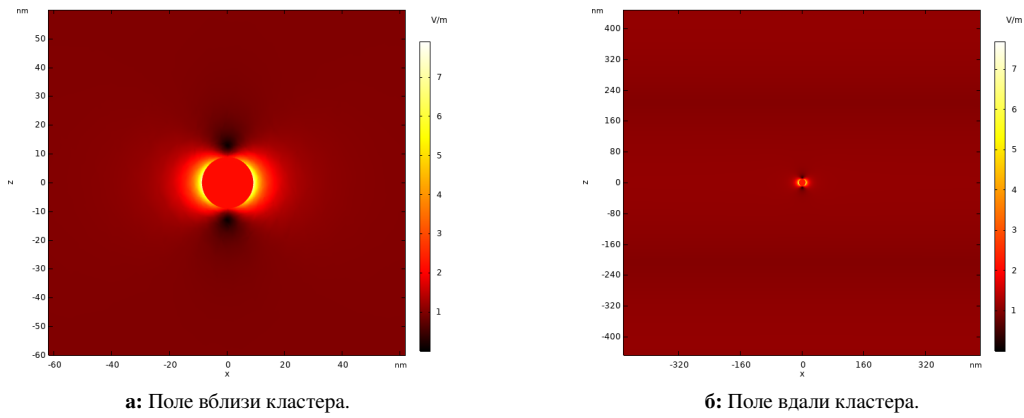


Рис. 6: Рассеяние лазерной гармоники. $\lambda = \lambda_L = 830$ нм, $a \approx 8.9$ нм ($ka = 0.7$); $|E|$ построено в плоскости поляризации падающей волны.

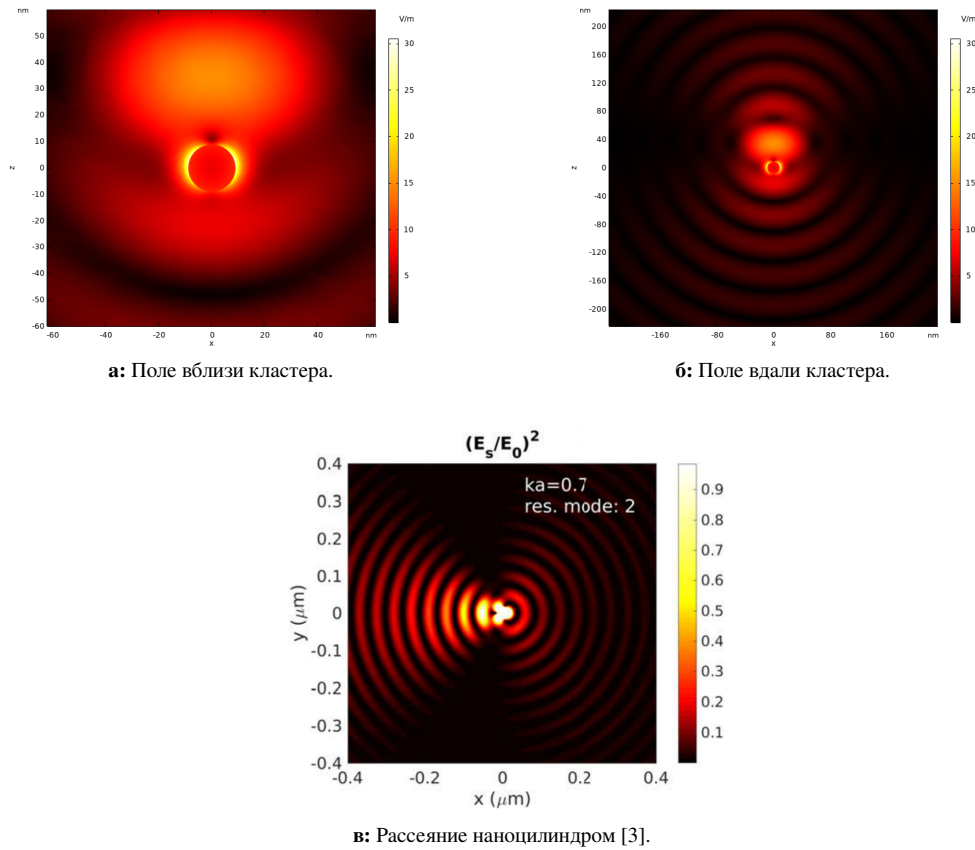


Рис. 7: Рассеяние 10-й гармоники. $\lambda = \lambda_{10} = 83 \text{ нм}$, $a \approx 8.9 \text{ нм}$ ($ka = 0.7$); $|E|$ построено в плоскости поляризации падающей волны. Качественное сравнение для такого же значения ka в цилиндрических координатах (с) — падающая волна распространяется справа налево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

