

Федеральное государственное бюджетное научное учреждение
«Федеральный исследовательский центр Институт прикладной
физики Российской академии наук»
(ИПФ РАН)

На правах рукописи

АЛЕКСАНДРОВ Леонид Николаевич

МЕХАНИЗМЫ ВОЗБУЖДЕНИЯ КВАЗИПОСТОЯННЫХ ТОКОВ,
ИНИЦИИРУЮЩИХ ГЕНЕРАЦИЮ ТЕРАГЕРЦОВОГО
ИЗЛУЧЕНИЯ ПРИ ВОЗДЕЙСТВИИ НА ГАЗЫ
ФЕМТОСЕКУНДНЫМИ ЛАЗЕРНЫМИ ИМПУЛЬСАМИ

Специальность: 1.3.19 лазерная физика

диссертация на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель:
к.ф.-м.н. М.Ю. Рябикин

Нижний Новгород

2021

Содержание

Введение.....	4
Глава 1. Генерация остаточных токов при ионизации атома в двухцветном лазерном поле	15
1.1 Оптические методы генерации терагерцовых импульсов.....	15
1.2 Описание формирования направленных фототоков в приближении сильного поля	26
1.3 Учет кулоновского взаимодействия	30
1.4 Численные расчеты	33
1.5 Экспериментальное исследование генерации терагерцового излучения при оптическом пробое воздуха в двухцветном лазерном поле.....	39
1.5.1 Описание экспериментальной установки и полученных результатов	39
1.5.2 Анализ экспериментальных данных	43
1.6 Зависимость эффективности генерации остаточных токов от частоты и поляризации лазерного излучения.....	48
1.6.1 Остаточные токи, возбуждаемые эллиптически поляризованным импульсом	48
1.6.2 Зависимость остаточных токов от частоты лазерного излучения	52
Глава 2. Генерация остаточных токов при ионизации молекулы фемтосекундным лазерным импульсом.....	56
2.1 Методы выстраивания и ориентации молекул в газе	57
2.1.1. Трансляционное упорядочение молекулярного ансамбля. Молекулярные пучки	58
2.1.2 Ориентирование в статическом электрическом поле.....	59
2.1.3 Выстраивание и ориентирование в сильном лазерном поле	63
2.2 Асимметричные молекулы в одноцветном лазерном поле	72
2.2.1 Ионизация асимметричной молекулы в сильном лазерном поле. Общие положения и постановка задачи	72
2.2.2 Численные расчеты	78
Глава 3. Использование генерации терагерцового излучения для зондирования вращательной динамики ансамбля молекул.....	88
3.1 Существующие методы зондирования упорядоченности молекулярного ансамбля.....	88
3.1.1 Фотодиссоциация и кулоновский взрыв.....	88

3.1.2	Генерация высоких гармоник	92
3.2	Зондирование вращательной динамики ансамбля молекул по терагерцовому отклику	96
3.2.1	Индукцируемая полем вращательная динамика молекул.....	98
3.2.2	Генерация остаточного тока ансамблем молекул с ненулевым дипольным моментом	102
3.2.3	Генерация остаточного тока ансамблем молекул с нулевым дипольным моментом	114
	Заключение	124
	Приложения	126
4.1	Детали численного интегрирования одноэлектронного уравнения Шредингера	126
4.2	Численные алгоритмы и методы.....	127
4.2.1	Метод операторного расщепления с использованием быстрого преобразования Фурье	127
4.2.2	Метод мнимого времени.....	128
4.2.3	Метод действительного времени.....	129
4.3	Системы единиц. Атомная система единиц.....	130
	Список литературы	131

Введение

Актуальность работы

Интерес к терагерцовому излучению (ТИ, $10^{11} - 10^{13}$ Гц) обусловлен возможностью его применения для идентификации веществ, биомедицинской диагностики, томографии, безопасности [34, 126] и других прикладных задач. В отличие от оптического излучения, ТИ позволяет осуществлять диагностику относительно низкоэнергетичных возбуждений в веществе, таких как молекулярное вращение, фононы, поляритоны, зарядовые и спиновые волны и тому подобное. В настоящее время активно применяются оптические способы генерации ТИ с использованием фемтосекундных лазерных импульсов. Генерируемое в таких схемах ТИ представляет собой импульс субпикосекундной длительности с временной зависимостью напряженности электрического поля, содержащей всего одну-две осцилляции, и обладает очень широким спектром. При соответствующих длительности лазерных импульсов и способе генерации полезный спектр ТИ может перекрывать диапазон частот от 100 ГГц до 100 ТГц [87].

Среди оптических способов генерации ТИ большой интерес представляют преобразователи на основе газа, ионизированного при помощи сфокусированных фемтосекундных лазерных импульсов. Интерес к ним обусловлен отсутствием в плазме фоновых линий поглощения, что позволяет получать ТИ с непрерывным спектром во всем терагерцовом диапазоне, и возможностью создания удаленных источника и детектора ТИ в атмосфере, что позволяет проводить дистанционные исследования различных объектов и атмосферы [93]. Как продемонстрировано в экспериментах, наилучшие результаты по генерации ТИ импульсов наблюдаются при использовании двухцветных оптических импульсов, содержащих излучение на основной (ω) и удвоенной (2ω) частотах [158]. Активные исследования двухцветной схемы генерации ведутся с 2000 г., когда были продемонстрированы высокая эффективность данной схемы

генерации и наличие оптимального фазового сдвига между излучением на частотах ω и 2ω [30]. К настоящему времени продемонстрирована высокая эффективность преобразования при использовании линейно поляризованных компонент лазерного импульса на частотах ω и 2ω с совпадающими плоскостями поляризации [149]. Кроме того, показано, что эффективность $(\omega+2\omega)$ схемы может быть увеличена за счет использования импульсов с эллиптической поляризацией [103].

Одно из первых детальных теоретико-экспериментальных исследований генерации ТИ в плазме, создаваемой сфокусированными двухчастотными оптическими импульсами, проведено в работе [78]. В [77, 78] была предложена модель генерации ТИ, основанная на рассмотрении возбуждения макроскопического остаточного электронного тока с использованием полуклассической модели ионизации. Эффективность генерации терагерцового излучения во многом определяется эффективностью возбуждения макроскопического остаточного тока.

В рамках данной диссертации детально изучаются физические механизмы, ответственные за возникновение квазистационарных макроскопических токов при оптическом пробое газов. Рассматриваются возможные альтернативные способы создания подобных фототоков и способы достижения высокой эффективности их генерации.

Исследование данных физических механизмов также затрагивает такие актуальные вопросы современной атомной, молекулярной и лазерной физики, как влияние кулоновских сил на процессы ионизации частиц в лазерных полях и особенности процессов лазерной ионизации частиц различного типа.

Также в рамках диссертации рассматривается возможное применение полученных результатов в актуальных задачах зондирования лазерно-индуцированных процессов в молекулярных газах.

Цель диссертационной работы

Целью диссертации является детальное теоретическое исследование физических механизмов, ответственных за процесс генерации терагерцового излучения при оптическом пробое газов фемтосекундными лазерными импульсами, и применение полученных результатов для решения актуальных проблем высокоэффективной генерации и использования терагерцового излучения.

В соответствии с обозначенной целью диссертации решались следующие задачи:

1. Теоретическое исследование, на примере модельных одночастичных задач, механизмов, ответственных за генерацию остаточных токов в среде при ионизации частиц среды лазерным импульсом, и выяснение основных закономерностей исследуемых процессов при различных условиях взаимодействия оптического излучения с газами. Разработка возможных экспериментальных схем для проверки полученных закономерностей.
2. Теоретическое исследование влияния свойств частиц газа на генерацию остаточных токов в газовой среде при оптическом пробое лазерным импульсом. Рассмотрение частиц с различной пространственной (модельные молекулярные системы) и энергетической структурой.

Структура и объем диссертации

Диссертация состоит из введения, трех глав, заключения, приложений и списка литературы из 160 наименования. Объем диссертации составляет 147 страницы, включая 47 рисунков.

Краткое содержание диссертации

Во **введении** формулируются актуальность и цели исследований, научная новизна, научная и практическая значимость, выносимые на защиту положения, сведения об апробации и достоверности полученных результатов и излагается краткое содержание диссертации.

В **первой главе** диссертации рассмотрено взаимодействие лазерных импульсов, содержащих излучение на основной и кратных частотах, с газовыми средами, процессы ионизации частиц в которых изотропны (атомы, невыстроенные молекулы). Исследуется влияние параметров лазерного излучения на процесс генерации остаточных токов и проводится сравнение с экспериментальными результатами.

В разделе 1.1 приводится краткий обзор методов генерации ультракоротких терагерцовых импульсов фемтосекундными лазерными импульсами.

В разделах 1.2-1.4 рассматривается процесс генерации остаточного тока лазерным импульсом, содержащим излучение на основной и удвоенной частоте. На основе численных квантовомеханических расчетов продемонстрировано, что оптимальная (с точки зрения эффективности оптико-терагерцовой конверсии) разность фаз между полем на основной и удвоенной частоте сильно зависит от интенсивности лазерного излучения. Предложено объяснение данного эффекта как следствия кулоновского взаимодействия отрываемого электрона с родительским ионом (раздел 1.3). Проведены расчеты в рамках полуклассической модели, подтверждающие важную роль кулоновского взаимодействия в процессе генерации направленных токов при лазерном пробое газа (раздел 1.4). Проведенные исследования позволили объяснить наблюдавшиеся ранее в экспериментах разногласия и определить границы применимости широко распространенной модели формирования остаточного тока, основанной на приближении сильного поля (раздел 1.2). В разделе 1.5 представлен результат совместного

с И.Е. Иляковым и Б.Н. Шишкиным (ИПФ РАН) эксперимента по генерации терагерцового излучения при оптическом пробое воздуха двухцветным лазерным излучением. На основе полученных в эксперименте данных построена зависимость оптимальной фазовой задержки между компонентами двухцветного импульса от интенсивности лазерного излучения. Показано, что результаты эксперимента с высокой степенью точности согласуются с теоретическими предсказаниями в области применимости использованного теоретического подхода.

В разделе 1.6 рассматриваются зависимости эффективности генерации остаточных токов от частоты и поляризации лазерного излучения. Продемонстрирована сильная зависимость от частоты лазерного излучения, связанная с энергетической структурой спектра частиц среды. Представлены расчеты с эллиптической поляризацией лазерного излучения, демонстрирующие отсутствие сильного влияния эффектов перерасеяния электронов на родительских ионах на процесс генерации остаточных токов.

Во **второй главе** исследовано взаимодействие одночастотного лазерного импульса с частицами газовой среды, обладающими асимметричным потенциалом вдоль выделенного направления.

В разделе 2.1 дается краткий обзор методов, позволяющих выстраивать и ориентировать молекулы в образце газовой среды. Такое угловое упорядочение молекул позволяет создать макроскопический ансамбль частиц, обладающий анизотропными свойствами, в частности, по отношению к процессу ионизации.

В разделе 2.2 проводится исследование возможности модификации процесса ионизации в длинном лазерном импульсе за счет асимметрии потенциала ионизируемой частицы. Исследовано влияние длительности, интенсивности и фазы заполнения импульса на величину возбуждаемого остаточного тока. Продемонстрировано, что использование молекул с асимметричным потенциалом позволяет повысить эффективность генерации

остаточного тока при любой длительности лазерного импульса по сравнению со случаем симметричных частиц, а значение тока не стремится к нулю даже в пределе монохроматического лазерного излучения. На основе полуклассических модельных расчетов показано, что ключевую роль в возникновении макроскопического направленного тока в ансамбле ориентированных асимметричных молекул играет кулоновское взаимодействие отрываемого электрона с родительским молекулярным ионом.

В **третьей главе** рассматривается возможность применения генерации низкочастотного излучения при взаимодействии лазерного излучения с полярными и неполярными молекулами для зондирования вращательной динамики молекулярного ансамбля.

В разделе 3.1 третьей главы дается обзор методов измерений упорядоченности молекулярного ансамбля. В разделе 3.2 исследуется возможность применения процесса генерации терагерцового излучения при оптическом пробое молекулярного газа для экспериментального зондирования степени ориентированности ансамбля асимметричных молекул и её динамики методом «накачка-зондирование». Также рассмотрена возможность расширения подхода, предложенного для полярных молекул, на случай исследования вращательной динамики ансамбля неполярных молекул.

В **заключении** сформулированы основные результаты работы.

В **приложениях** дается детальное описание использованных и разработанных диссертантом численных схем и алгоритмов.

Научная новизна диссертационной работы

1. Впервые на основе квантовомеханического и полуклассического рассмотрения показано, что оптимальный (с точки зрения эффективности оптико-терагерцовой конверсии) фазовый сдвиг между

полем на основной и удвоенной частоте при пробое газа двухцветным лазерным импульсом существенно зависит от интенсивности лазерного излучения. Предложена и осуществлена экспериментальная проверка полученной зависимости. Экспериментальные данные с очень высокой степенью точности согласуются с теорией в области применимости развитого в работе теоретического подхода.

2. На основе развитого аналитического подхода полученная зависимость оптимального сдвига между компонентами двухцветного поля от их интенсивности объяснена как результат конкуренции двух различных механизмов генерации остаточного тока, один из которых обусловлен действием лазерного поля на оторванный электрон, а второй – действием кулоновского потенциала родительского иона. Полученные результаты наглядно демонстрируют существенную роль кулоновского взаимодействия в процессе возбуждения направленного тока при оптическом пробое газа в широком интервале интенсивностей лазерного излучения.
3. Впервые теоретически продемонстрирована возможность генерации остаточного тока в длинном квазимонохроматическом лазерном импульсе за счет асимметрии потенциала ионизируемой частицы. В рамках выбранной модели найдены оптимальные условия, при которых преобразование оптического излучения в плазменные колебания происходит с высокой эффективностью.
4. Предложен новый полностью оптический метод измерения степени упорядоченности и вращательной динамики молекулярного ансамбля. В основе метода лежит измерение энергии терагерцового излучения, генерируемого в ходе ионизации интенсивным фемтосекундным импульсом ансамбля молекул, предварительно подвергнутых воздействию ориентирующего лазерного импульса.

5. Впервые теоретически обнаружено, что эффективность возбуждения направленного тока при оптическом пробое в газах является сложной функцией частоты лазерного излучения. Наблюдаемые максимумы и минимумы в зависимости величины генерируемого направленного тока от частоты лазерного излучения могут быть интерпретированы как проявление многофотонных резонансных внутриатомных переходов, инициируемых лазерным полем и резко изменяющих условия ионизации атома.

Научная и практическая значимость

Полученные в диссертационной работе результаты могут быть использованы для увеличения эффективности существующих и создания новых методов генерации электромагнитного излучения в терагерцовом диапазоне при оптическом пробое газов, а также для создания новых полностью оптических методов диагностики газов по терагерцовому отклику при нелинейной конверсии лазерного излучения в газе.

Помимо этого, полученные в работе результаты демонстрируют недостаточность приближения сильного поля, широко используемого при рассмотрении движения волновых пакетов электронов, отрываемых лазерным полем от атомов и молекул, для полного описания наблюдаемых в эксперименте закономерностей генерации терагерцового излучения при оптическом пробое газов. В то же время в рамках работы показано, что учет влияния кулоновских взаимодействий на движение электронов при лазерной ионизации газов позволяет существенно улучшить согласие с наблюдаемыми в экспериментальных работах зависимостями, а также предсказать принципиально новые физические эффекты, связанные с нарушением приближения сильного поля.

Основные положения, выносимые на защиту

1. При оптическом пробое газа двухцветным лазерным импульсом оптимальная с точки зрения эффективности генерации остаточных токов фазовая задержка между излучением на основной и удвоенной частоте монотонно зависит от интенсивности лазерного импульса. Эта зависимость, полученная на основе теоретического квантовомеханического и полуклассического рассмотрения, согласуется с экспериментальными данными в области применимости одночастичного теоретического рассмотрения.
2. Зависимость оптимального сдвига между компонентами двухцветного поля от их интенсивности является результатом конкуренции двух различных механизмов, один из которых обусловлен действием лазерного поля на оторванный электрон, а второй – действием кулоновского потенциала родительского иона. В области высоких интенсивностей лазерного излучения доминирует первый механизм, а в области низких интенсивностей – второй.
3. Взаимодействие отрываемого электрона с кулоновским потенциалом родительского иона при ионизации газа линейно-поляризованным квазимонохроматическим лазерным импульсом для частиц, обладающих асимметрией потенциала в направлении поляризации лазерного импульса, приводит к изменению динамики электронного волнового пакета и повышению эффективности генерации остаточного тока по сравнению со случаем симметричных частиц для любой длительности лазерного импульса.
4. Для частиц, обладающих ненулевым статическим дипольным моментом, эффективность генерации остаточных токов при взаимодействии с линейно поляризованным лазерным импульсом зависит от угла между дипольным моментом и направлением поляризации лазерного излучения. Данная зависимость позволяет

реализовать новый, полностью оптический, метод измерения степени упорядоченности и вращательной динамики молекулярного ансамбля.

Апробация работы

Основные результаты диссертации получены в ИПФ РАН и докладывались на научных семинарах и конкурсах молодых ученых института, а также на 19 научных конференциях (из них лично автором – на 14), в том числе: Пятой Всероссийской школе для студентов, аспирантов, молодых ученых и специалистов по лазерной физике и лазерным технологиям (Саров, 2011), международных конференциях «Research in Optical Sciences (NILAS/ICUSD/QIM)» (Берлин, Германия, 2012, 2014), научных школах «Нелинейные волны» (Нижний Новгород, 2012, 2016), международных симпозиумах «International Laser Physics Workshop» (LPHYS) (Прага, Чехия, 2013; София, Болгария, 2014; Казань, Россия, 2017), международных конференциях «International Conference on Multiphoton Processes» (ICOMP) (Шанхай, Китай, 2014; Будапешт, Венгрия, 2017), научных конференциях по радиофизике (ННГУ, Нижний Новгород, 2013, 2014, 2015, 2016), Нижегородских сессиях молодых ученых (Нижний Новгород, 2013, 2015), 5-й международной школе «Atoms and Plasmas in Super-Intense Laser Fields» (Эриче, Италия, 2013), 11-й международной конференции «Super-Intense Laser-Atom Physics» (SILAP) (Бордо, Франция, 2015), 7-м международном симпозиуме и школе для молодых ученых «Modern Problems of Laser Physics (MPLP-2016)» (Новосибирск, 2016).

Материалы диссертации опубликованы в 23 печатных работах, среди которых 4 статьи в рецензируемых журналах, 10 статей в сборниках трудов конференций и 9 тезисов докладов.

Достоверность полученных результатов

Исследования проводились на основе апробированных методов, применяемых в задачах ионизации в лазерном поле. Результаты теоретических исследований в рамках применяемых подходов с высокой степенью точности согласуются с экспериментальными данными, а в ряде предельных случаев – с известными теоретическими результатами других авторов. Результаты численных расчетов хорошо согласуются с качественными аналитическими выводами.

Личный вклад

Основные результаты диссертации получены лично автором, либо при его непосредственном участии. Постановка задач, обсуждение полученных результатов и подготовка к публикации проводилась совместно с научным руководителем и другими соавторами. Автор реализовал необходимые численные алгоритмы и физичечкие модели самостоятельно или совместно с М.Ю. Емелиным, а также выполнял численные расчеты. Помимо этого, автор являлся руководителем гранта РФФИ 14-02-31199 мол_а, в рамках которого проводилось экспериментальное исследование генерации терагерцового излучения при оптическом пробое воздуха в двухцветном лазерном поле.

Глава 1. Генерация остаточных токов при ионизации атома в двухцветном лазерном поле

1.1 Оптические методы генерации терагерцовых импульсов

Терагерцовый (ТГц) диапазон частот обычно определяется как охватывающий два порядка по частоте от 0,1 до 10 ТГц или от 3 до 300 см⁻¹ в терминах обратной длины волны. Данная часть электромагнитного спектра содержит спектроскопические сигнатуры для множества физических явлений, от вращательных переходов небольших молекул, представляющих интерес для астрономии [57], до ширины зоны в сверхпроводниках [51]. В течение последних двух десятилетий данная спектральная область получила повышенное внимание, и появилось большое количество работ. Тем не менее, исследования физических явлений, возникающих в ТГц регионе, начались более 110 лет назад, начиная с открытия Рубенсом [79] запрещенных зон в спектре ионных солей. Эти исследования привели к улучшению измерения излучения черного тела и непосредственно способствовали формулировке закона Планка. Интересный исторический обзор научных исследований дальней инфракрасной области спектра, проводившихся в прошлом веке, можно найти в работах [53, 79].

Прогресс в спектроскопии в ТГц диапазоне уже давно сдерживается отсутствием ярких источников и эффективных детекторов. Находящаяся между легкодоступным микроволновым диапазоном частот (< 100 ГГц) и диапазоном традиционных инфракрасных (ИК) частот (> 10 ТГц), ТГц область спектра часто описывается как «ТГц-провал». Хотя ограниченное число сильных источников, таких как газовые лазеры [26], стали доступны с 1970-х годов, по-настоящему этот разрыв только начали закрывать в течение последних двух десятилетий. На сегодняшний день доступно большое количество разнообразных перестраиваемых источников терагерцового излучения, таких как антенны на основе диода Шоттки [101], квантовые каскадные лазеры [80, 128], лампы обратной волны [82], р-германиевые

лазеры [9, 24], а также источники, основанные на других интересных методах [68]. Некоторые источники очень высокой средней мощности, такие как наносекундные газовые лазеры [102] и лазеры на свободных электронах [36], даже позволили провести первые исследования нелинейных эффектов в ТГц диапазоне [48].

Важный класс источников ТГц излучения опирается на преобразование частоты фемтосекундных лазеров для создания коротких импульсов когерентного ТГц излучения, что позволяет осуществлять спектроскопию с разрешением по времени (time-domain spectroscopy - TDS). В то время как генерация ТГц излучения с помощью нелинейного оптического преобразования частоты пикосекундных импульсов была продемонстрирована уже в начале 1970-х годов [104], ТГц TDS претерпела быстрое технологическое развитие в последнее время в связи с появлением в широком доступе фемтосекундных лазеров, в первую очередь твердотельных лазеров на основе кристаллов сапфира, допированных ионами титана. Использование фемтосекундных лазеров позволило достигнуть более высоких ТГц частот и эффективности преобразования, ранее недостижимой при использовании оптически управляемых источников ТГц излучения. На ранней стадии исследований были созданы два основных метода генерации ТГц электромагнитных импульсов с длительностью порядка пикосекунды на основе фемтосекундных лазерных источников, и они по-прежнему остаются наиболее широко используемыми – это методы, основанные на оптоэлектронных полупроводниковых коммутаторах [11, 41, 152] и оптическом выпрямлении [12]. Подробнее о применении коротких ТГц импульсов можно найти в [37, 43, 63, 64, 65, 88, 116, 135, 146, 147, 148].

Метод с использованием оптоэлектронных полупроводниковых коммутаторов впервые был введен Остоном в начале 1980-х годов [11]. В данном методе полупроводниковая структура (так называемый остоновский ключ), на которую подан потенциал смещения, подвергается воздействию

фемтосекундного лазерного импульса. Остоновский ключ состоит из полупроводникового материала с коротким временем жизни носителей (обычно GaAs или кремний на сапфире) и электродной структуры, состоящей из золота или алюминия, с зазором порядка 10 мкм. На электроды, как правило, подано напряжение в 10-50 Вольт, что приводит к напряженности электрического поля в коммутаторе в несколько кВ/см. Когда лазерный импульс воздействует на область между электродами, в полупроводнике создаются свободные носители и сразу же ускоряются полем смещения. Быстрое изменение поляризации P , индуцированной сверхбыстрым ускорением носителей, создает субпикосекундный когерентный электромагнитный импульс с напряженностью поля $E_{THZ} \propto d^2P/dt^2$. Данный импульс распространяется частично вдоль электродов и частично излучается в свободное пространство. Порядок величины излучаемой энергии ТГц импульса можно оценить из электростатической энергии, запасенной в коммутаторе. Эта запасенная энергия представляет собой общее количество энергии, доступной для распределения между кинетической энергией свободных носителей и энергией, уходящей на излучение, и тем самым ставит верхний предел для энергии генерируемого ТГц импульса. Для емкости 5 фемтофарад и напряжения смещения 50 В накопленная энергия составляет порядка 10 пикоджоулей [63]. Из измерений мощности с болометра или калиброванных пироэлектрических детекторов следует, что типичные энергии ТГц импульса, генерируемого от фотопроводящих антенн, составляют порядка 1-10 фДж, таким образом, только 0,1% от накопленной энергии переходит в ТГц излучение.

Частотная характеристика и эффективность генерации ТГц излучения с фотопроводящих переключателей в решающей степени зависят от длительности фемтосекундных лазерных импульсов, а также от выбора материалов. Время нарастания переходного тока определяется полем электрического смещения, приложенного к переключателю, длительностью

импульса фемтосекундного лазера и временем нарастания концентрации свободных носителей в материале. Очевидно, что полупроводниковый материал должен быть выбран таким образом, чтобы ширина запрещенной зоны была меньше энергии фотона лазерного излучения. В случае фемтосекундных лазеров на основе титан-сапфира с длиной волны 800 нм (1,55 эВ) наиболее подходящим материалом является арсенид галлия (GaAs) [52, 56, 99, 114] с шириной запрещенной зоны 1,42 эВ. Этот материал имеет быстрое время нарастания концентрации носителей и их высокую подвижность, что делает его отличным материалом для высокоэффективных фотопроводящих переключателей.

В последнее время также были разработаны ТГц излучатели, которые способны работать с фемтосекундными волоконными лазерами на длине волны 1.5 мкм [121]. В данном случае в качестве полупроводниковой структуры используются многослойные структуры на основе InGaAs / InAlAs.

Во всех оптоэлектронных полупроводниковых коммутаторах доступная полоса пропускания в ТГц области ограничена поглощением терагерцового излучения и его дисперсией в субстрате. Это, как правило, результат фоновых резонансов в полупроводниковом материале, таких как, например, фоновый резонанс 8,0 ТГц (268 см^{-1}) в арсениде галлия. За счет использования части ТГц импульса, которая излучается в свободное пространство с той же стороны подложки антенны, на которую падает лазерный импульс, эта проблема может быть частично решена, так как распространение через субстрат исключается [125].

Использование усиленных фемтосекундных импульсов позволяет реализовать схожий принцип генерации, но уже для зазоров между контактами антенны порядка 1 см и с увеличенным напряжением смещения до нескольких кВ. При энергии импульса накачки 4 мДж могут быть достигнуты ТГц электрические поля напряженностью до 36 кВ/см при

частоте повторения 250 кГц – см. [19]. В этих экспериментах достигнуто очень высокое отношение между энергиями ТГц и оптического импульсов – порядка 2×10^{-3} при плотности энергии оптического импульса около 20 мДж/см² и напряжении смещения в образце 100 кВ/см.

В целом фотопроводящие переключатели могут быть использованы для высокоэффективной генерации ТГц излучения, так как энергия ТГц импульса происходит от приложенного поля смещения. Это выгодно, по сравнению с остальными методами, при малых энергиях импульса накачки [98]. Сильное насыщение, однако, ограничивает масштабирование с увеличением энергии лазерного импульса. При высокой частоте повторения импульсов и низкой мощности лазерных систем можно получить эффективный источник ТГц импульсов с полосой частот менее 5 ТГц.

Другой широко используемый метод для генерации сверхкоротких ТГц импульсов - это метод оптического выпрямления фемтосекундных лазерных импульсов. Он был впервые продемонстрирован в кристаллах KDP в 1962 Бассом и др. [18] с использованием 100 нс импульсов от рубинового лазера с длиной волны в 694 нм. Генерация в дальнем инфракрасном диапазоне с помощью оптического выпрямления пикосекундных импульсов в LiNbO₃ была предсказана [104] и экспериментально продемонстрирована [150] еще в 1971 г. Оптическое выпрямление представляет собой нелинейный оптический процесс второго порядка, в котором происходит генерация разностной частоты между спектральными компонентами одиночного лазерного импульса в ходе распространения в нелинейном кристалле.

Недавно стехиометрический кристалл LiNbO₃ (sLN) стал широко используемым материалом для оптического выпрямления. В ниобате лития (LN) ТГц электромагнитные волны сильно связаны с полярными, "мягкими" оптическими фононами, играющими большую роль вблизи сегнетоэлектрического фазового перехода, и это порождает фоннопольритонные моды [17]. Поляризуемость этих мод способствует многим

характерным нелинейным оптическим свойствам ниобата лития. В дополнение к его большой эффективной нелинейности LN имеет гораздо более широкую запрещенную зону, чем у полупроводников, допускающую при 800-нм накачке только трехфотонное поглощение. Это позволяет использовать большие мощности накачки, необходимые для генерации ТГц импульса высокой энергии. Показатель преломления для ТГц волн в LN значительно больше, чем показатель для оптического излучения, и, следовательно, невозможно коллинеарное согласование скоростей. В объемном LN генерация однопериодного импульса ТГц излучения с высокой эффективностью преобразования может быть достигнута за счет использования так называемого наклонного фронта импульса накачки (tilted-pulse-front pumping - TPFP), впервые продемонстрированного в 2002 году для эффективной фазосогласованной генерации ТГц импульса в LN [60]. В данной методике генерируемое накачкой с наклонным фронтом ТГц излучение распространяется, в соответствии с принципом Гюйгенса, перпендикулярно по отношению к фронту волны накачки. Такой подход позволяет масштабировать пятно накачки и добиваться тем самым генерации ТГц импульсов высокой энергии. Для данного подхода на рисунке 1.1 приведено графическое сравнение достигнутых в последние годы экспериментальных результатов (взято из работы [63]). Прогресс в данной области продолжается и в настоящее время: максимальная достигнутая энергия терагерцового импульса с использованием данного подхода превышает 0.4 мДж [47]. Более подробное описание можно найти в работах [15, 21, 62, 97, 131, 132, 151, 152].

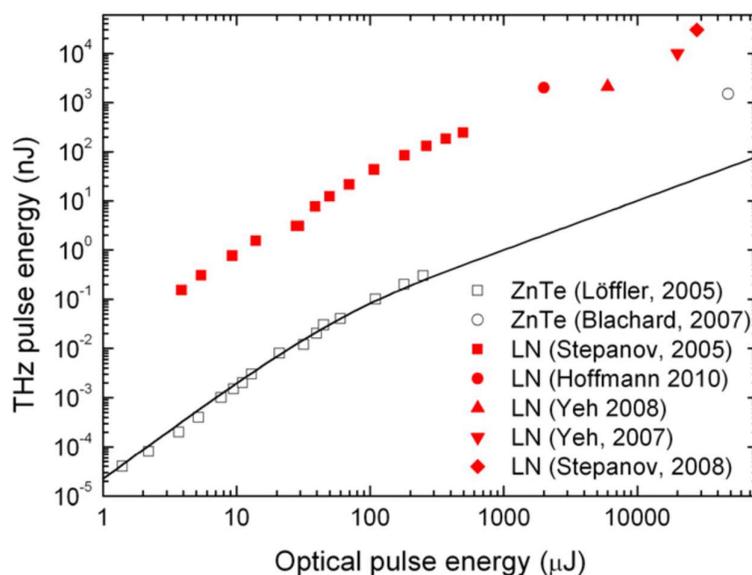


Рис. 1.1. Зависимость достигнутых энергий ТГц импульса от энергии импульса накачки для кристаллов ниобата лития (LN) и теллурида цинка (ZnTe). Рисунок взят из работы [63]. Данные из работ Löffler 2005 [97], Blachard 2007 [21], Stepanov 2005 [131], Hoffmann 2010 [62], Yeh 2008 [151], Yeh 2007 [152], Stepanov 2008 [132].

К недостаткам оптического выпрямления можно отнести тот факт, что ИК-активные оптические фононы приводят к поглощению и дисперсии генерируемого ТГц излучения. Как правило, вещества с высоким коэффициентом нелинейности имеют относительно большое поглощение в ТГц диапазоне, что может серьезно уменьшить энергию выходного ТГц излучения и ограничивает эффективную длину материала (несколько миллиметров или менее). Однако для LN продемонстрировано [59], что охлаждение до криогенных температур может значительно уменьшить коэффициент поглощения. С другой стороны, большее расстояние распространения внутри нелинейной среды приводит к тому, что в результате дисперсии в ТГц диапазоне генерируются растянутые во времени ТГц импульсы, которые имеют меньшее пиковое значение электрического поля. На данный момент на основе источников с использованием LN продемонстрировано получение ТГц электрических полей до 1 МВ/см [61].

Указанных недостатков частично лишены кристаллы органических солей, такие как DAST [58], OH1 [118], DSTMS [119], позволяющие генерировать более широкополосное ТГц излучение и достигать значений электрического поля порядка 80 МВ/см и энергий импульса субмиллиджоульного уровня [142, 143]. Однако максимальная эффективность преобразования достигается при длине волны накачки от 1.2 до 1.5 мкм. Более привлекательно выглядят органические кристаллы ВНА, позволяющие работать на 800 нм [124].

Также перспективным методом для получения сверхкоротких ТГц импульсов с высокой напряженностью поля при использовании фемтосекундных лазеров является генерация ТГц импульсов за счет нелинейных процессов в газовой плазме. Генерация ТГц излучения в плазме имеет те преимущества, что не существует порога разрушения для эмиттера, и доступная полоса пропускания ТГц импульсов по существу ограничена только длительностью возбуждающего лазерного импульса, так как такой эффект, как поглощение в материале из-за взаимодействия с оптическими фонами, в данном случае отсутствует. Более углубленное рассмотрение можно найти в работах [74, 137].

При взаимодействии фемтосекундного импульса с газами пороговая интенсивность, при которой начинается ионизация газа, составляет величину порядка ТВт/см². Созданная подобным излучением плазма генерирует широкий континуум когерентного и некогерентного излучения. Использование лазерной плазмы для генерации когерентного излучения дальнего ИК диапазона на ТГц частотах было впервые предложено и продемонстрировано в 1993 году [54] с помощью лазера тераваттного уровня. Значительное улучшение эффективности в рамках данного подхода было достигнуто в 2000 году Куком и его сотрудниками [30] путем совмещения фемтосекундных импульсов с двумя различными центральными частотами - ω и удвоенной частотой 2ω (так называемый двухцветный лазерный импульс) с интенсивностью, обеспечивающей оптический пробой

газа. Эффективность генерации при использовании данной схемы увеличилась на несколько порядков по сравнению с одноцветной схемой. В 2007 году Ким и др. [77] сообщили об оптическом КПД преобразования, превышающем 10^{-4} , и достигнутой энергии импульсов до 5 мкДж. Генерация сверхширокополосных ТГц импульсов, содержащих частоты до 100 ТГц, была продемонстрирована недавно Томсоном в работе [138] с использованием 19 фс лазерных импульсов и тщательно оптимизированных углов поворота кристалла ВВО при генерации второй гармоники.

В наиболее распространенной экспериментальной реализации с использованием 800 нм фемтосекундного лазерного импульса с энергией импульса порядка 0,5 мДж или более импульс накачки фокусируется сферической линзой в газовую мишень. Перед фокусом устанавливается нелинейный кристалл, генерирующий вторую гармонику (400 нм), как правило, бета-борат бария (β -ВВО). Двухцветный импульс осуществляет ионизацию газовой среды и возбуждение макроскопических токов в образующейся плазме. Так как процесс ионизации и, следовательно, генерации ТГц импульсов чувствителен к относительной фазе между основной и удвоенной частотами (данный эффект рассмотрен в деталях в рамках данной диссертации), регулировку осуществляют, как правило, либо путем смещения нелинейного кристалла, используя дисперсию газа, либо с помощью стеклянной пластины, осуществляющей фазовый сдвиг. При использовании двухцветных импульсов накачки продемонстрированы ТГц электрические поля с напряженностями более 4 МВ/см [29].

В качестве газовой мишени, как правило, используется либо окружающий воздух, либо чистый азот или инертный газ. Хотя удобно использовать воздух, поглощение паров воды снижает выход ТГц излучения. При использовании инертных газов с более высокими скоростями ионизации (Kr или Xe), эффективность генерации ТГц может быть значительно повышена [77]. Давление газа-мишени также сильно влияет на эффективность

генерации ТГц излучения. При низких энергиях импульса накачки (180 мкДж) был обнаружен линейный рост интенсивности ТГц излучения с ростом давления газа до 0,1 бар, и относительно постоянная интенсивность в диапазоне давлений 0,1-2 бар [137]. При дальнейшем увеличении давления сигнал резко падает из-за столкновений ускоренных электронов с молекулами. В случае энергии накачки порядка нескольких мДж насыщение наблюдалось при более высоких давлениях [77]. Систематическое изучение энергии выходного ТГц излучения и его спектрального состава в широком диапазоне энергий накачки (до 6 мДж) и давлений различных газов можно найти в работе [117].

Теоретическому и экспериментальному исследованию различных механизмов и режимов генерации ТГц излучения при воздействии на газы интенсивным двухцветным лазерным полем было посвящено большое количество работ – см., напр., [7, 8, 16, 20, 22, 23, 30, 73, 78, 86, 113, 117, 145]. При этом исследовалась роль как нелинейного отклика нейтральных частиц газа, так и процессов, связанных с их ионизацией. Одной из первых в ряду этих исследований была предложенная Куком и коллегами [30] пертурбативная модель на основе процесса четырехволнового смешения. Однако нелинейность третьего порядка, создаваемая либо связанными электронами, либо свободными электронами за счет пондеромоторных или тепловых эффектов, слишком мала, чтобы объяснить наблюдаемые сильные ТГц поля [86]. Кроме того, было отмечено существование пороговой интенсивности для генерации ТГц. Для того, чтобы учесть эти эффекты, была предложена полуклассическая модель фототока [78, 86, 117], где ТГц излучение описывается как результат возникновения однонаправленного движения электронов из-за нарушения симметрии ионизации в двухцветном лазерном поле. Для более детального описания процесса генерации ТГц излучения в рамках этого механизма сравнительно недавно была предложена двухступенчатая модель [50, 73, 127]. На первом этапе на основе решения

уравнения Шредингера рассматривается асимметричная ионизация газа лазерным излучением. Эта ионизация приводит к возбуждению макроскопических токов. На втором этапе аналитически описывается генерация низкочастотного излучения созданными фототоками из области пробоя. Оказывается, что эффективность генерации ТГц излучения во многом определяется эффективностью возбуждения макроскопических токов на первом этапе.

Полное рассмотрение распространения лазерного излучения в задаче о генерации ТГц излучения при оптическом пробое газов является достаточно сложным и требует учитывать такие эффекты, как плазменно-индуцированная фазовая модуляция и дефокусировка [14]. Как правило (см., напр., [20]), используется полуаналитический подход с использованием формулы Аммосова-Делоне-Крайнова (АДК) [157]. Однако, в таком подходе невозможно учесть высокочастотные компоненты нелинейного отклика среды, соответствующие генерации высокоэнергетичных фотонов, которые в свою очередь могут повлиять на процесс ионизации. Более полное описание генерации ТГц излучения в газовой плазме может быть получено при рассмотрении самосогласованного распространения фемтосекундного лазерного импульса в газовой среде и нелинейного отклика среды, полученного на основе интегрирования нестационарного уравнения Шредингера. На основе такого рассмотрения можно получить распределение макроскопических токов, которое может быть использовано в качестве начальных условий для электродинамической задачи о генерации плазменной областью низкочастотного излучения. Для решения данной задачи может быть применен стандартный FDTD метод (Finite-difference time-domain method).

1.2 Описание формирования направленных фототоков в приближении сильного поля

До недавнего времени считалось, что результаты лабораторных и численных экспериментов, реализующих вышеупомянутую схему генерации ТГц излучения при ионизации газов в двухцветном лазерном поле, хорошо описываются широко распространенной моделью фототоков [50, 77, 78], основанной на рассмотрении последующей после ионизации динамики электрона в поле лазерного импульса в так называемом приближении сильного поля (strong-field approximation, или SFA).