3.2.1 Резонансное рассеяние лазерной гармоник

Условие Брэгга-Вульфа [5] в случае регулярной решетки:

$$2d \sin(\theta + \varphi) = 4\lambda_{10} \sin(\theta + \varphi) = n\lambda, \quad n = \frac{4\lambda_{10}}{\lambda} \sin(\theta + \varphi), \quad (8)$$

где θ — угол между направлением падающего излучения и нормалью к поверхности структуры \vec{n} , φ — угол между нормалью к поверхности \vec{n} и вектором решетки структуры \vec{K} (рис. 8). Для квазирегулярного распределения в слое вместо точного d использовано усредненное расстояние между кластерами, которое за счет использования равномерного распределения (выр. 12) в построении сдвигов будет примерно равно d .

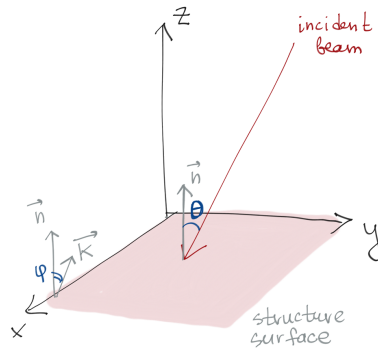


Рис. 8: Схема падения излучения на поверхность структуры в трёхмерном пространстве.

Поиском по сетке был найден угол $\theta = 14.324^\circ$, соответствующий наиболее интенсивному рассеянию в направлении минус первого дифракционного максимума при $d = 2\lambda_{10}$. При этом угол φ был взят нулевым для простоты.

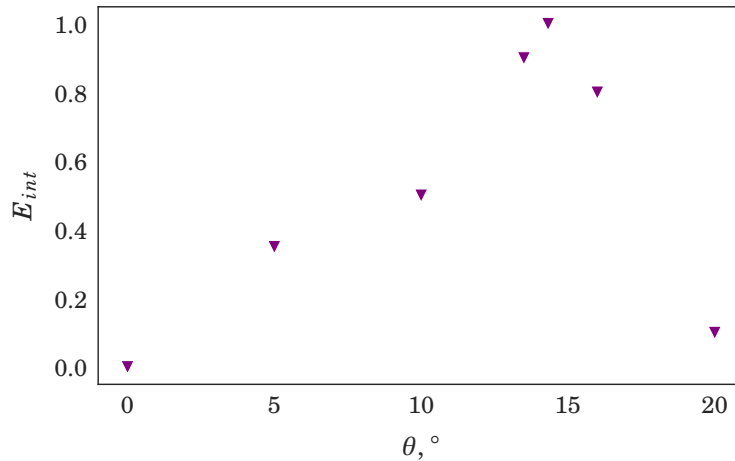
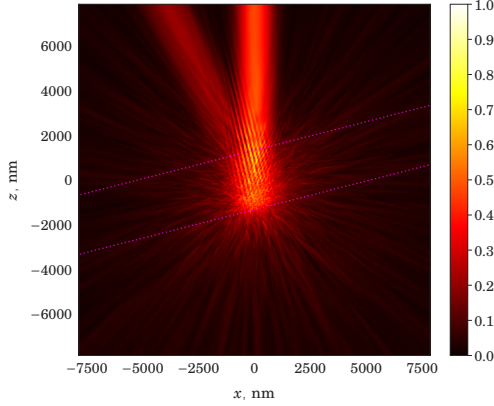


Рис. 9: Зависимость относительной характеристики выр. 9 от угла падения θ при $p = 0$.

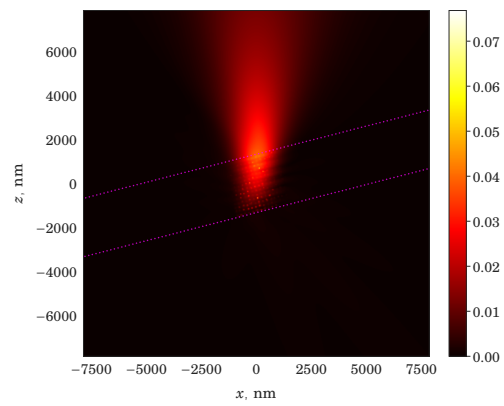
Рассеянные поля, полученные при моделировании, представлены на рис. 10. В этом случае мишень более реалистична, так как состоит из материала с реалистичной электронной плотностью $n_{el} = 5.7 \cdot 10^{23} \text{ см}^{-3} \approx 4.4 n_c$ для $\lambda_{10} = 83 \text{ нм}$. В качестве падающего поля был использован гауссов пучок с той же интенсивностью, что и

в случае с одиночным кластером $I_L \approx 10^{18}$ Вт/см², $I_h = I_{10} \approx 10^{14}$ Вт/см², параметром ширины $w = 1700$ нм, направленный вдоль оси z и поляризованный вдоль оси x .

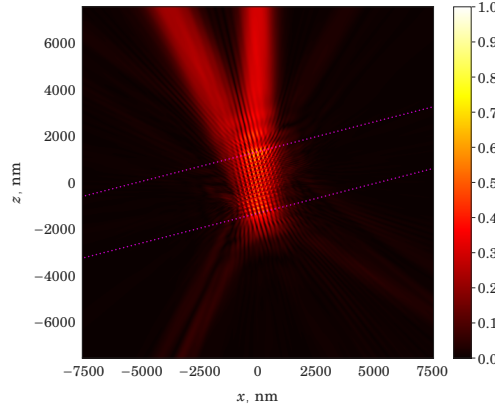
На 10а, 10б видна значительная разница между резонансным и нерезонансным случаем — рассеянное поле 10-ой гармоники четко ограничено, хорошо видно рассеяние в двух направлениях, соответствующих минус первому и первому порядкам дифракции (выр. 8), амплитуда поля превышает таковую в отсутствии резонанса более, чем в 10 раз, что соответствует условию Брэгга-Вульфа при найденном угле.



а: Рассеяние 10-ой гармоники, $\lambda_{10} = 83$ нм, $|\Delta d|_{\max} = 0.43\lambda_{10}$.



б: Рассеяние лазерной гармоники, $\lambda_L = 830$ нм, $|\Delta d|_{\max} = 0.43\lambda_{10}$.



в: Рассеяние 10-ой гармоники, $\lambda_{10} = 83$ нм, $|\Delta d|_{\max} = 0$.

Рис. 10: Рассеяние гауссова пучка ширины $w = 1700$ 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 $|\mathbf{E}_s|^2$ построена в плоскости поляризации падающей волны, нормирована на максимальную амплитуду в случае рассеяния 10 гармоники.

3.2.2 Направленная энергия в зависимости от нерегулярности расположения кластеров

Для того, чтобы определить, как нерегулярность расположения кластеров в слое влияет на количество излучения, отклоненного от направления падения, было смоделировано рассеяние на множествах кластеров с различными диапазонами нормы сдвига Δd в соответствии с выр. 12. Для получения энергетической характеристики, квадрат рассеянного поля был проинтегрирован на прямоугольной области с шириной w , соответствующей ширине падающего пучка, вне газового слоя в направлении минус первого дифракционного максимума θ (выр. 9).

$$E_{int}(p) = \frac{\int_{S_{\theta,w}} dS |\mathbf{E}_s|^2_{\Delta d \leq p}}{\int_{S_{\theta,w}} dS |\mathbf{E}_s|^2_{\Delta d = 0}}, \quad (9)$$

$$S_{\theta,w} = \left\{ x, y : x \tan \theta - \frac{w}{2 \cos \theta} \leq y \leq x \tan \theta + \frac{w}{2 \cos \theta}, y > x \tan \left(\theta + \frac{\pi}{2} \right) - \frac{F(a, d, e)}{2 \sin \theta} \right\}, \quad (10)$$

$$F(a, d, e) = 2a + d(e - 1),$$

где a — радиус одиночного кластера, d — среднее расстояние между центрами соседних кластеров, e — ширина газового слоя (в количестве кластеров). Интегрирование было проведено при помощи подсчета интегральных сумм с единичным шагом, то есть суммированием значений в области интегрирования. Полученный результат был нормирован на соответствующую интегральную характеристику в случае регулярной структуры расположения кластеров (рис. 10в).

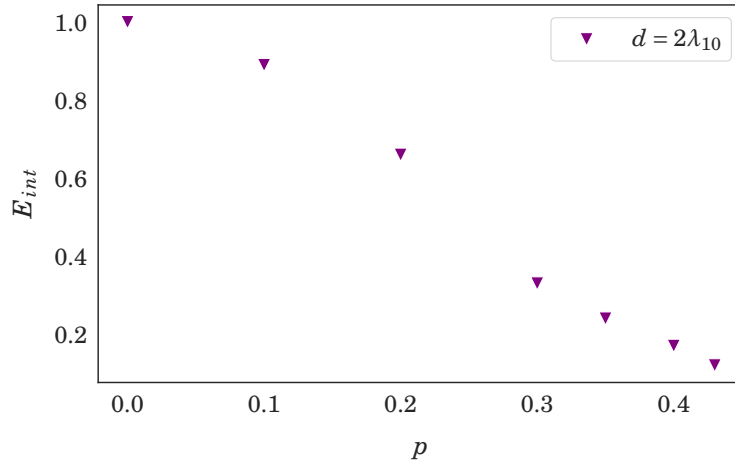


Рис. 11: Зависимость относительной характеристики выпр. 9 от нерегулярности p ; p в единицах длины волны падающего излучения λ .