Суть описания явления возникновения направленных макроскопических токов в рамках этой модели можно пояснить на примере отрыва одного электрона. В основе модели фототоков, использующей приближение сильного поля, лежит предположение, что в момент ионизации скорость электрона равна нулю, и после отрыва электрона на его движение оказывает влияние только поле лазерного импульса, что справедливо для высоких интенсивностей лазерного излучения. В данном случае дрейфовая скорость электрона рассчитывается аналитически как

$$v_{dr} = - \int_{t_0}^{\infty} E(t) dt = A(t_0), \quad (1.1)$$

где t_0 – момент отрыва электрона, $E(t)$ – электрическое поле импульса, $A(t)$ – векторный потенциал (используются атомные единицы – см. ниже). Для простоты рассмотрим квазимонохроматический лазерный импульс (описываемый отрезком синусоиды: $E(t) = \sin(\omega t)$), тогда при указанном выше предположении о начальной скорости электрона его дрейфовая скорость будет равна

$$v_{dr} = -\cos(\omega t_0)/\omega. \quad (1.2)$$

Если момент ионизации соответствует экстремуму осциллирующего электрического поля, то электрон будет иметь только осцилляторную составляющую скорости, и после прохождения импульса остаточная

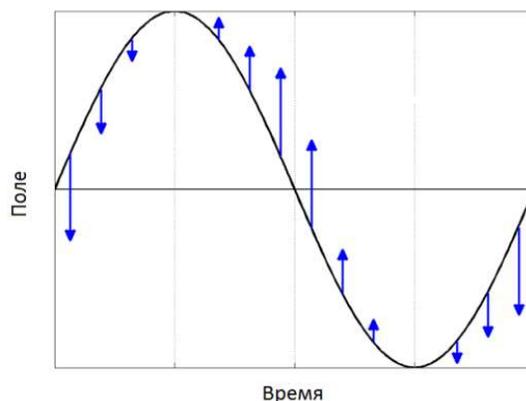


Рис. 1.2. Схематичная зависимость направления и величины дрейфовой скорости электрона от момента отрыва на периоде квазимонохроматического импульса.

скорость электрона окажется равной нулю. Если же момент ионизации сдвинут по фазе относительно максимума поля, электрон будет иметь дрейфовую составляющую скорости, которая сохранится после окончания действия импульса. На рисунке 1.2 стрелками схематично изображены направление и величина дрейфовой скорости электрона в зависимости от момента отрыва на периоде квазимонохроматического импульса.

Если среднее значение дрейфовых скоростей всех оторванных за время действия импульса электронов окажется отличным от нуля, то после прохождения импульса в среде будет наблюдаться макроскопический остаточный ток. Данный ток может приводить к генерации электромагнитного излучения, частота и эффективность возбуждения которого определяются геометрией системы, плотностью возникающей плазмы и величиной остаточного тока.

В случае симметричной ионизации в обе стороны электроны, оторванные с интервалом в полпериода поля, получают одинаковые по модулю и противоположные по знаку дрейфовые скорости. В результате средняя дрейфовая скорость всех электронов остается равной нулю. Одним из способов нарушения симметрии процесса ионизации на разных полупериодах является использование двухцветного лазерного импульса,

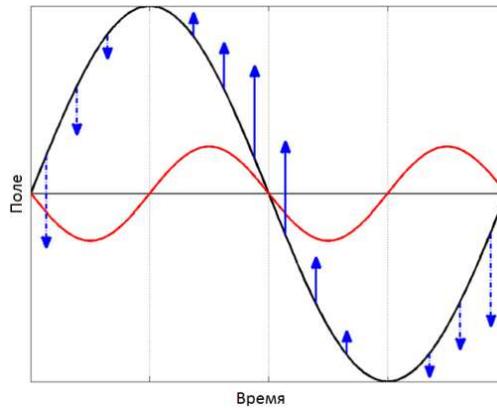


Рис. 1.3. Схематичная зависимость направления и величины дрейфовой скорости электрона от момента отрыва на периоде квазимонохроматического импульса при добавлении второй гармоники. Пунктирными стрелками показаны области подавленной ионизации при добавлении второй гармоники, сплошными – области усиленной ионизации.

состоящего из излучения на основной частоте (ω) и дополнительной компоненты поля на удвоенной частоте (2ω):

$$E(t) = E_1(t)\sin(\omega t) + E_2(t)\sin(2\omega t + \varphi). \quad (1.3)$$

Для простоты амплитуду лазерного излучения второй гармоники будем везде в дальнейшем считать значительно меньшей амплитуды поля на основной частоте. Основной эффект от добавления излучения на второй гармонике заключается в том, что данное излучение позволяет подавить или увеличить вероятность ионизации в различные моменты времени. При этом, если следовать описываемому здесь приближению SFA, наибольший остаточный ток генерируется, если поля на основной и удвоенной частоте складываются в фазе, при которой экстремумы поля основной гармоники совпадают с нулями поля второй гармоники (рисунок 1.3). Эта относительная фаза оптимальна для данной модели и, при записи поля в виде (1.3), она равна $\varphi = \pi/2$.

Из приведенного выше рассмотрения следует, что в рамках приближения сильного поля оптимальная относительная фаза не зависит от параметров лазерного излучения для квазимонохроматического импульса с добавкой второй гармоники. Однако в различных экспериментальных и теоретических

работах [32, 73, 154] наблюдались значительные отклонения от приведенного значения оптимальной фазы. Необходимо отметить, что прямое измерение относительной фазы в эксперименте весьма затруднительно, и наиболее точным методом на данный момент, по-видимому, является расчет относительной фазы по одновременному измерению выхода терагерцового излучения и рентгеновского излучения (возникающего в результате генерации высоких гармоник), так как процесс генерации высоких гармоник тоже зависит от относительной фазовой задержки между излучением на основной и удвоенной частоте [70].

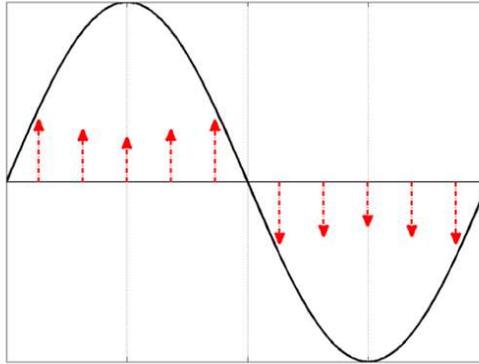


Рис. 1.4. Схематичное изображение направления и величины добавки к дрейфовой скорости электрона в результате кулоновского взаимодействия с родительским ионом в зависимости от момента отрыва на периоде квазимонохроматического импульса.

1.3 Учет кулоновского взаимодействия

Наблюдаемые различия в экспериментальных и теоретических результатах приводят к выводу, что представленная выше модель генерации фототоков недостаточно точна. Более того, она не учитывает некоторые фундаментальные эффекты, среди которых взаимодействие отрывающегося электрона с кулоновским потенциалом родительского иона. Кулоновский потенциал продолжает влиять на динамику электрона после отрыва, что приводит к дополнительным изменениям в дрейфовой скорости электрона. Направление добавочной дрейфовой скорости, получаемой вследствие взаимодействия отрывающегося электрона и родительского иона, определяется направлением отрыва электрона, и данные добавки к дрейфовой скорости направлены в противоположные стороны на разных полупериодах лазерного поля. На рисунке 1.4 схематично изображены добавочные дрейфовые скорости, приобретаемые электроном в результате кулоновского взаимодействия с родительским ионом в зависимости от момента отрыва.

Если теперь принять во внимание влияние кулоновского потенциала в схеме с использованием двухцветного лазерного поля, то можно ожидать, что, в зависимости от величины вклада полевого механизма (описанного в предыдущем подпункте) в остаточную дрейфовую скорость, оптимальный

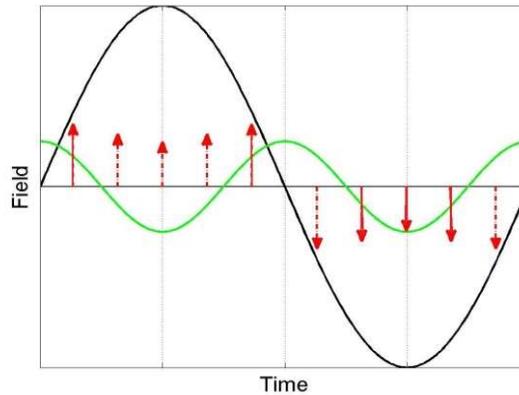


Рис. 1.5. Схематичное изображение направления и величины добавки к дрейфовой скорости электрона в результате кулоновского взаимодействия с родительским ионом при добавлении второй гармоники. Пунктирным стрелкам соответствуют области подавленной ионизации, сплошным – области усиленной ионизации.

сдвиг фазы второй гармоники может меняться. При достаточно слабых интенсивностях лазерного поля основной вклад в остаточную дрейфовую скорость должен определяться взаимодействием электрона с кулоновским потенциалом. При этом оптимальная фаза сложения полей будет соответствовать совпадению максимума поля на одном из полупериодов основной гармоники с максимумом поля второй гармоники ($\varphi = \pi$), что изображено на рисунке 1.5.

Назовем описанный выше механизм формирования остаточного тока кулоновским. С увеличением интенсивности лазерного излучения роль полевого механизма должна возрастать, и при достаточно высоких интенсивностях полевой механизм может стать доминирующим. Однако сразу отметим, что это справедливо для ситуаций, когда ионизация происходит на протяжении многих периодов лазерного импульса и вероятность ионизации в течение одного периода невелика. В противном случае (при высокой интенсивности лазерного импульса) ионизация будет смещаться на передний фронт лазерного импульса, и остаточный ток будет определяться также и профилем поля на фронте импульса. Но при таких

интенсивностях симметрия процесса ионизации нарушается и без использования бихроматического излучения.

1.4 Численные расчеты

Приведенные выше рассуждения могут быть сравнены с результатами численных расчетов. Ниже представлены исследования зависимости оптимального фазового сдвига между излучением на основной и второй гармониках от интенсивности лазерного излучения на основе как классических, так и полных квантовомеханических расчетов [5].

Квантовомеханические расчеты строились на основе решения нестационарного уравнения Шредингера для атома водорода методом операторного расщепления с использованием быстрого преобразования Фурье (более подробную информацию о численных моделях и применяемых алгоритмах можно найти в Приложениях). Уравнение Шредингера для одноэлектронного атома может быть представлено в виде:

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi(r, t) = \left[\frac{\hat{p}^2}{2} + A(t, \phi) \hat{p} + V(r) \right] \Psi(r, t). \quad (1.4)$$

Здесь и далее используется атомная система единиц (формальный переход можно осуществить, положив $m_e = e = \hbar = 1$). Для сокращения длительности расчетов значительная часть вычислений проводилась в рамках моделей пониженной размерности с использованием соответствующих модельных потенциалов. В представленном ниже случае в основном рассматривалось двумерное уравнение Шредингера с потенциалом вида

$$V(r) = \frac{1}{(0,49 + r^2)^{1/2}}. \quad (1.5)$$

Параметр сглаживания в потенциале выбирался таким образом, чтобы скорость ионизации при интенсивностях порядка $2 \cdot 10^{14}$ Вт/см² была той же, что и в трехмерном случае. Проводились также и трехмерные расчеты для более узкого набора значений параметров.

Форма и длительность лазерного импульса выбирались таким образом, чтобы исключить заметный вклад механизмов, отличных от обсуждаемого здесь, т.е. чтобы минимизировать генерацию остаточного тока в отсутствие излучения на второй гармонике при приемлемом времени расчета. Дело в

том, что в реальном некогерентном импульсе конечной длительности и достаточно высокой интенсивности могут возникать дополнительные вклады в генерацию остаточного тока по двум возможным причинам: асимметрия процесса ионизации может быть связана (1) с асимметрией электрического поля на соседних полупериодах и (2) с эффектом опустошения уровней (при достаточно сильной ионизации). Чтобы избежать этого, (1) необходимо задавать электрическое поле в виде антисимметричной функции относительно максимума огибающей (это соответствует нулевому значению электрического поля в максимуме огибающей), при этом (2) ионизация на одном периоде должна быть незначительной и не превышать нескольких процентов за весь импульс. Векторной потенциал, использовавшийся в расчетах, имел вид:

$$A(t, \varphi) = \begin{cases} A_0 \exp\left(-\ln(4) \left(\frac{4t}{\tau}\right)^2\right) \left(\sin(\omega t) + \frac{a}{2} \sin(2\omega t + \varphi)\right); & -\frac{\tau}{2} < t < \frac{\tau}{2} \\ 0; & |t| > \frac{\tau}{2} \end{cases} \quad (1.6)$$

Ширина огибающей векторного потенциала по полувысоте соответствовала 30 периодам поля на основной частоте. Длина волны основной гармоники соответствовала излучению лазера на кристалле сапфира, допированного ионами титана (800 нм). Интенсивность излучения варьировалась от 10^{12} до 10^{15} Вт/см². Отношение амплитуды поля на второй и основной гармониках, как правило, варьировалось от 0.001 до 0.1.

Остаточный ток, генерирующийся после импульса, может быть найден исходя из усредненного отклика [127]:

$$j_{res}(D, \tau, \varphi, A_0) = \int_{-\frac{\tau}{2}}^{\frac{\tau}{2}} \ddot{d}(t) dt = \int_{-\frac{\tau}{2}}^{\frac{\tau}{2}} [R(t) + E(t)] dt = \int_{-\frac{\tau}{2}}^{\frac{\tau}{2}} R(t) dt, \quad (1.7)$$

где нелинейная по полю компонента отклика $R(t)$ находится с использованием теоремы Эрэнфеста:

$$R(t) = \left\langle \Psi(x, t) \left| \frac{dV}{dx} \right| \Psi(x, t) \right\rangle. \quad (1.8)$$

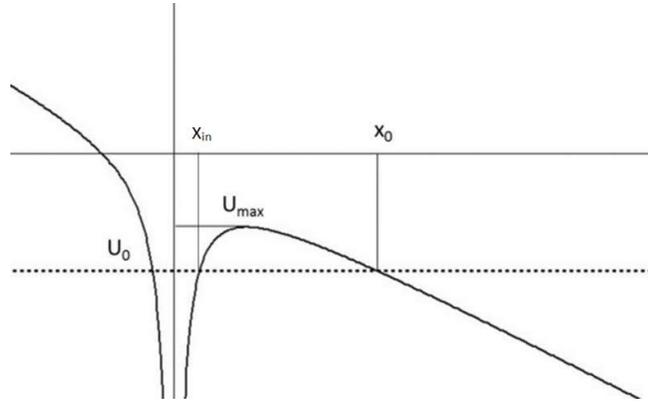


Рис. 1.6. Параметры, используемые в квазиклассических расчетах. Сплошной линией изображен суммарный потенциал взаимодействия атомарного электрона с кулоновским полем и однородным электрическим полем лазерного импульса.

В квазиклассической модели электроны после отрыва от родительского иона рассматривались как классические частицы. Их движение описывалось с помощью уравнений Ньютона при совместном учете электрического и кулоновского полей. Рассчитывалось движение электрона от момента отрыва (t_0) до первой остановки (t_1), после чего его дрейфовая скорость находилась как осцилляторная с обратным знаком:

$$V_{dr} = -A(t_1, \varphi) \quad (1.9)$$

В качестве ионизирующего импульса в квазиклассических расчетах использовался один период бихроматического поля. Для получения остаточного тока дрейфовые скорости электронов, оторванных в разные моменты времени, усреднялись с весами, пропорциональными вероятности ионизации атома в момент t_0 :

$$J(\varphi) = \frac{\int_0^{2\pi} V_{dr}(\varphi_0, \varphi) * W(\varphi_0, \varphi) d\varphi_0}{\int_0^{2\pi} W(\varphi_0, \varphi) d\varphi_0} \quad (1.10)$$

где $\varphi_0 = \omega t_0$.

В случае подбарьерной ионизации (начальная энергия электрона U_0 меньше энергии U_{max} , соответствующей вершине потенциального барьера – см. рис. 1.6) электрон считался стартующим с внешней стороны барьера с

нулевой скоростью. Начальная координата x_0 соответствовала точке, где значение суммарного потенциала равняется энергии основного состояния.

Для учета немгновенности процесса считалось, что электрон начинает движение с задержкой, пропорциональной подбарьерному интегралу

$$\Delta t = S_{ub}/S_0; S_{ub} = \int_{x_{in}}^{x_0} [U(x) - U_0] dx. \quad (1.11)$$

Величина $S_0 = 0,08885245$ – это величина подбарьерного интеграла, при которой временная задержка при интенсивности $I=10^{14}$ Вт/см² равна единице в атомной системе единиц [134].

В случае надбарьерной ионизации ($U_0 > U_{max}$) считалось, что электрон начинает движение с точки, соответствующей вершине барьера. Начальная скорость находилась из запасенной энергии электрона (разница между невозмущенной энергией основного состояния и значением потенциала в вершине барьера). Эта скорость направлена против поля и равна:

$$V_0 = \sqrt{2(U_0 - U_{max})} \quad (1.12)$$

Вероятность ионизации в единицу времени в многофотонном случае (параметр Келдыша больше единицы) находилась из формулы, полученной на основе работы Переломова-Попова-Терентьева [160]:

$$W(\varphi_0, \varphi) = \frac{4}{E(\varphi_0, \varphi)} \exp\left(-\frac{2}{\omega(\log\left(\frac{2\omega}{E(\varphi_0, \varphi)}\right) - 0.5)}\right) \quad (1.13)$$

В случае туннельного режима (параметр Келдыша меньше единицы) использовалась формула Тонга-Лина, обобщающая формулу Келдыша на более широкий диапазон напряженностей электрического поля [139]:

$$W(\varphi_0, \varphi) = \frac{4}{E(\varphi_0, \varphi)} \exp\left(-\frac{2}{3E(\varphi_0, \varphi)}\right) \exp\left(-\frac{6E(\varphi_0, \varphi)}{U_0}\right) \quad (1.14)$$

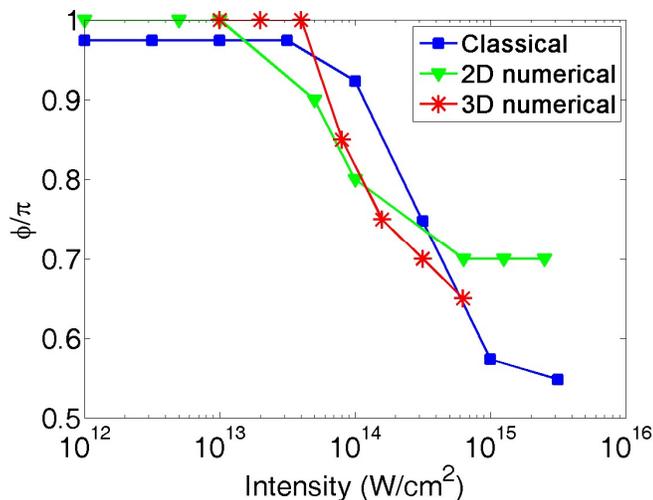


Рис. 1.7. Зависимость оптимальной фазы второй гармоники от интенсивности лазерного излучения, полученная в квантовомеханических (двумерном и трехмерном) и классическом расчетах.

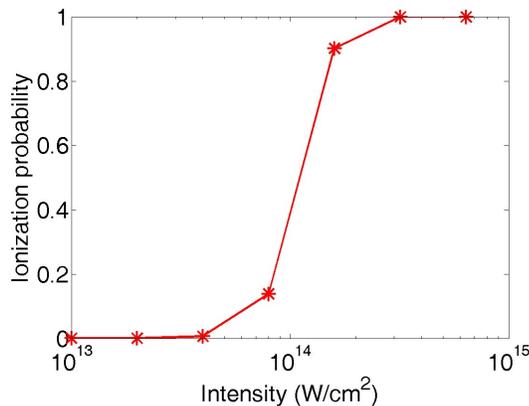


Рис. 1.8. Зависимость вероятности ионизации за время импульса от интенсивности лазерного излучения, полученная в трехмерном квантовомеханическом расчете.

На рисунке 1.7 приведены результаты расчета оптимальной фазы второй гармоники в зависимости от интенсивности лазерного излучения для отношения амплитуды поля на второй и основной гармониках, равного 1 к 100. Данная зависимость является результатом конкуренции двух вышеописанных механизмов генерации остаточного тока, один из которых обусловлен действием лазерного поля на оторванный электрон, а второй – действием кулоновского потенциала родительского иона. В области высоких

интенсивностей лазерного излучения доминирует первый механизм, а в области низких интенсивностей – второй.

Разногласие между различными кривыми на рис. 1.7 в области высоких интенсивностей может быть объяснено, если рассмотреть зависимость вероятности ионизации от интенсивности лазерного излучения. Данная зависимость, полученная в 3D квантовомеханическом расчете, приведена на рисунке 1.8.

Из этой зависимости видно, что при интенсивности лазерного излучения выше 3×10^{14} Вт/см² атом полностью ионизируется за время импульса. Соответственно, процесс ионизации переносится на передний фронт импульса, что не учитывается в квазиклассическом рассмотрении. Добавим также, что генерация остаточного тока в таких условиях может определяться не столько рассмотренными выше механизмами, сколько асимметрией соседних полупериодов поля, определяемой формой огибающей импульса.