4 Нестационарные вычисления

4.1 Рассеяние волны одиночным кластером

В моделировании был использован одномерный код LPIC++ [7] для исследования динамики электронов и эволюции распределения плотностей в одномерном плазменном слое.

В качестве источника был использован фронтальный ТЕ-поляризованный лазерный импульс с длиной волны $\lambda_{10} = 83$ нм и длительностью τ . Плазма представлена 200 частицами в каждой ячейке, занятой мишенью, электронная плотность в критических единицах равна $n_{el} = 4.4n_c$. В соответствии с условием относительная амплитуда импульса α_0 равна:

$$I_h \lambda_{10}^2 = \alpha_0^2 \times 1.37 \cdot 10^{18} \text{ Вт} \cdot \text{мкм}^2 / \text{см}^2 \quad (11)$$

$$\alpha_0 = \frac{\lambda_{10}}{\sqrt{1.37 \cdot 1 \text{ мкм}}} \approx 0.07$$

В качестве мишеней были взяты одиночные кластеры радиуса $a = 9, 20$ нм.

За время импульса мишень в обоих случаях разлетается слабо и электронная плотность в окрестности мишени остается в среднем постоянной (рис. 12).

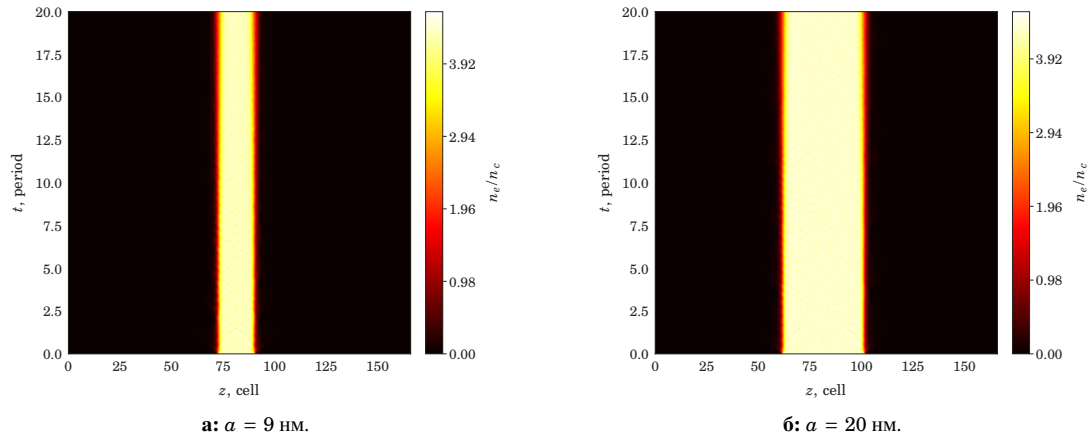


Рис. 12: Взаимодействие одномерной мишени с 10-ой гармоникой, $\lambda_{10} = 83$ нм.

4.2 Рассеяние волны газовым слоем

4.3 Рассеяние волнового пакета газовым слоем

Приложение

Случайный сдвиг кластера в пространственной решетке

Процесс вычисления сдвига для отдельного кластера описывается следующим образом:

$$\begin{aligned} P_0 &= (x_0, y_0, z_0) \\ \Delta_{xyz} &= (\Delta_x, \Delta_y, \Delta_z) = \text{rand.uniform}(-1, 1)_{size=3} \\ \Delta_{xyz} &= \text{rand.uniform}(0, |\Delta d|_{\max}) \frac{\Delta_{xyz}}{|\Delta_{xyz}|} \\ P_1 &= P_0 + \Delta_{xyz} \end{aligned} \tag{12}$$

Резонансная электронная плотность в первом приближении

В зависимости от нормированного радиуса сферического кластера $x = ka$ и порядка сферической гармоники n :

$$m^2(x, n) = \frac{8n^2(n+1) - (6n+3)x^2 + 6n}{2nx^2(2n-1)} \left[1 + \sqrt{1 - \frac{4n(n-3+4n^2(n+2))(x^2+4n-2)x^2}{(8n^2(n+1) - (6n+3)x^2 + 6n)^2}} \right] \tag{13}$$

$$\frac{n_e}{n_c} = (1 - m^2)(1 + i\beta_e) \tag{14}$$

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. Léczy 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.
- [7] R. E. W. Pfund, R. Lichters, and J. M. ter Vehn, “LPIC++ a parallel one-dimensional relativistic electromagnetic particle-in-cell code for simulating laser-plasma-interaction,” in *AIP Conference Proceedings*, AIP, 1998.