1.5 Экспериментальное исследование генерации терагерцового излучения при оптическом пробое воздуха в двухцветном лазерном поле

1.5.1 Описание экспериментальной установки и полученных результатов

Для проверки полученных теоретических зависимостей были проведены экспериментальные исследования совместно с лабораторией нелинейной спектроскопии ИПФ РАН [159]. Схема экспериментальной установки приведена на рисунке 1.9.

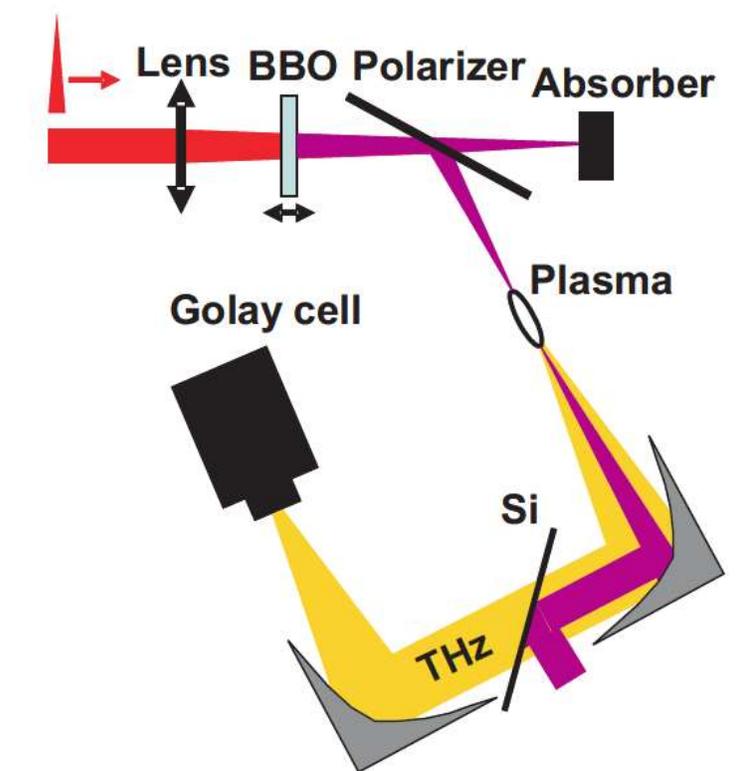


Рис. 1.9. Схема экспериментальной установки.

Фемтосекундный лазерный импульс с центральной длиной волны 800 нм (длительность варьировалась от 50 до 127 фс) фокусировался при помощи сферической линзы в воздухе. Для генерации второй гармоники использовался кристалл ВВО II толщиной 100 мкм. Оптические импульсы

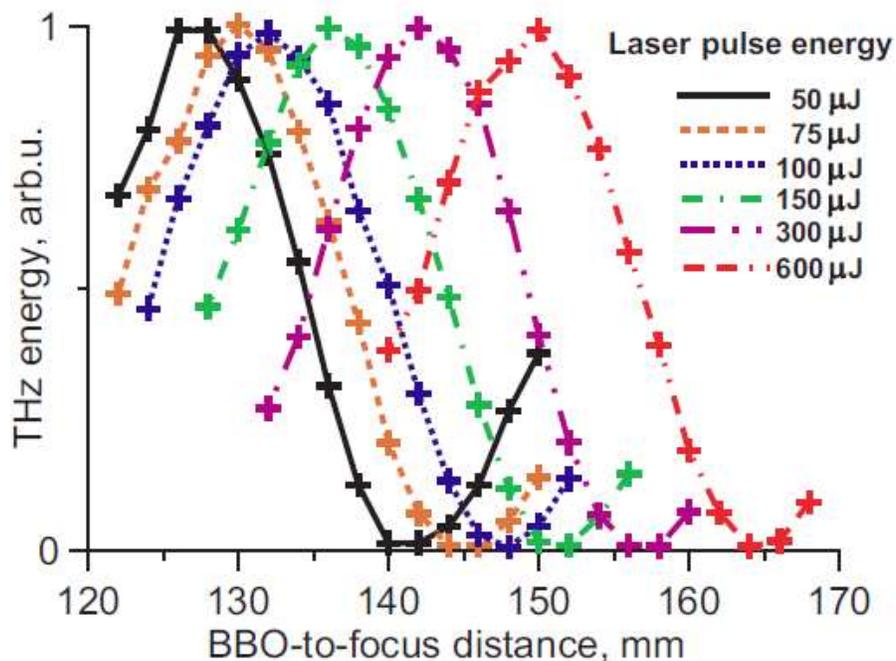


Рис. 1.10. Масштабированная зависимость выхода терагерцового излучения от положения нелинейного кристалла для различных энергий лазерного импульса.

после нелинейного кристалла направлялись на пленочный поляризатор. Изначальные ориентации поляризации импульсов с $\lambda=800$ нм и нелинейного кристалла были такими, что на поляризатор падало вертикально поляризованное излучение на длине волны 400 нм и эллиптически поляризованное излучение на длине волны 800 нм. Излучение на второй гармонике частично отражалось от поляризатора, частично проходило сквозь него. Вертикально поляризованная компонента излучения на основной длине волны отражалась полностью, а горизонтально поляризованная часть проходила сквозь поляризатор. В результате в генерации терагерцового излучения участвовали вертикально поляризованные импульсы на основной и удвоенной частотах. Линейность поляризации и совпадение плоскостей поляризации излучения в данном эксперименте позволяют существенно упростить теоретическую трактовку получаемых результатов.

В области фокуса линзы происходил лазерный пробой воздуха, и полученное в искре терагерцовое излучение собиралось сферическим

зеркалом на детекторе. Оптическое излучение отсекалось фильтром. Для расширения рабочего диапазона интенсивностей оптических импульсов использовались линзы с разными фокусными расстояниями, а именно 15, 20 и 30 сантиметров.

Так как воздух обладает дисперсией, фазовый сдвиг между излучением на основной и удвоенной частотах зависит от длины трассы между нелинейным кристаллом и лазерной искрой. Таким образом, в эксперименте промерялась зависимость выхода терагерцового излучения от положения нелинейного кристалла при различных энергиях лазерного импульса. Полученные зависимости (рисунок 1.10) имеют характерную периодическую форму. Видно, что с ростом энергии оптических импульсов происходит монотонный сдвиг периодической зависимости в направлении искры. На рисунке 1.11а представлены измеренные величины таких сдвигов при различных энергиях и фокусных расстояниях линз. Измерялись положения нелинейного кристалла, соответствующие локальному минимуму энергии терагерцового излучения («неоптимальному» сдвигу фаз, смещенному относительно оптимального на $\pi/2 \pm \pi N$, где N – целое число), ввиду того, что они определяются точнее, чем положения, соответствующие максимуму.

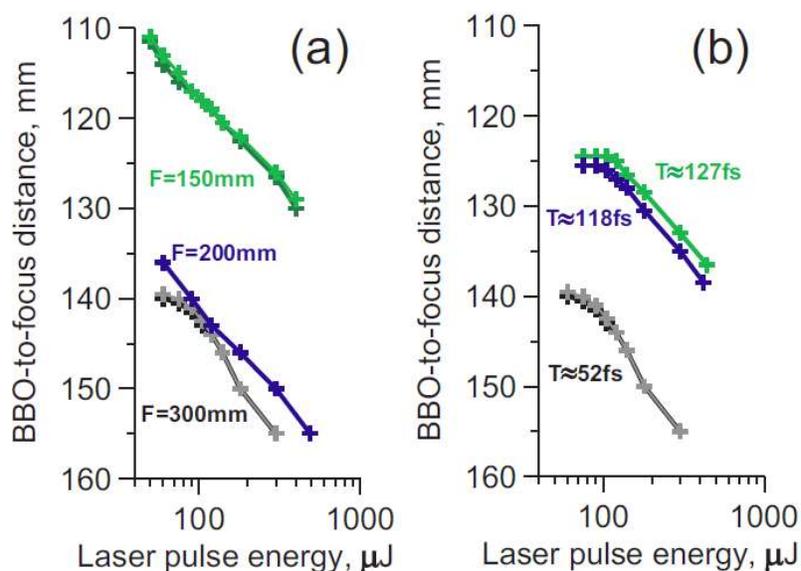


Рис. 1.11. Зависимость «неоптимального» положения нелинейного кристалла от энергии лазерного импульса (а) для длительности лазерного импульса, равной 52 фс, и различных фокусных расстояний линзы; (б) для фокусного расстояния линзы, равного 300 мм, и различных длительностей импульса.

Ограничения по значениям энергии лазерных импульсов в представленных измерениях определялись чувствительностью системы регистрации терагерцового излучения при низких энергиях и доступной энергией лазерных импульсов при высоких энергиях. Как следует из приведенных выше соображений, измерения с линзой с $F = 300$ мм дают информацию о сдвиге фаз при наименьших интенсивностях. Из результатов этих измерений видно, что при низких энергиях оптических импульсов наблюдается небольшой «загиб» в монотонной зависимости «неоптимального» сдвига фаз, что соответствует теоретическим предсказаниям, приведенным в предыдущем параграфе. Для дальнейших исследований в области низких интенсивностей длительность оптического импульса была увеличена путем введения отрицательного chirpa. Из приведенных на рисунке 1.11б данных видно, что в результате подстройки длительности импульса «загиб» в области низких энергий стал более выраженным.

1.5.2 Анализ экспериментальных данных

Для анализа полученных результатов была проведена серия квантовомеханических трехмерных численных расчетов. В отличие от расчетов, проведенных ранее, использовалось переменное соотношение интенсивностей компонент двухцветного лазерного импульса: интенсивность поля на второй гармонике в искре рассчитывалась по формуле $I_2 = 3.287 \times 10^{-16} I_1^2$, где все интенсивности измеряются в Вт/см². Коэффициент в данной формуле был получен на основе экспериментальных данных по преобразованию лазерного излучения во вторую гармонику в нелинейном кристалле для линзы с фокусным расстоянием 300 мм с учетом положения нелинейного кристалла в ходе эксперимента. Согласно приведенной формуле отношение интенсивностей I_2/I_1 плавно изменялось от 3.287×10^{-3} до 0.207 при изменении интенсивности от 10^{13} до 6.3×10^{14} Вт/см². Использование в численных расчетах переменного соотношения интенсивностей позволило приблизить теоретическую постановку задачи к условиям эксперимента. В остальном параметры численного моделирования аналогичны приведенным в предыдущем параграфе. Расчеты проводились для атома водорода в поле двухцветного лазерного импульса длительностью 80 фс. Расчеты для атомарного водорода вместо смеси молекулярных газов, присутствующих в воздухе, позволяют существенно снизить требования к численным ресурсам, сохранив критичные параметры задачи (в частности, изотропность и скорость ионизации среды) близкими к экспериментальным условиям.

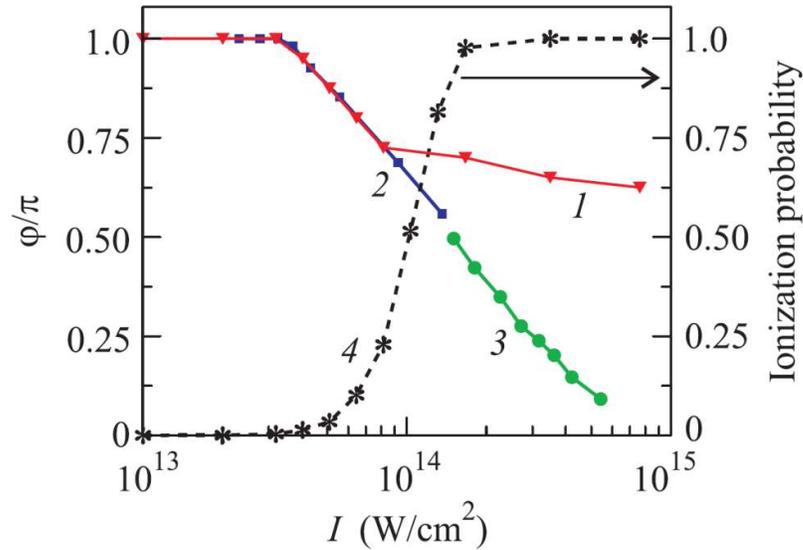


Рис. 1.12. Зависимости оптимальной фазы второй гармоники и вероятности ионизации от интенсивности лазерного излучения из трехмерных квантовых расчетов (кривые 1 и 4) и экспериментальные зависимости оптимальной фазы второй гармоники (кривые 2 и 3), см. подробности в тексте.

На рисунке 1.12 приведена зависимость оптимальной фазы второй гармоники от полной интенсивности лазерного излучения, полученная в результате численных расчетов, а также аналогичная зависимость, полученная из экспериментальных данных для линзы с фокусным расстоянием 300 мм и лазерного импульса длительностью 127 фс. При пересчете экспериментальных данных в оси интенсивности и фазы предполагалось, что лазерный импульс имеет гауссову форму, как в поперечном сечении, так и во времени, диаметр фокальной перетяжки совпадает с вакуумным значением (≈ 43.65 мкм), а вторая гармоника лазерного излучения отстает на полпериода при прохождении трассы ≈ 27 мм в воздухе [81]. Так как абсолютное значение фазы ϕ в эксперименте не измерялось, то существует произвол в выборе точки отсчета для экспериментальной кривой по оси фазы. Для определенности предполагалось, что в области низких интенсивностей кривая начинается со значения $\phi = \pi$ в соответствии с теорией, представленной в предыдущем

параграфе. Привязка к теоретическому значению именно в области низких интенсивностей оправдана тем, что при низких интенсивностях лазерного излучения эффективный объем области генерации терагерцового излучения стремится к нулю. Таким образом, коллективные эффекты, которые в теории не учитывались, играют минимальную роль, а значит, именно в этой области теория и эксперимент должны согласовываться лучше всего. Отметим также, что предел низких интенсивностей соответствует случаю отсутствия ионизации. В этом случае основным механизмом генерации терагерцового излучения является четырехволновое смешение на связанных электронах, для которого $\varphi=0$ или π [30, 100].

Как видно из рисунка 1.12, теоретическая и экспериментальная кривые практически идеально согласуются вплоть до интенсивностей лазерного излучения порядка 10^{14} Вт/см². При более высоких значениях интенсивности, как упоминалось ранее, оптимальная фаза должна определяться формой переднего фронта лазерного импульса, а при слабой ионизации стремится к значению $\varphi = \pi/2$, предсказываемому предложенной в [78] фотоионизационной моделью. На рисунке 1.12 рассчитанная численно зависимость оптимальной фазы от интенсивности оптического импульса также плавно стремится к $\varphi = \pi/2$, но не достигает данного значения. Экспериментальная же зависимость с ростом интенсивности лазерного излучения не ограничивается снизу значением $\varphi = \pi/2$, а продолжает монотонно спадать. Более того, если добавить экспериментальные данные, полученные при использовании линзы с фокусным расстоянием 150 мм и нерастянутого импульса и пересчитанные в оси интенсивности и фазы по тем же правилам (линия 3 на рисунке 1.12), то становится видно, что изменение оптимального фазового сдвига превышает предсказанную теоретически величину в $\pi/2$ и насыщения в высокоинтенсивной области не наблюдается.

Расхождение между теоретической и экспериментальной зависимостями

может быть объяснено, если принять во внимание зависимость вероятности ионизации атома от интенсивности лазерного излучения, полученную в результате численного моделирования (линия 4 на рисунке 1.12). Видно, что расхождение кривых для оптимальной фазы начинается при интенсивности, соответствующей вероятности ионизации более 25%. Высокий уровень ионизации газа означает возникновение ряда факторов, которые не были учтены в теоретических расчетах. В частности, наблюдается ионизационная дефокусировка пучка, приводящая к изменению геометрии распространения лазерного импульса и распределения энергии лазерного излучения в пространстве. Кроме того, так как с ростом мощности лазерного излучения растет объем искры, существенную роль начинает играть процесс распространения лазерного излучения в плазме. В частности, важным фактором может являться фазовая самомодуляция фемтосекундных лазерных импульсов. Например, в эксперименте [3] было продемонстрировано, что лазерный импульс длительностью 70 фс с энергией 3 мДж в результате фокусировки в аргоне может чирпироваться (величина спектрального фазового коэффициента второго порядка изменяется на -600 фс^2) и испытывать самокомпрессию до 10 фс. Из рисунка 1.11б также видно, что даже в области низких интенсивностей небольшое изменение чирпа лазерного импульса (дающее удлинение импульса от 118 до 127 фс) приводит к смещению “неоптимального” положения кристалла ВВО.

Таким образом, в результате распространения лазерного излучения в плазме фазовый сдвиг между компонентами двухцветного лазерного импульса, усредненный по всей длине искры, может весьма сложным образом зависеть от положения кристалла ВВО. Более того, рост искры в воздухе с ростом мощности лазерного излучения приводит к неоднородности условий генерации терагерцового излучения в объеме плазмы, а значит, взаимодействие уже не может быть описано в терминах однородных по всему объему интенсивности лазерного излучения и фазового сдвига. Кроме

этого, объем создаваемой плазмы и области генерации начинает существенно превышать длину волны генерируемого терагерцового излучения. В данном случае для корректного решения задачи необходимо учитывать коллективные эффекты в процессе распространения генерируемого ТИ в среде с источниками.

В силу перечисленных выше факторов можно утверждать, что произведенный выше пересчет экспериментальных зависимостей в оси интенсивности и фазы корректен лишь для диапазона интенсивностей с небольшим уровнем ионизации газа. Отметим, однако, что в этом диапазоне оптимальная фаза изменяется весьма существенно (более чем на 0.3π), и ее поведение в зависимости от интенсивности лазерного импульса согласуется с результатами другой исследовательской группы (из Оборонного научно-технического университета НОАК, г. Чанша, Китай) [27, 155]. При более высоких энергиях импульсов и рассчитанная интенсивность, и фаза требуют существенных корректировок, выходящих за рамки используемого здесь теоретического подхода.

1.6 Зависимость эффективности генерации остаточных токов от частоты и поляризации лазерного излучения

1.6.1 Остаточные токи, возбуждаемые эллиптически поляризованным импульсом

В работах [100, 155] в качестве механизма, ответственного за изменение оптимальной фазы второй гармоники при изменении интенсивности лазерного излучения, указывается механизм, связанный с перерасеянием [31, 111] оторванного электрона на родительском ионе. Однако проведенное рассмотрение основано на анализе классических траекторий в одномерной модели, которая в данном случае не является вполне адекватной, так как не учитывает эффектов, связанных с возможным наличием у электрона поперечной скорости – например, в случае эллиптической поляризации лазерного поля. Для анализа роли процессов перерасеяния в рамках данной диссертации была рассмотрена генерация остаточного тока в лазерных импульсах с различной поляризацией. На примере генерации высоких гармоник [38, 133] известно, что даже незначительное увеличение эллиптичности лазерного поля приводит к резкому падению выхода высоких гармоник. Связано это с тем, что в эллиптически поляризованном поле траектория электронного волнового отклоняется от прямой линии, и столкновение испытывает лишь периферийная часть волнового пакета. Предположим, что перерасеяние электронов вносит значительный вклад в процесс генерации остаточного тока. Тогда можно ожидать изменения величины остаточного тока, причем весьма значительного, при изменении эллиптичности лазерного поля. То же самое можно сказать и про значения оптимальной фазы для различных интенсивностей лазерного импульса.

Для проведения численного эксперимента на основе квантовомеханических расчетов в качестве потенциала родительского иона использовался двумерный потенциал, формула для которого приведена в

пункте 1.4. Эллиптичность лазерного импульса изменялась от 0 (линейная поляризация) до 0.5.

Как правило, при изменении эллиптичности в таком диапазоне выход высоких гармоник меняется на порядки [38]. Дальнейшее увеличение эллиптичности импульса будет приводить к значительному искривлению электронных траекторий в поле родительского иона, что, если учесть вклад кулоновского взаимодействия, может повлиять на направление и значение генерируемых остаточных токов. На рисунке 1.13 приведены зависимости остаточного тока от эллиптичности лазерного излучения и относительного фазового сдвига второй гармоники для различных интенсивностей. Анализ этих результатов показывает отсутствие резкого уменьшения остаточного тока и заметного изменения оптимального фазового сдвига от эллиптичности лазерного излучения. Наблюдаемые вариации тока, по-видимому, связаны с некоторыми искажениями траекторий электронов в потенциале родительского иона и, как следствие, изменением вклада от кулоновского механизма.

Необходимо отметить, что полученные результаты согласуются с различными экспериментальными данными. Например, в работе [103] проводилось экспериментальное сравнение эффективности генерации терагерцового излучения для линейно и циркулярно поляризованного двухцветного лазерного импульса. В обоих случаях измерялся выход терагерцового излучения в зависимости от относительной фазовой задержки между излучением на основной и удвоенной частотах. Представленные в работе экспериментальные результаты свидетельствуют о том, что увеличение эллиптичности лазерного излучения не приводит к значительному уменьшению остаточного тока и даже может увеличивать его, а значение оптимальной фазовой задержки не зависит от поляризации лазерного импульса. Представленные в [103] экспериментальные результаты согласуются с приведенными выше результатами теоретических расчетов.

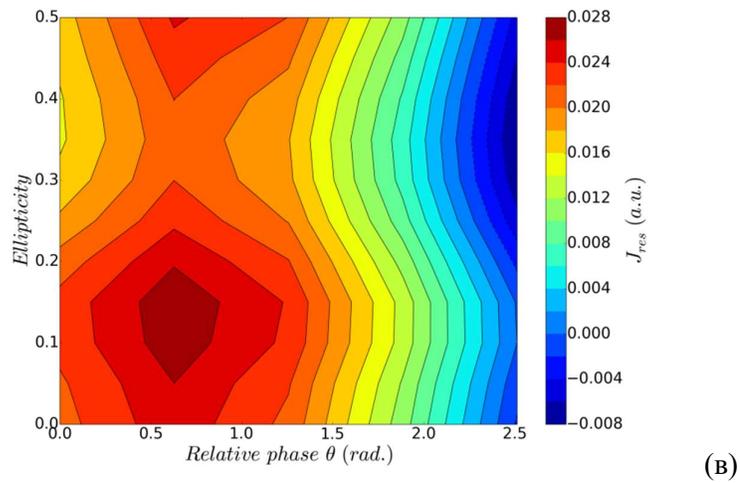
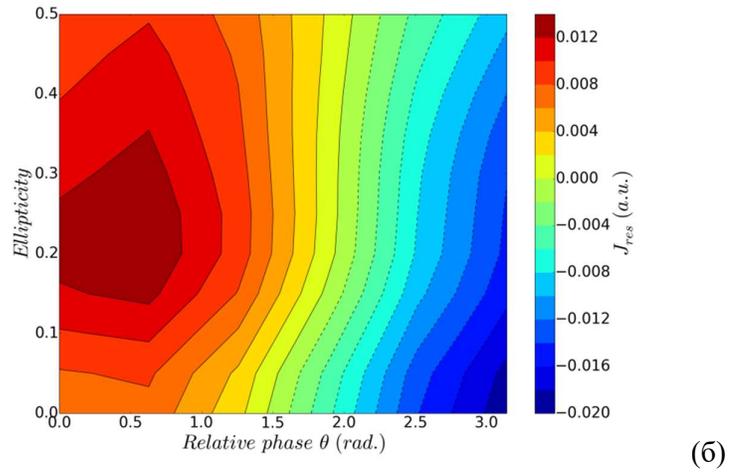
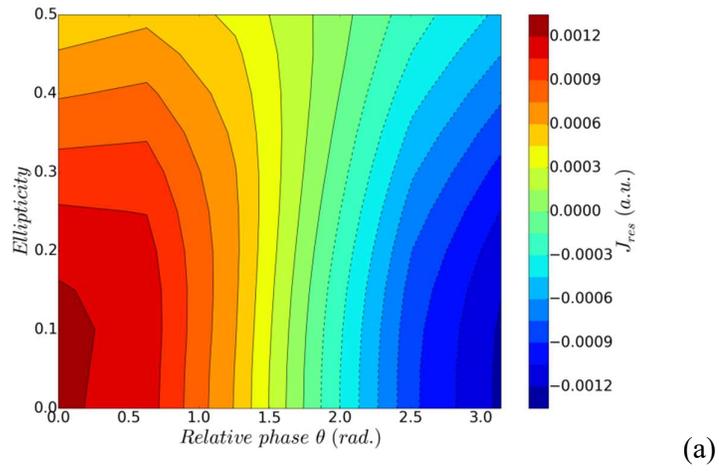


Рис. 1.13. Зависимости остаточного тока от относительной фазы второй гармоники и эллиптичности лазерного излучения для интенсивностей 5×10^{13} Вт/см² (а); 10^{14} Вт/см² (б) и 2×10^{14} Вт/см² (в).

Таким образом, можно утверждать, что процесс перерассеяния и последующая динамика электронного волнового пакета не дают существенного вклада в генерацию остаточного тока. Принципиально важным с точки зрения генерации остаточных токов является первичный отрыв электрона от атома или молекулы.

1.6.2 Зависимость остаточных токов от частоты лазерного излучения

В ходе проводившихся в рамках данной работы квантовомеханических численных экспериментов (с использованием двумерных потенциалов) по взаимодействию атомов с двухцветными лазерными импульсами были обнаружены значительные отклонения остаточного тока от ожидаемого при изменении частоты лазерного излучения, в то время как при классическом рассмотрении таких отклонений не наблюдается. Необходимо отметить несколько важных аспектов. (1) Особое внимание было уделено исключению зависимости результатов экспериментов от особенностей реализации численной схемы. Было обнаружено, что данные «аномальные» отклонения очень чувствительны к размерам области пространства координат, в которой исследуется динамика волновой функции. Однако изменение этих размеров влияет в основном на точность нахождения высоких энергетических состояний. Энергия основного состояния и динамика волновой функции, найденные при длине расчетной области в 5 осцилляторных радиусов (см. приложения), практически не меняются при дальнейшем увеличении размеров этой области. Таким образом, можно заключить, что в данном случае в процесс, ответственный за формирование «аномального» отклика, вовлечены высокоэнергетические состояния частицы. (2) Вышеупомянутые отклонения имеют место и для токов, нормированных на вероятность ионизации, из чего следует, что данный эффект нельзя объяснить ступенчатым процессом, в котором частица сначала возбуждается, а потом значительно легче ионизируется из высокого состояния. (3) Использование двумерных потенциалов позволяет сократить объемы вычислений по сравнению с 3D случаем без потери физически значимых особенностей поведения волновой функции, в то же время давая возможность учесть важные эффекты, не учитываемые одномерной моделью: в двумерной модели, в отличие от одномерной, уже учитывается поперечное расплывание волнового пакета и, как следствие, уменьшение вероятности перерасеяния.

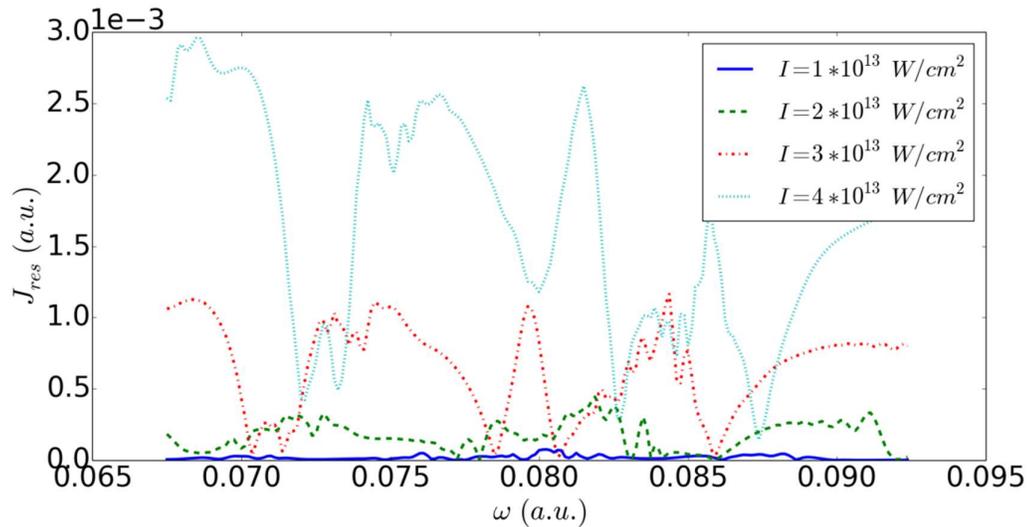


Рис. 1.14. Зависимость нормированного на вероятность ионизации остаточного тока от частоты для различных интенсивностей лазерного импульса. Представлен результат квантовомеханического рассмотрения.

Также в 2D случае возможно существование вырожденных энергетических уровней. Таким образом, общее физическое поведение системы должно быть в значительно большей степени, чем в 1D случае, схожим с трехмерным случаем, по крайней мере на качественном уровне.

На рисунке 1.14 приведены полученные на основе квантовомеханических численных расчетов зависимости нормированного остаточного тока от частоты лазерного излучения при оптическом пробое газа двухцветным лазерным импульсом, содержащим компоненты поля на основной частоте и ее четвертой гармонике; приведены результаты для различных интенсивностей. Длина волны основной компоненты варьировалась в пределах от 494 до 675 нм. Из рисунков видно, что эффективность возбуждения направленного тока является сложной функцией частоты лазерного излучения с перепадами между максимумами и минимумами более чем на порядок.

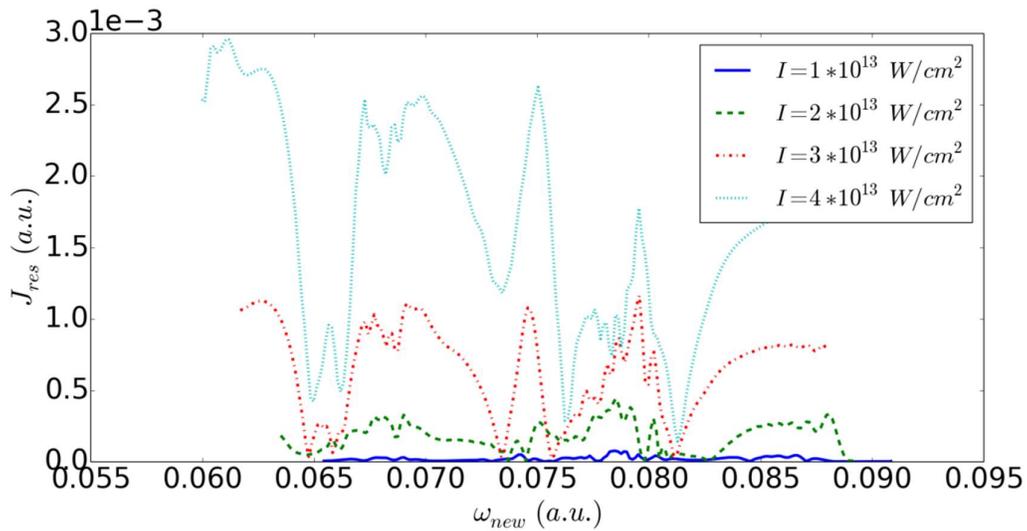


Рис. 1.15. Зависимость нормированного остаточного тока от преобразованной частоты для различных интенсивностей лазерного импульса.

Если для данных результатов применить преобразование оси частот по аналогии с изменением потенциала ионизации из-за динамического сдвига континуума («динамического эффекта Штарка»):

$$\omega_{new} = \frac{\omega}{1+E^2/2\omega^2}, \quad (1.15)$$

то приведенные кривые хорошо согласуются между собой по положению пиков (рисунок 1.15), что опять же говорит о возможном наличии механизма, связанного с высокими (ридберговскими) состояниями. Однако оказывается, что пики на отмасштабированной усредненной кривой не коррелируют с энергиями внутриатомных переходов между невозмущенными состояниями атома. Таким образом, можно заключить, что, по-видимому, увеличение эффективности генерации остаточного тока происходит за счет сложных переходов с участием более двух энергетических уровней. Наглядный физический механизм, исчерпывающим образом объясняющий указанное явление, на данный момент не предложен.

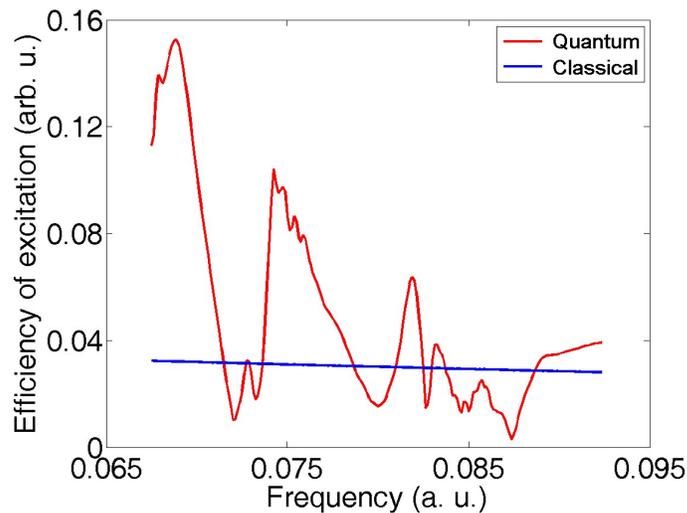


Рис. 1.16. Зависимость эффективности генерации остаточного тока от частоты в случаях квазиклассического (синяя кривая) и квантовомеханического (красная кривая) рассмотрения.

В то же время, расчеты в рамках классической модели дают лишь слабую и монотонную зависимость эффективности возбуждения направленного тока от частоты лазерного излучения. Сравнение результатов классических и квантовомеханических расчетов (рисунок 1.16) позволяет сделать вывод о сильном влиянии энергетического спектра частиц среды на процесс возбуждения направленных токов и генерации терагерцового излучения путем оптического пробоя газов.

В целом, следует предполагать, что наблюдаемые максимумы и минимумы величины генерируемого направленного тока как функции от частоты лазерного излучения могут быть интерпретированы как проявление многофотонных резонансных внутриатомных переходов, инициируемых лазерным полем и резко изменяющих условия ионизации атома. Проведенное исследование позволяет сделать вывод о возможности существенного повышения эффективности генерации терагерцового излучения путем тонкой подстройки частоты основной компоненты лазерного излучения в экспериментах с двухцветным полем.

Глава 2. Генерация остаточных токов при ионизации молекулы фемтосекундным лазерным импульсом

Наряду с известными [73, 127, 33, 137] способами нарушения симметрии процесса ионизации, приводящими к возникновению ненулевой средней дрейфовой скорости электрона, и, как следствие, к генерации терагерцового излучения, можно ожидать, что еще одним способом достижения этой цели может быть использование таких нелинейных сред, которые сами по себе обладают определенной асимметрией. Примером такой среды может быть газ ориентированных молекул, обладающих ненулевым статическим дипольным моментом. Настоящая глава посвящена исследованию возможностей генерации остаточных токов при воздействии интенсивного фемтосекундного излучения на подобные среды. Отметим, что, хотя ионизация асимметричных молекул в последнее время привлекает значительный интерес [1, 2, 66], их возможное использование для генерации терагерцового излучения ранее не рассматривалось. Необходимо отметить, что для таких молекул можно ожидать существенно более слабой зависимости остаточного тока от длительности и фазы заполнения лазерного импульса, в сравнении со случаем симметричных систем, что весьма привлекательно с точки зрения прикладного применения.

В настоящей главе проводится рассмотрение для модельных двухатомных молекул с разным эффективным зарядом ядер, ориентированных относительно вектора электрического поля определенным образом. В следующем разделе приведен краткий обзор существующих способов создания ансамблей молекул с нарушенной изотропией угловых распределений молекулярных осей относительно лабораторной системы координат.

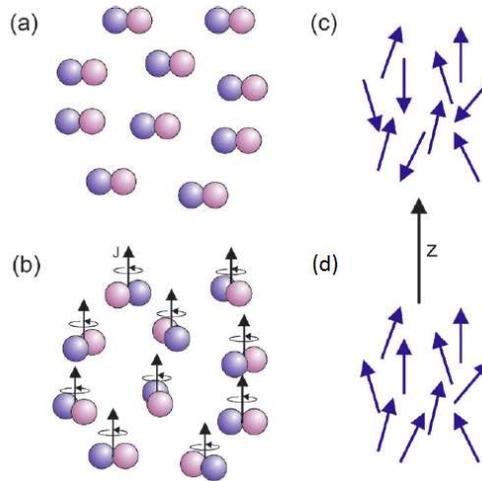


Рис. 2.1. (a) Ориентирование молекулярных осей. (b) Ориентирование угловых моментов. (c) Выстроенный ансамбль. (d) Ориентированный ансамбль.

2.1 Методы выстраивания и ориентации молекул в газе

Как будет показано ниже, квантовомеханическое среднее скорости электрона при ионизации полярной молекулы лазерным полем имеет в общем случае ненулевое значение, зависящее от угла между осью молекулы и вектором электрического поля лазерного импульса. В обычных условиях в газовом ансамбле всегда найдутся две молекулы с направленными в противоположные стороны дипольным моментом, и макроскопический ток в образце будет равен нулю. Следовательно, для генерации низкочастотного излучения из образца необходимо сориентировать молекулы таким образом, чтобы их дипольные моменты были направлены преимущественно в одну сторону.

Отметим, что анизотропия может быть создана как в отношении углового распределения молекулярных осей (рис 2.1 а), так и в отношении распределения вращательных угловых моментов (рис 2.1 б). В рамках задач, решаемых в диссертации, интерес представляет именно анизотропия распределения молекулярных осей (рис 2.1 а). Также важно различать понятия выстроенности (рис. 2.1 с) и ориентированности (рис 2.1 d).

2.1.1. Трансляционное упорядочение молекулярного ансамбля.

Молекулярные пучки

За некоторыми исключениями, первый этап в создании ансамбля ориентированных атомов или молекул – это синхронизация их поступательного движения. Это легко достигается путем приготовления молекулярного пучка при сверхзвуковом расширении струи. Молекулярный пучок формируется при вытекании газа из резервуара через сопло в вакуум. Характеристики формируемого молекулярного пучка зависят от отношения длины свободного пробега частиц внутри источника, λ , к диаметру отверстия, f – величины, известной как число Кнудсена: $K = \lambda/f$.

Для создания сверхзвукового расширения необходимо выполнение условия $K < 1$. В таких условиях формируется высокоинтенсивный молекулярный пучок с узким распределением по скорости. Поскольку диаметр сопла больше длины свободного пробега молекул внутри источника, в процессе прохождения газа через горловину сопла происходят многократные столкновения. «Нужные» столкновения передают импульс вдоль осевого направления сопла, создавая высокую скорость вдоль оси сопла с малым разбросом скорости в перпендикулярном направлении. Столкновения также преобразуют внутреннюю энергию и энергию случайно направленного поступательного движения молекул внутри источника в кинетическую энергию поступательного движения вдоль оси пучка, вследствие чего молекулы внутри пучка охлаждаются.

Для ряда молекул некоторая степень выстроенности получается «бесплатно» при сверхзвуковом расширении, используемом для получения молекулярного пучка. Это явление достаточно подробно описано в [10, 115]. На базовом уровне происхождение выстраивания можно понять как следствие большого количества столкновений, которые испытывает молекула во время сверхзвукового расширения в сопле. Молекулы, имеющие такие ориентацию и вращательные состояния, при которых сечение

столкновения в направлении вдоль пучка имеет большие значения, за время прохождения сопла испытывают большее число столкновений, чем молекулы с меньшим сечением рассеяния. В свою очередь столкновения меняют ориентацию молекул, что приводит к увеличению числа молекул, находящихся в состоянии с меньшим сечением рассеяния вдоль оси пучка. В результате оси линейных молекул приобретают преимущественную направленность вдоль оси пучка, в то время как плоские молекулы, такие как бензол, разворачиваются в большой степени «бокком», чем «лицом».

Для получения более сильной анизотропии распределения молекул из начального хаотического распределения, некоторые векторные величины молекулы должны быть использованы в качестве "рукоятки", которая может обеспечивать взаимодействие с внешними силами, приводящее к выстраиванию или ориентации. В случае молекул, обладающих постоянным дипольным моментом, может быть использовано его взаимодействие с внешним электрическим полем. В более общем случае, ориентирование или выстраивание молекул может быть получено с использованием взаимодействия индуцированных дипольных моментов молекул с линейно или циркулярно поляризованным лазерным излучением. Ниже кратко рассмотрены данные методы (более подробный обзор можно найти в работах [109, 141]).

2.1.2 Ориентирование в статическом электрическом поле

Один из наиболее простых способов ориентирования дипольных молекул – это помещение их в достаточно сильное однородное электрическое поле. Под сильным полем подразумевается, что энергия взаимодействия $-\mu E$ между дипольным моментом молекулы μ и электрическим полем E значительно превышает характерную вращательную энергию молекулы: $\frac{\mu E}{B} \gg 1$, где B – вращательная постоянная молекулы. Когда это условие выполнено, вращательные состояния молекул превращаются в так

называемые «маятниковые» вращательные состояния, в которых проекция дипольного момента на направление электрического поля периодически изменяется. Несмотря на то, что такой метод применим к любой полярной или поляризуемой молекуле, достижение значительной степени ориентирования требует высоких напряженностей электрического поля (порядка 100 кВ/см) и молекул с большим дипольным моментом и малой вращательной постоянной. Кроме того, поскольку энергия вращения увеличивается квадратично с увеличением вращательного квантового числа J , молекулы должны быть очень холодными, что означает необходимость использования сверхзвукового расширения. Такой тип ориентации был впервые продемонстрирован в 1990 году и с тех пор был применен к ряду молекул, таких как CH_3I , ICl , ICN и пиридазин [91, 94, 95, 96].

Ориентация молекул возможна также и в сравнительно слабых неоднородных полях при использовании квадрупольных или гексапольных селекторов. При взаимодействии молекул, имеющих постоянный дипольный момент, с внешним полем их энергия изменяется вследствие эффекта Штарка. Энергия понижается, если дипольный момент молекулы направлен вдоль поля (нижнее штарковское состояние), и повышается, если дипольный момент направлен против поля (верхнее штарковское состояние). В отличие от техники ориентирования молекул в однородном электрическом поле, требующей очень высоких напряженностей поля, квадрупольные и гексапольные селекторы используют поступательное движение молекул в слабых неоднородных электрических полях. Во время движения в неоднородном поле молекулы, находящиеся в нижнем штарковском состоянии, могут еще больше понизить свою энергию, перемещаясь в область сильного поля, в то время как молекулы в верхнем штарковском состоянии могут понизить свою энергию, перемещаясь в область слабого поля. Таким образом происходит пространственная селекция молекул с различной ориентацией дипольного момента.

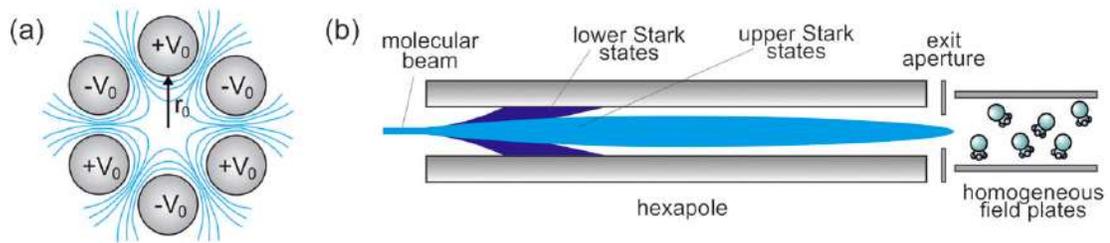


Рис. 2.2. Структура гексапольного селектора в поперечном (а) и продольном (б) сечении. Темным цветом показаны траектории молекул в нижнем штарковском состоянии, светлым – в верхнем. Рисунок взят из работы [141].

Квадрупольные и гексапольные селекторы состоят из четырех или шести стержней, установленных по окружности, с приложенными положительными и отрицательными высокими напряжениями, чередующимися между соседними стержнями. Несмотря на общность принципов работы, четырех- и шестистержневые селекторы значительно различаются в деталях. Квадрупольные селекторы применяются в основном для молекул с большими дипольными моментами; они подробно рассмотрены в работе [105]. Гексапольные селекторы получили более широкое распространение [141], рассмотрим их более подробно.

Вращательное состояние симметричного волчка определяется тремя квантовыми числами: полным угловым моментом (J), проекцией полного момента на молекулярную ось (K) и проекцией полного углового момента на ось лабораторной системы (M_J); в интересующем нас случае это ось, определяющая направление внешнего электрического поля. Вращательное движение молекулы является прецессионным; молекулярная ось прецессирует вокруг полного углового момента, который в свою очередь прецессирует вокруг оси лабораторной системы. Интегрирование уравнения движения молекулярного симметричного волчка через область неоднородного поля гексапольного селектора (показано на рис. 2.2) дает простое решение в виде гармонического осциллятора для радиальной

координаты. Молекулы, находящиеся в нижних шарковских состояниях, двигаются по экспоненциальным траекториям, которые расходятся от оси гексаполя и выходят из молекулярного пучка. Напротив, молекулы в верхних шарковских состояниях двигаются по синусоидальным траекториям, $r(t) \sim \sin(\omega t)$, которые фокусируются на оси на расстояниях, зависящих от вращательного состояния и потенциала на стержнях гексаполя. Эти траектории характеризуются частотой колебаний:

$$\omega = \left(\frac{6V_0\mu}{mr_0^3} \frac{|KM_J|}{J(J+1)} \right)^{1/2} \quad (2.1)$$

Здесь V_0 – гексапольный потенциал, m и μ – масса и дипольный момент молекулы, а r_0 – радиус, на котором установлены металлические стержни. Зависимость частоты от потенциала V_0 и вращательного состояния молекулы означает, что за счет гексапольного потенциала траектории, соответствующие любому желаемому вращательному состоянию, могут быть сфокусированы на оси пучка на выходе из гексапольного селектора. Прочие вращательные состояния могут быть исключены из пучка с помощью диафрагмы, чтобы позволить выйти из гексаполя только сфокусированным траекториям, соответствующим представляющему интерес вращательному состоянию.

Однако, хотя на выходе гексаполя отобраны определенные вращательные состояния, диполи не ориентированы в пространстве в силу неоднородности поля в селекторе. Для достижения пространственной ориентации полученный пучок пропускают через слабое однородное поле, создаваемое двумя пластинами, расположенными после селектора. Достаточно однородного поля величиной порядка 1~2 В/см для достижения определенной пространственной ориентации [55].

Степень ориентации определяется отобранным вращательным состоянием молекул в пучке. В случае сильного поля, когда взаимодействие углового момента с электрическим полем значительно сильнее, чем взаимодействие с

ненулевыми ядерными спинами, средний угол между вектором электрического поля и молекулярным дипольным моментом (т.е. угол прецессии) для данного вращательного состояния задается следующим образом:

$$\langle \cos \theta \rangle = \frac{KM_J}{J(J+1)} \quad (2.2)$$

Детальное сравнение описанных выше методов ориентации молекул проведено в работе [25].

2.1.3 Выстраивание и ориентирование в сильном лазерном поле

В описанных выше подходах для создания ориентированных распределений молекул используются статические электрические поля. Есть целый ряд методов, позволяющих осуществить выстраивание и ориентирование молекул с помощью лазерного излучения. В этом разделе рассмотрим способы, в которых для создания угловой упорядоченности молекул используется нерезонансное лазерное поле.

Норман и соавторы [107] на примере ансамбля молекул CO первыми продемонстрировали, что интенсивное нерезонансное линейно-поляризованное лазерное излучение может создать сильное молекулярное выстраивание. Полная теория, объясняющая полученные результаты, была представлена в работе [45]. Эта теория применима, когда лазерный импульс намного длиннее по сравнению с периодом вращения молекулы. Такой режим выстраивания называется адиабатическим. Механизм такого выстраивания очень похож на ориентацию в сильном однородном электрическом поле. Ключевое отличие состоит в том, что, поскольку изменение направления электрического поля с положительного на отрицательное и обратно происходит на каждом оптическом периоде лазерного излучения, длительность которого значительно меньше, чем время отклика постоянного дипольного момента на поле, взаимодействие в данном

случае происходит с индуцированным дипольным моментом в молекуле. Наведенный дипольный момент в свою очередь зависит от молекулярной поляризуемости, что приводит к выстраиванию молекул таким образом, чтобы оси молекул, поляризуемость вдоль которых наиболее высока, лежали вдоль вектора электрического поля лазерного излучения. Такая выстроенность молекулярного ансамбля существует только в течение лазерного импульса: молекулы выстраиваются по мере роста интенсивности лазерного поля на фронте импульса, это выстраивание достигает максимума на пике импульса (молекулы занимают «маятниковые» состояния, аналогичные случаю сильного однородного статического поля), а затем выстроенность уменьшается и в конечном итоге исчезает на заднем фронте импульса. Как и в случае сильного однородного статического поля, достижимая степень выстроенности может быть повышена с помощью отбора молекул в самых низких вращательных состояниях перед воздействием выстраивающего лазерного импульса. С использованием этой техники в работе [67] было достигнуто одномерное выстраивание йодбензола с $\langle \cos^2\theta \rangle = 0,97$, где θ – угол между молекулярной осью и поляризацией лазерного излучения. При осуществлении подобных экспериментов в присутствии постоянного электрического поля можно также индуцировать ориентацию в газе полярных молекул [42, 67, 106].

Линейно поляризованное лазерное излучение может выстраивать молекулы вдоль одной выбранной оси, но, как показано в работе [130], для многоатомных молекул можно также добиться выстраивания по отношению к двум или даже трем осям, используя круговую или эллиптическую поляризацию лазерного поля. Это один из немногих методов, который позволяет эффективно устранить вращательное движение молекул сразу в трех измерениях.

Описанная выше схема привлекательна прежде всего своей простотой и тем фактом, что она применима практически к любым молекулам. Однако,

как и в случае с сильным однородным постоянным полем, она не дает возможности проводить эксперименты со свободным выстроенным ансамблем.

Важную роль в развитии техники выстраивания и ориентации молекул и ее приложений сыграли работы, в которых было продемонстрировано, что лазерные импульсы, длительность которых значительно меньше периода вращения молекулы, могут индуцировать молекулярное выстраивание [130]. Такой способ получил название «динамического» или «неадиабатического» выстраивания. Идея основана на том, что ультракороткий лазерный импульс имеет достаточно широкий спектр и, как следствие, может возбудить когерентную суперпозицию вращательных состояний молекулы, находящейся в определенном электронном и колебательном состоянии. После выключения лазерного импульса полученный вращательный волновой пакет эволюционирует во времени, и его отдельные компоненты периодически дефазировываются и синхронизируются. Этот эффект является одним из примеров феномена коллапсов и возрождений, наблюдаемых в долговременной эволюции волновых пакетов в квантовых системах различной природы [39, 110]. Время между двумя актами синхронизации вращательных состояний называется временем возрождения вращательного волнового пакета. При каждом вращательном возрождении молекулы восстанавливается исходное угловое распределение молекулярных осей. В частности, если, как это обычно бывает, исходное распределение было изотропным, то такое же изотропное распределение будет наблюдаться и в момент возрождения (см. рис. 2.3, в центре).

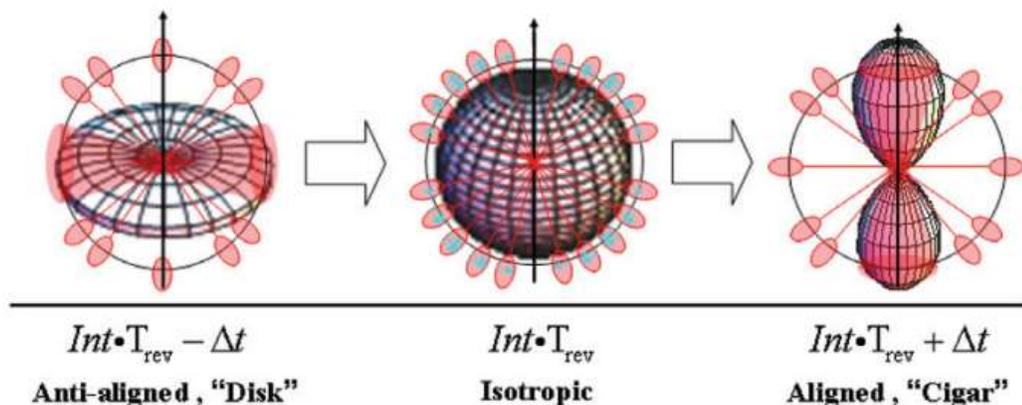


Рис. 2.3. Угловое распределение молекулярных осей в окрестности времени вращательного возрождения.

Следует, однако, отметить тот важный факт, что незадолго до возрождения вращательного пакета наблюдается «антивыстраивание» (состояние, в котором угловое распределение молекулярных осей приобретает дискообразную структуру, т.е. у большинства молекул ось оказывается перпендикулярной электрическому полю – см. рис. 2.3, слева), а вскоре после возрождения возникает выстраивание молекулярных осей вдоль электрического поля; распределение молекулярных осей в этом случае имеет сигарообразную форму – см. рис. 2.3, справа.

Зная структуру вращательных уровней молекулы (определяемую в основном вращательной постоянной B), можно найти время, через которое происходит возрождение, и тем самым иметь возможность проведения экспериментов со свободным упорядоченным ансамблем молекул. Динамическое выстраивание было объяснено и подробно рассмотрено в работах Тамар Зайдеман [123].

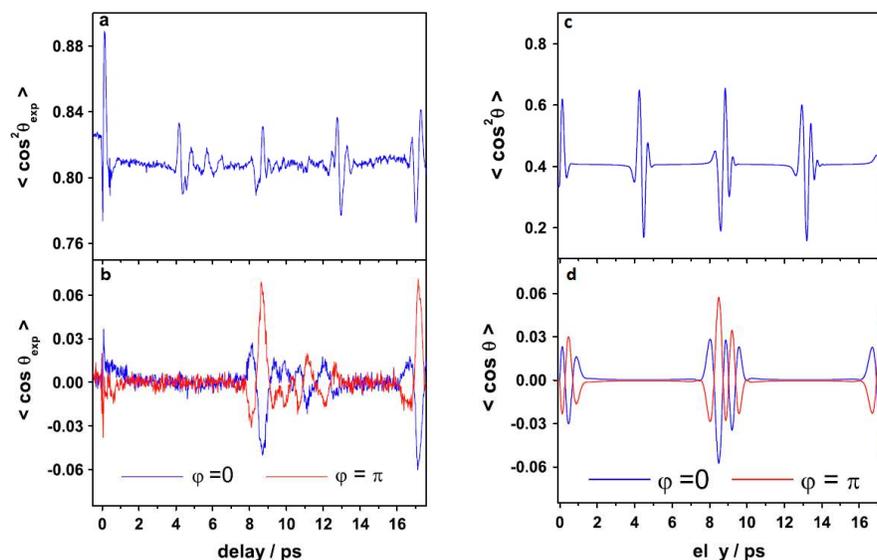


Рис. 2.4. Продемонстрированные в работе [35] результаты по выстраиванию и ориентированию молекул СО в двухцветном лазерном импульсе. Рис. а и b соответствует экспериментальным измерениям; с и d – квантовомеханическим расчетам, в которых молекулы рассматривались как жесткие ротаторы.

До недавнего времени наиболее высокая степень ориентированности молекул достигалась с помощью адиабатической [66, 67] или импульсной [49] методик с использованием предварительной селекции молекулярных состояний. Еще одно перспективное направление – это использование двухцветного нерезонансного лазерного импульса [72, 108, 144], привлекательное тем, что такую схему можно реализовать в полностью оптической системе без каких либо дополнительных статических электрических полей или потерь молекул в ходе отбора определенных состояний. Тем не менее, присутствие электрического поля в форме наносекундного лазерного импульса было существенным ограничением, до тех пор, пока не была продемонстрирована схема импульсного ориентирования с использованием двухцветного лазерного импульса без каких-либо дополнительных статических и длинноимпульсных полей [35]. В

вышеупомянутой работе было получено ориентирование молекул CO в поле двухцветного лазерного импульса (с длинами волн 800 и 400 нм). Степень упорядоченности диагностировалась с помощью кулоновского взрыва (см. подробнее в разделе 3.2). Экспериментально полученные результаты хорошо согласуются с квантовомеханическим рассмотрением молекулы CO как жесткого ротатора (см. рис. 2.4), взаимодействующего с лазерным полем посредством статического дипольного момента, дипольной поляризуемости и гиперполяризуемости. Вращательные уровни молекулы считались заселенными в соответствии с больцмановским распределением. Данная квантовомеханическая модель более подробно рассмотрена в главе 3.

Основное ограничение такого подхода – невысокая степень ориентированности. Однако в силу ряда преимуществ данного подхода он был успешно использован в прикладных исследованиях, в том числе в первых экспериментах по спектроскопии с использованием генерации высоких гармоник [83, 46]. В частности, эти исследования показали, что ориентирование двухцветным полем может достигаться также за счет ионизационного механизма [129], являющегося следствием асимметрии угловой зависимости скорости ионизации в сильном электрическом поле для полярных молекул, а не только посредством взаимодействия лазерного поля с молекулярной гиперполяризуемостью [120], и в некоторых случаях ионизационный механизм превосходит по эффективности последний.

Применение ориентирования молекул в спектроскопии с использованием высоких гармоник (например, в томографии молекулярных орбиталей) подразумевает выполнение ряда требований: 1) высокая концентрация частиц (больше 10^{15} см^{-3}) из-за низкой эффективности генерации высоких гармоник; 2) отсутствие внешних полей, так как они влияют на динамику системы или угловые распределения фотоэлектронов; 3) отсутствие или слабая ионизация, так как наличие свободных электронов мешает

детектированию заряженных частиц и разрушает фазовую синхронизацию для высоких гармоник.

До недавнего времени совокупности этих требований не удовлетворяла ни одна из приведенных выше техник, пока не была предложена двухимпульсная схема с использованием одноцветного и, с некоторой задержкой, двухцветного импульса [84, 85, 136, 154]. В данной схеме осуществляется дополнительный контроль вклада компонент с четными и нечетными угловыми моментами во вращательную динамику, что позволяет достигнуть степени ориентированности, сопоставимой с достигаемой при предварительном отборе вращательных состояний. При этом, поскольку при селекции вращательных состояний доля полезных частиц составляет лишь небольшую часть от их общего числа, двухимпульсная схема, позволяющая работать со значительно более высокими концентрациями частиц, гораздо более предпочтительна с точки зрения приложений (например, в аттосекундной спектроскопии). Показано, что в данной схеме ориентированность достигается исключительно за счет взаимодействия с гиперполяризуемостью, что позволяет избежать сильной ионизации для достижения высокой ориентированности.

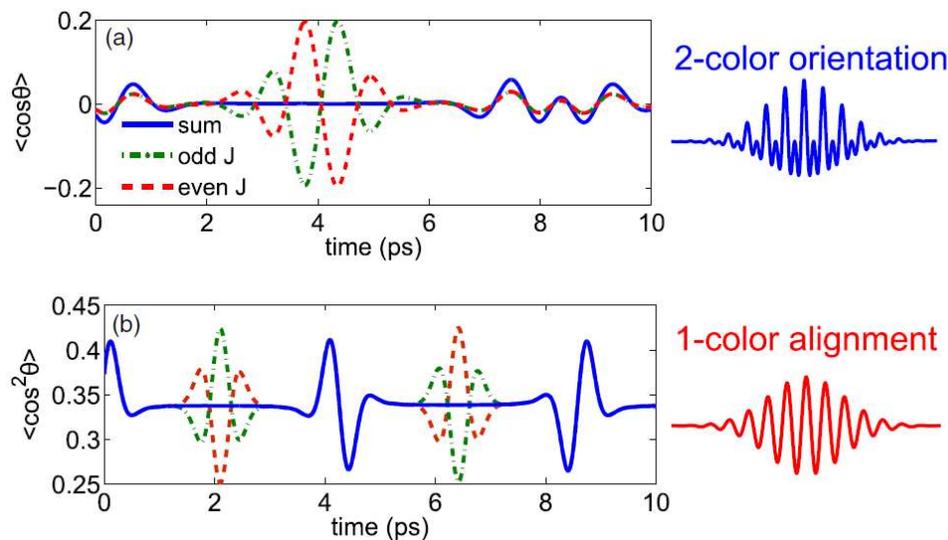


Рис. 2.5. Вклад четных и нечетных компонент волнового пакета (пунктирные кривые) и суммарная (сплошная кривая) степень ориентированности в двухцветном лазерном импульсе (a) и выстроенности в одноцветном лазерном импульсе (b). Рисунок взят из работы [76].

На рис. 2.5, взятом из работы [85], на примере молекулы CO демонстрируется основная идея двухимпульсного метода: Если рассмотреть отдельно возбуждение только четных или нечетных компонент вращательного волнового пакета двухцветным лазерным импульсом, то видно, что для них (пунктирные кривые) достигается максимальная ориентированность в окрестности половины времени полного возрождения ($T_{\text{rev}}/2$, рис. 2.5a, ~ 4.3 пикосекунды), однако в обычном случае, когда в одинаковой степени возбуждаются компоненты как с четными, так и с нечетными угловыми моментами, существенной суммарной ориентации не возникает (сплошная кривая). Далее рассмотрим эволюцию четных и нечетных компонент после возбуждения одноцветным лазерным импульсом (рис 2.5b). Приведенная на рис 2.5b зависимость величины $\langle \cos^2\theta \rangle$ от времени демонстрирует сильную выстроенность всего молекулярного ансамбля вблизи моментов $T_{\text{rev}}/2$ и T_{rev} ; кроме того, угловые распределения нечетных и четных компонент волнового пакета по отдельности также

оказываются заметно отличающимися от изотропного в моменты $T_{\text{rev}}/4$ и $3T_{\text{rev}}/4$. Появление указанных особенностей тесно связано с полным (при T_{rev}) возрождением, а также с дробными [13] возрождениями кратности $1/2$ ($T_{\text{rev}}/2$) и $1/4$ ($T_{\text{rev}}/4$ и $3T_{\text{rev}}/4$) вращательного волнового пакета. При подобных возрождениях возникает частичная сфазированность компонент волнового пакета. Так, при возрождении кратности $1/4$ в момент $T_{\text{rev}}/4$ для компонент вращательного волнового пакета с нечетными J возникает выстраивание, а с четными J – антивыстраивание; соответственно, угловое распределение вращательных осей представляет собой комбинацию сигарообразного (для нечетных J) и дискообразного (для четных J) распределений. При $3T_{\text{rev}}/4$ возникают аналогичные распределения, с точностью до замены четных компонент на нечетные и наоборот. Соответственно, если использовать двухимпульсную схему с задержкой между одноцветным и двухцветным импульсом, равной $T_{\text{rev}}/4$, то наблюдаемой на рис. 2.5а компенсации вкладов компонент с четными и нечетными J в общую ориентированность ансамбля не произойдет. Вместо этого возникнет результирующая ориентированность, причем достигаемая ансамблем степень ориентированности будет выше, чем в случае одноимпульсной схемы.

2.2 Асимметричные молекулы в одноцветном лазерном поле

2.2.1 Ионизация асимметричной молекулы в сильном лазерном поле.

Общие положения и постановка задачи

Рассматриваемые ниже модельные молекулярные системы являются одноэлектронными. Применение таких моделей соответствует приближению одного активного электрона, широко используемому при теоретическом рассмотрении ионизационных процессов в атомарных и молекулярных газах в полях лазерного излучения видимого или ИК диапазона. Такое приближение, как правило, хорошо работает, так как наиболее эффективно с лазерным полем взаимодействует электрон на верхней заполненной орбитали, наименее сильно связанный с ионным остовом. Отметим, в частности, что этому приближению соответствует формула Аммосова-Делоне-Крайнова [157] для туннельной ионизации и ее модификации, широко используемые в различных ионизационных задачах, в том числе в задачах о генерации терагерцового излучения при оптическом пробое газов [50, 78]. Таким образом, асимметрия вероятности отрыва электрона от молекулы на разных полупериодах лазерного поля описывается нами в терминах асимметрии модельного одноэлектронного потенциала.

Для начала рассмотрим, каким образом асимметрия потенциала влияет на распределение вероятностей ионизации по фазе колебаний поля в лазерном импульсе. В качестве модельной задачи возьмем одномерный одноэлектронный двуцентровый несимметричный потенциал, отвечающий двум положительно заряженным ядрам с разными зарядами. Рассмотрим суммарный потенциал взаимодействия электрона с ядрами и лазерным полем в моменты времени, отстоящие друг от друга на полупериод колебаний поля. Для сравнения на рисунке 2.6 представлены случаи атома и двухатомной асимметричной молекулы.

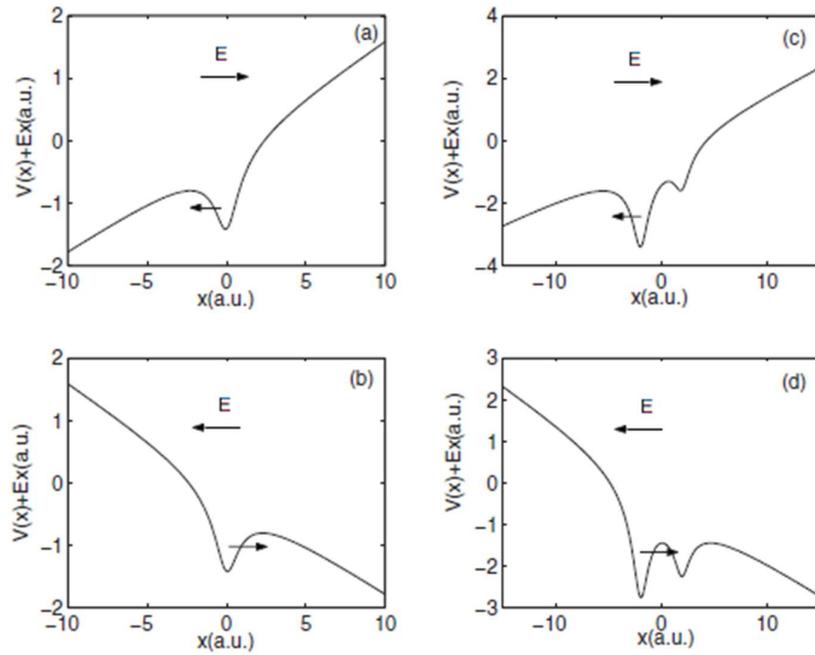


Рис. 2.6. Схематическое изображение комбинированного потенциала взаимодействия электрона с ядрами и полем лазерного импульса для моментов времени, отличающихся на полупериод лазерного поля, для атома (a,b) и асимметричной молекулы (c,d).

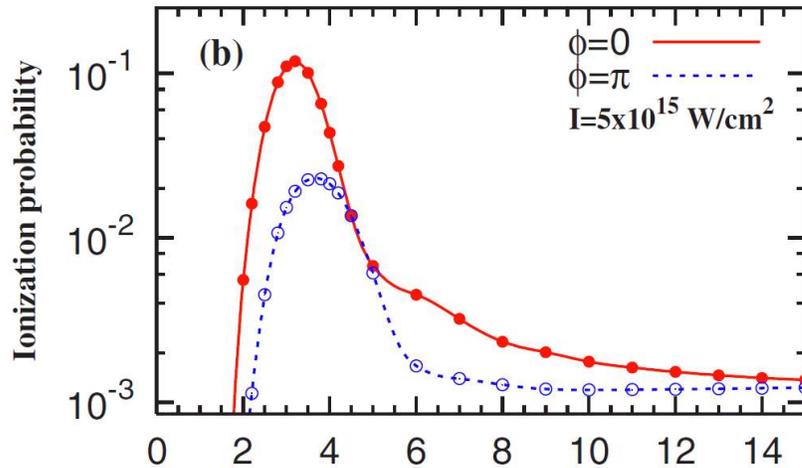


Рис. 2.7. Зависимость вероятности ионизации для NeH^{2+} от межъядерного расстояния при разных фазах заполнения импульса; $I = 5 \times 10^{15}$ Вт/см². Рисунок взят из работы [89].

В случае асимметричной молекулы в основном состоянии волновая функция электрона локализована преимущественно в районе ядра с большим зарядом. На рисунке 2.6с и 2.6д этому соответствует левая потенциальная яма молекулы. При ионизации влево электрон в асимметричном потенциале

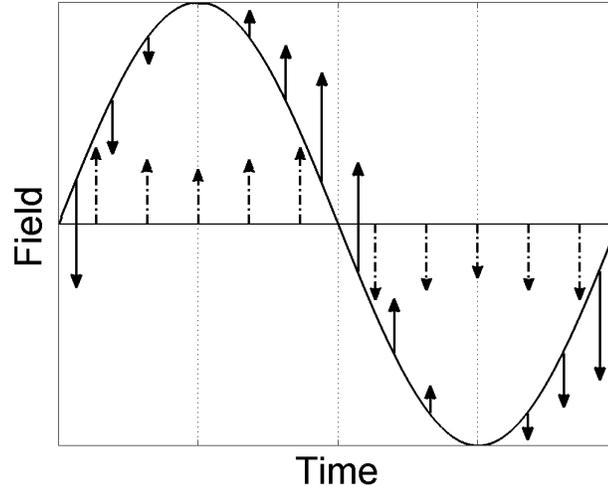


Рис. 2.8. Схематичная зависимость направления и величины дрейфовой скорости электрона от момента отрыва на периоде квазимонохроматического импульса. Сплошные стрелки соответствуют полевому механизму, пунктирные – кулоновскому.

(с) туннелирует через барьер, ширина которого близка к атомному случаю (а), в то время как при ионизации вправо электрон туннелирует через внутренний барьер (d), ширина которого сильно зависит от межъядерного расстояния и может быть значительно меньше, чем в случае одноядерного потенциала. Как следствие, вероятность отрыва электрона в направлении дипольного момента (вправо) превышает вероятность ионизации в противоположную сторону (влево). Это хорошо иллюстрируется рисунком 2.7, где для модели иона HeH^{2+} представлена зависимость вероятности ионизации от межъядерного расстояния для двух различных фаз заполнения ультракороткого импульса, когда поле в максимуме направлено от меньшего заряда к большему ($\varphi = 0$) и наоборот ($\varphi = \pi$) (Данные взяты из работы [89]).

Кроме этого, из рисунка 2.7 видно, что скорость ионизации сильно зависит от межъядерного расстояния и при определенном его значении значительно превосходит скорость ионизации в атомном случае. Данный эффект получил название ускоренной ионизации в молекулах [156, 122].

Оказывается, однако, что даже при такой асимметричной ионизации суммарный ток в приближении сильного поля по-прежнему должен обращаться в ноль, поскольку, например, элементарные токи, порожденные отрывом электрона в 3-й и 4-й четвертях периода лазерного поля, должны компенсировать друг друга (рисунок 2.8, сплошные стрелки). Такая взаимная компенсация нарушается, если, как и в главе 1, принять во внимание влияние кулоновского поля ионов на отрываемый электрон. На протяжении всего 2-го полупериода лазерного поля добавка к дрейфовой скорости электронов, обусловленная действием кулоновского потенциала родительского иона, остается одного знака (рисунок 2.8, штрих-пунктирные стрелки). Поскольку полные вероятности ионизации на 1^м и 2^м полупериодах лазерного поля различны (см. рис. 2.6-2.7), в среднем за период электроны приобретают отличную от нуля дрейфовую скорость, что приводит к образованию макроскопического остаточного тока после прохождения импульса.

Для исследования зависимости остаточного тока от параметров лазерного импульса и свойств молекул газа за основу была взята молекула HeH²⁺. Квантово-механическое рассмотрение основывалось на численном решении нестационарного уравнения Шредингера. Для упрощения расчетов вместо трехмерного потенциала использовалась одномерная модель, одноцентровой кулоновский потенциал в которой был заменен модельным потенциалом следующего вида:

$$V^*(x) = -\frac{1}{(0,7 + x^2)^{\frac{1}{2}}} - \frac{0,42}{(0,7 + x^2)} \quad (2.3)$$

Форма потенциала была выбрана таким образом, чтобы зависимость вероятности ионизации от межатомного расстояния и фазы заполнения импульса для одномерной модели имела поведение, близкое к трехмерному случаю [89]. На рисунке 2.10 приведены кривые зависимости вероятности ионизации от межъядерного расстояния для потенциала (2.3) при

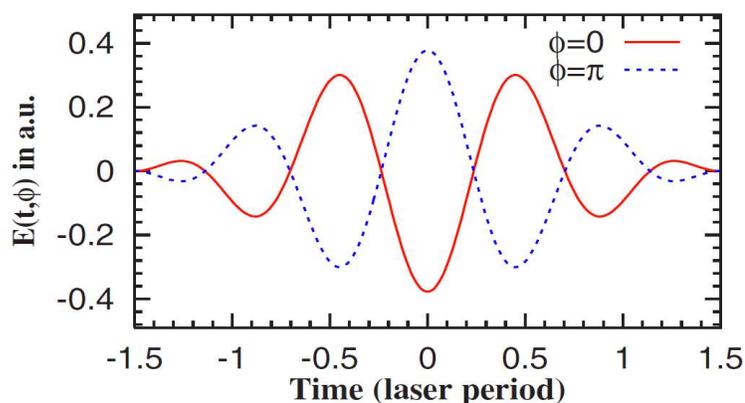


Рис. 2.9. Форма ионизирующего импульса, используемого при сопоставлении вероятностей ионизации для трехмерного и одномерного потенциалов.

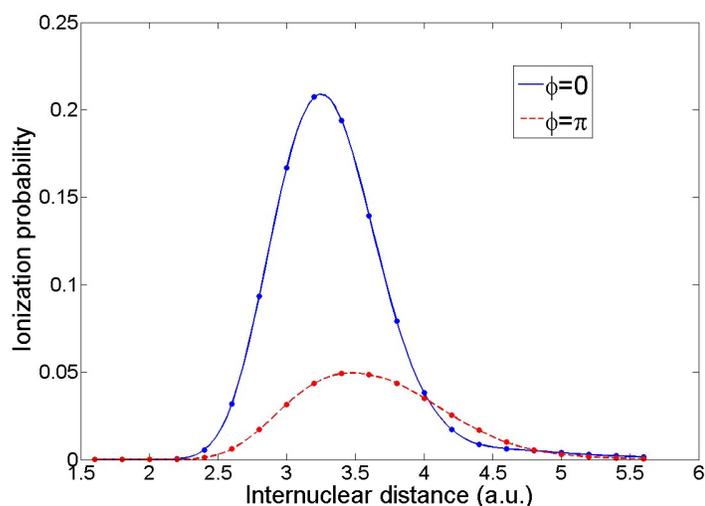


Рис. 2.10. Зависимость вероятности ионизации от межъядерного расстояния при разных фазах заполнения импульса для используемого в диссертации одномерного потенциала, соответствующего HeH^{2+} ; $I = 5 \times 10^{15}$ Вт/см².

длительности, форме и интенсивности ионизирующего импульса (рис. 2.9), аналогичных трехмерному случаю [89].

Если принять, что ядра неподвижны, нестационарное уравнение Шредингера для одноэлектронной двухатомной молекулярной системы, взаимодействующей с лазерным импульсом, приводится к следующему виду:

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi(x, t) = [\hat{H} + A(t, \phi) \hat{p}] \Psi(x, t) \quad (2.4)$$

где

$$\hat{H} = \frac{\hat{p}^2}{2} + V(x); V(x) = Z_1 \hat{V}^*(x + D/2) + Z_2 \hat{V}^*(x - D/2) \quad (2.5)$$

– гамильтониан электрона в отсутствие поля. Здесь p – импульс электрона, $Z_1=2$ и $Z_2=1$ – заряды ядер, D – межатомное расстояние, A – векторный потенциал линейно поляризованного вдоль молекулярной оси поля лазерного импульса, задаваемый следующим образом:

$$A(t, \varphi) = \begin{cases} A_0 \cos^2(\pi t/\tau) \sin(\omega t + \varphi), & -\frac{\tau}{2} < t < \frac{\tau}{2}; \\ 0, & |t| > \frac{\tau}{2}. \end{cases} \quad (2.6)$$

Длительность импульса по основанию варьировалась от полутора до десяти периодов осцилляций поля. Длина волны лазерного излучения фиксирована и равна 400 нм, пиковая интенсивность изменялась от 3×10^{15} до $2,5 \times 10^{16}$ Вт/см². Исходя из зависимости вероятности ионизации от межатомного расстояния D (см. рис. 2.7) величина D варьировалась в пределах от 1.6 до 5.6 боровских радиусов.

Отметим, что для рассмотрения молекулярных систем с разной степенью асимметрии по отношению к процессу ионизации можно варьировать отношение эффективных зарядов в модельном потенциале (2.5), что использовалось в приведенных ниже численных расчетах.

Для выбранной квантовой системы эволюция волновой функции электрона $\Psi(x, t)$ в поле лазерного импульса может быть найдена, как и в 1-й главе, с помощью метода операторного расщепления с использованием быстрого преобразования Фурье. Остаточный ток, наблюдаемый после ионизации молекулы, вычисляется так же, как продемонстрировано в 1-й главе.

Величина остаточного тока нормировалась на максимально возможное значение осцилляторного тока $j_{osc} = E_0/\omega$, который может наблюдаться в поле импульса с максимальной амплитудой E_0 . Нормированный остаточный

ток $j_{norm} = j_{res}/j_{osc}$ не зависит от плотности газа и характеризует эффективность возбуждения плазменных колебаний лазерным импульсом.

2.2.2 Численные расчеты

Результаты численных расчетов приведены на рисунках 2.11-2.15. На рис. 2.11 представлена зависимость нормированного остаточного тока от длительности и фазы заполнения импульса. Видно, что при увеличении длительности импульса (уменьшении асимметрии амплитуд соседних полупериодов) зависимость тока от фазы начинает пропадать, и основную роль в формировании остаточного тока играет асимметрия потенциала молекулы.

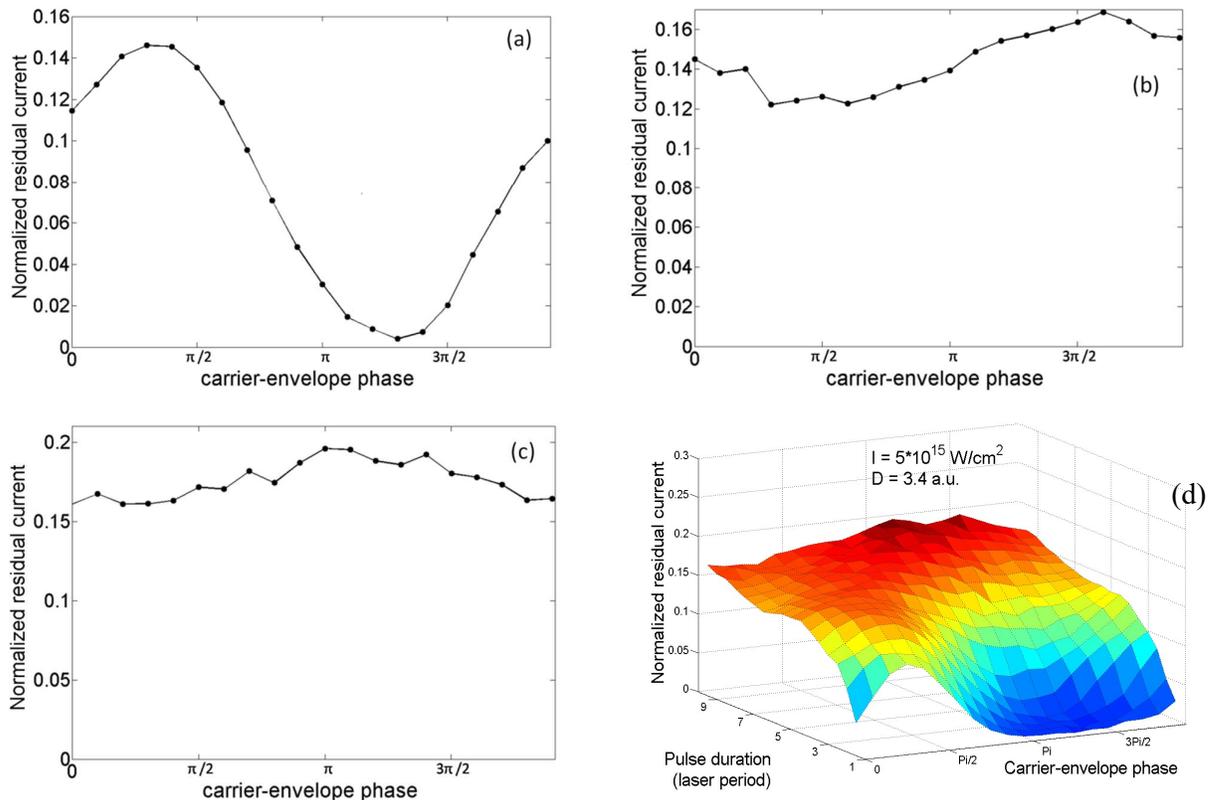


Рис. 2.11. Зависимость нормированного остаточного тока от фазы заполнения импульса при интенсивности $I=5 \times 10^{15}$ Вт/см² для импульса длительностью 3 периода (а), 6 периодов

(b) и 9 периодов (c) поля. На рис. (d) приведен общий вид зависимости этой величины от фазы и длительности при фиксированной интенсивности лазерного импульса.

На рис. 2.12 приведены зависимости нормированного остаточного тока от интенсивности и межъядерного расстояния при оптимальной для каждой интенсивности фазе заполнения импульса. Также исследовалась зависимость тока от соотношения эффективных зарядов ядер в молекуле при постоянном суммарном заряде. Из анализа данных графиков следует вывод о наличии оптимальных значений параметров, при которых возникает глобальный максимум.

Для соотношения зарядов ядер 2:1 (рис. 2.12 a,b) вычисления дают оптимальное межъядерное расстояние, равное 2.8 боровским радиусам. Оптимальная интенсивность в случае длительности лазерного импульса, равной трем периодам поля, составляет 1.5×10^{16} Вт/см², а для длительности, равной девяти периодам – 1.2×10^{16} Вт/см². Величина нормированного остаточного тока в максимумах составляет 0.56 и 0.39 для трех и девяти периодов соответственно. Исходя из этого, эффективность преобразования энергии лазерного импульса в низкочастотные плазменные колебания в газе асимметричных молекул может составлять порядка 30% (j_{norm}^2) и, как видно из результатов, приведенных на рис. 2.12, падает незначительно при увеличении длительности импульса.

Для соотношения зарядов ядер 1,8:1,2 оптимальное межъядерное расстояние получается также равным 2.8 боровским радиусам. Оптимальная интенсивность в случае длительности лазерного импульса, равной трем периодам поля, составляет 1.7×10^{16} Вт/см², а для длительности, равной девяти периодам – 9×10^{15} Вт/см². Величина нормированного остаточного тока в максимумах составляет 0.44 и 0.27 соответственно.

Для симметричной молекулы (рис. 2.12 c,d) оптимальное межъядерное расстояние оказывается равным 3 боровским радиусам. Оптимальная интенсивность в случае длительности лазерного импульса, равной трем

периодам поля, составляет 8×10^{15} Вт/см², а для длительности, равной девяти периодам – 7×10^{15} Вт/см². Величина нормированного остаточного тока в максимумах составляет 0.37 и 0.25 для трех и девяти периодов соответственно. Таким образом, в рамках используемой модели эффективность преобразования в газе симметричных одноэлектронных молекул (~13%) в коротком импульсе оказывается в два с лишним раза меньше, чем в газе молекул HeH²⁺.

На рисунке 2.13 представлен вид электронных волновых функций (изображена их абсолютная величина) в импульсном пространстве после прохождения лазерного импульса. Данный рисунок наглядно демонстрирует, что ожидаемое значение импульса электрона значительно больше в случае асимметричной молекулы.

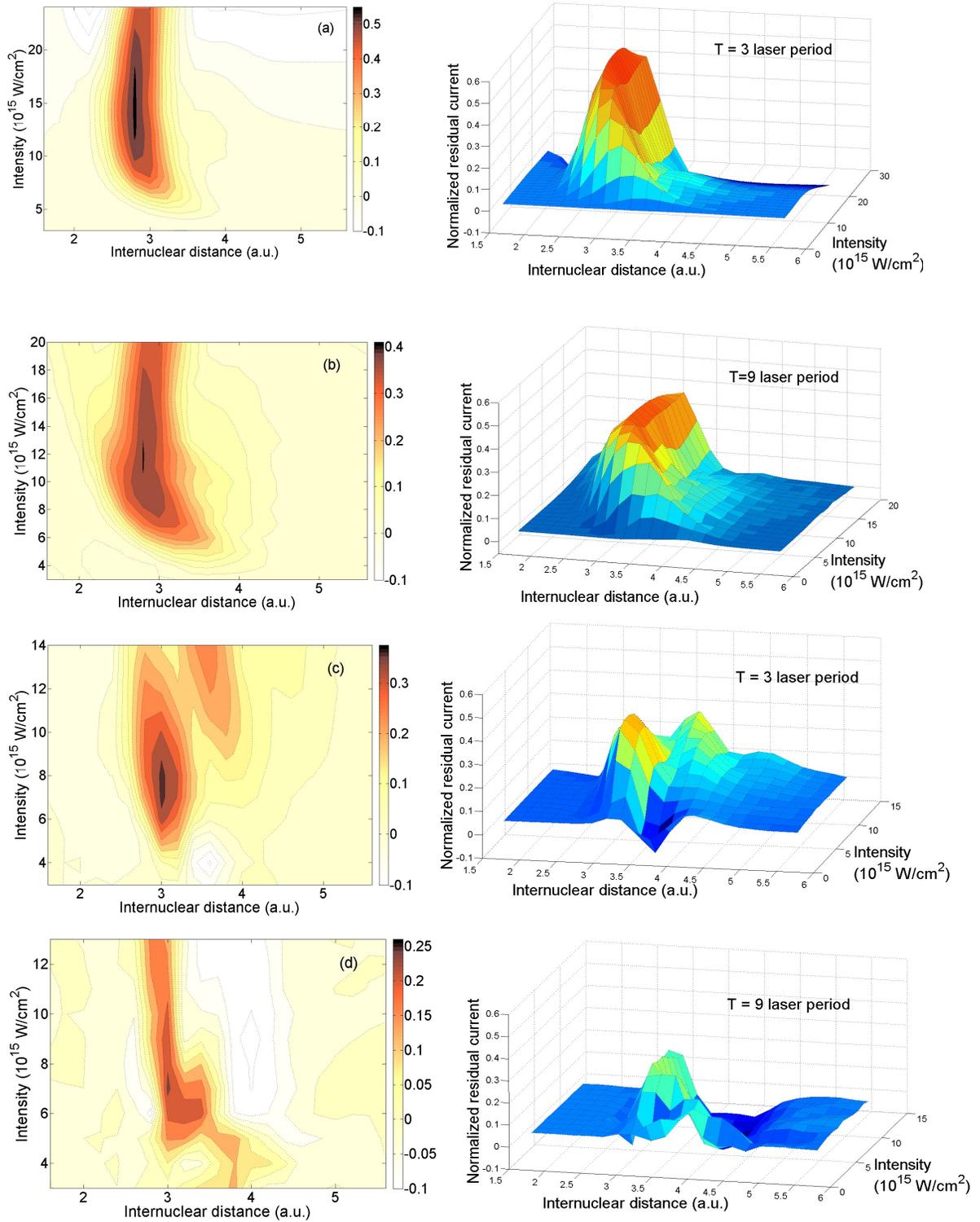


Рис. 2.12. Зависимости нормированного остаточного тока от интенсивности и межъядерного расстояния при оптимальной для каждой интенсивности фазе заполнения импульса. Приведены результаты для различного отношения зарядов ядер (2:1 (a, b) и 1:1 (c, d)) в молекуле при постоянном суммарном заряде.

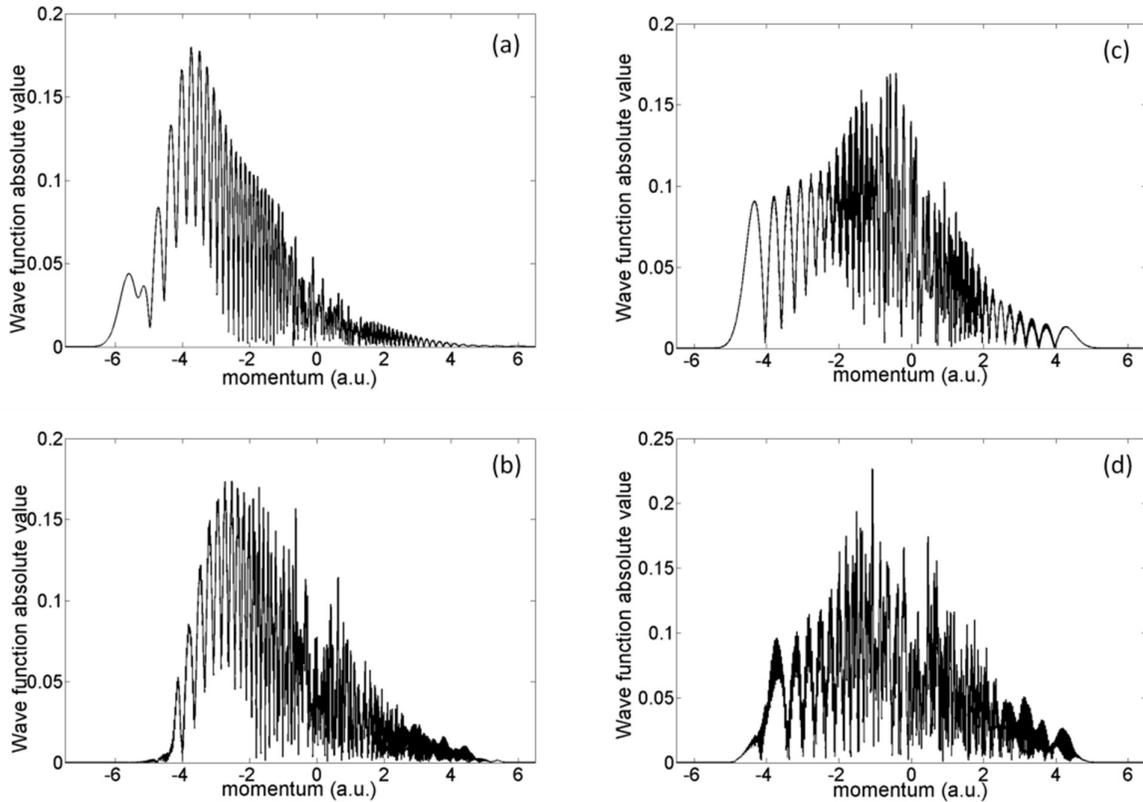


Рис. 2.13. Вид электронной волновой функции в импульсном пространстве после прохождения лазерного импульса в случае асимметричной молекулы и длительности импульса в три (а) и девять (б) периодов поля, а также в случае симметричной молекулы при тех же длительностях – (с) и (d) соответственно. Параметры лазерного импульса и межъядерное расстояние для каждого случая выбраны оптимальным образом.

Заметим, что в приведенных на рисунке 2.13 распределениях по импульсу не наблюдается электронов с импульсами, соответствующими энергии порядка $10U_p$, где $U_p = E^2/4\omega^2$ – пондеромоторная энергия электрона (так, для случаев а, б, с и d на рисунке 2.13 такой энергии соответствуют импульсы электронов порядка 11, 10, 8 и 7 атомных единиц). Из этого следует, что в интересующих нас случаях вклад электронов, перерассеянных на ядрах, пренебрежимо мал, и наблюдаемый эффект генерации остаточного тока не связан с процессом перерассеяния. Кроме того, для наиболее интересных случаев нами были проведены расчеты в рамках трехмерной модели. В частности, были проведены расчеты для различных

эллиптичностью лазерного поля с целью дальнейшего прояснения роли процессов перерассеяния электрона на родительском ионе. Было получено, что величина возбуждаемого остаточного тока слабо зависит от эллиптичности лазерного импульса, что еще раз подтверждает, что основной вклад в остаточный ток в случае асимметричного потенциала дает кулоновский механизм, при этом кулоновский потенциал играет решающую роль при отрыве электрона, а не при его возврате к родительскому иону.

Для дальнейшего прояснения механизмов формирования остаточного тока также была рассмотрена представленная ниже классическая модель. Как видно из рисунка 2.6, в двухатомной молекуле, помещенной в однородное электрическое поле, суммарный потенциал, в котором находится электрон, имеет два барьера: внутренний (межъядерный) и внешний (отделяющий область в окрестности одного из ядер от свободного пространства). При всех интересующих нас значениях интенсивности лазерного поля оказывается, что на полупериоде, когда электрическое поле направлено от ядра с большим зарядом к ядру с меньшим зарядом (рис 2.6с), вершина внешнего (левого) барьера остается выше невозмущенного положения основного энергетического состояния электрона в яме, т.е. барьер непроницаем для классической частицы. Ситуация на соседнем полупериоде лазерного поля качественно иная – в интервале времен, когда величина поля превышает некоторое значение, область, занятая внешним барьером (правым барьером на рис 2.6d) доступна для классического движения. С учетом вышесказанного в классической модели учитывались только электронные траектории, стартующие в этом временном интервале. Согласно квантовомеханическим расчетам, именно в эти моменты времени вероятность ионизации системы максимальна.

При классическом рассмотрении лазерный импульс считался бесконечно длинным, поэтому вместо полного остаточного тока рассчитывался суммарный ток, генерируемый в течение одного периода лазерного поля. Как

следует из вышесказанного, основным механизмом отрыва электрона в рассматриваемой нами задаче являются, в зависимости от мгновенного значения электрического поля, туннельное или надбарьерное прохождение через внутренний барьер при открытом внешнем барьере. В туннельном случае начальная скорость электрона считалась равной нулю, а начальная координата – совпадающей с внешней (правой) границей внутреннего барьера при энергии, равной энергии невозмущенного основного состояния. В надбарьерном случае за начальную координату принималась полученная из квантовомеханического расчета координата максимума вероятности распределения для электрона в основном состоянии, а за начальную скорость – величина, определяемая разностью между энергией электрона в основном состоянии и суммарным потенциалом при указанной выше начальной координате электрона.

Далее, предполагалось, что процессы перерассеяния электрона на родительском ионе не дают заметного вклада в генерируемый ток (справедливость этого предположения подтверждается, как отмечалось выше, трехмерными квантовомеханическими расчетами [4] для случая эллиптически поляризованного лазерного поля). В соответствии с этим считалось, что основной вклад в ток формируется на первом этапе удаления электрона от родительского иона, а именно – в течение интервала времени между отрывом электрона и моментом, когда его скорость впервые обращается в ноль. Дальнейшая процедура нахождения дрейфовой скорости была такой же, как при классических расчетах, изложенных в главе 1.

На рис. 2.14 для сравнения приведены результаты классических и одномерных квантовомеханических расчетов максимального нормированного остаточного тока как функции от межъядерного расстояния в асимметричной молекуле. В качестве квазимонохроматического импульса в квантовомеханических расчетах использовался трапецеидальный импульс с включением и выключением на трех периодах и интервалом постоянной

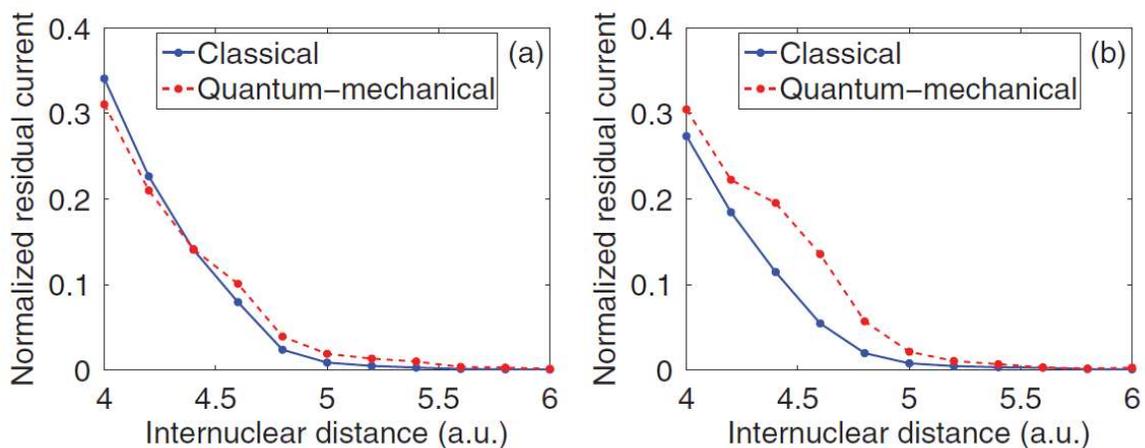


Рис. 2.14. Зависимости максимального нормированного остаточного тока от межъядерного расстояния при отношении зарядов ядер $Z_1/Z_2=1/2$ и интенсивности лазерного импульса (a) 10^{15} и (b) $3.8 \cdot 10^{15}$ Вт/см².

амплитуды длительностью в 20 периодов лазерного поля. Представленные результаты демонстрируют хорошее согласие между классической моделью и квантовомеханическими расчетами и свидетельствуют об адекватности представлений о роли кулоновского потенциала в динамике электрона, заложенных в классическую модель. Наблюдаемые на рис. 2.14 некоторые различия между представленными зависимостями, полученными в классических и квантовомеханических расчетах, объясняются несколькими факторами.

Во-первых, классическая модель пренебрегает отрывом электрона на полупериодах, когда электрическое поле имеет положительный знак (рис. 2.6с). Это приводит к некоторому завышению значений направленного тока, полученных в классических расчетах. Во-вторых, для полупериодов, когда электрическое поле отрицательно (рис. 2.6d), классическая модель пренебрегает туннелированием электрона сквозь внешний барьер (учитывается только классически разрешенное прохождение электронов над этим барьером). Это предположение приводит к занижению вычисленного классически направленного тока. В интервале параметров, при которых проводилось сравнение полученных данных, второй из указанных выше

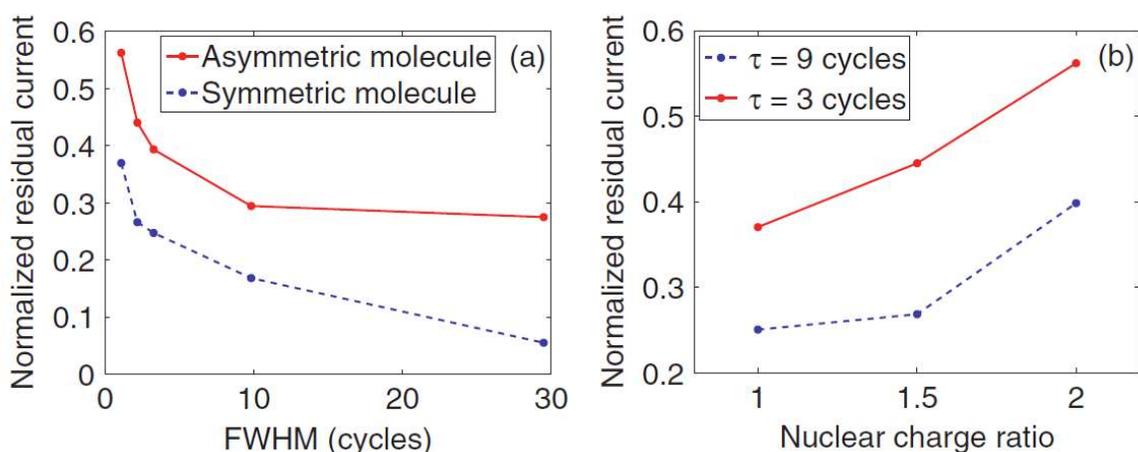


Рис. 2.15. Зависимости максимального нормированного остаточного тока от длительности лазерного импульса и соотношения зарядов ядер.

факторов оказывается более существенным, в результате чего токи на рис 2.14, полученные в классических расчетах, лежат, как правило, ниже соответствующих точек, найденных в квантовомеханических расчетах.

Отметим также, что при больших интенсивностях становится существенным вклад начальных периодов поля (с меньшей амплитудой) на фронте импульса, что приводит к возрастанию значений остаточного тока, вычисленного квантовомеханически, по сравнению со случаем монохроматического импульса, использовавшегося в классических расчетах.

На рисунке 2.15 приведены значения максимальных нормированных остаточных токов для различных длительностей импульсов и различных соотношений зарядов ядер. Из приведенных результатов следует вывод об ожидаемом значительном увеличении остаточного тока при увеличении степени асимметрии в распределении заряда внутри молекулы. Более того, в то время как для симметричной системы величина остаточного тока стремится к нулю с увеличением длительности импульса, в случае асимметричной молекулы величина нормированного тока асимптотически стремится к конечному (весьма высокому) значению. С прикладной точки

зрения весьма важно, что при использовании молекул с ненулевым дипольным моментом появляется возможность генерации остаточных токов и, как следствие, низкочастотного излучения, в квазимонохроматических импульсах.

Глава 3. Использование генерации терагерцового излучения для зондирования вращательной динамики ансамбля молекул

3.1 Существующие методы зондирования упорядоченности молекулярного ансамбля

В разделе 2.1 второй главы были описаны способы создания упорядоченных (выстроенных или ориентированных) молекулярных ансамблей. Важное значение имеет измерение степени упорядоченности молекулярных ансамблей. Существующие на сегодняшний день методы таких измерений являются, как правило, весьма дорогостоящими и сложными с экспериментальной точки зрения. Ниже кратко описаны наиболее распространенные на текущий момент методы измерения.

3.1.1 Фотодиссоциация и кулоновский взрыв

Угловое распределение заданной молекулярной оси трудно измерить прямым способом, однако данное распределение может быть измерено косвенно с помощью фотодиссоциации какой-либо связи и измерения распределения по углам разлета получившихся фрагментов молекулы. В наиболее распространенном подходе используется лазерная схема типа «накачка-зондирование». Импульс накачки производит фотодиссоциацию молекулы, а импульс зондирования ионизирует получившиеся фрагменты, и ионы переносятся на позиционно-чувствительный детектор (velocity map imaging spectrometer – VMIS [40]) электрическим полем для измерения скоростей образовавшихся компонентов. VMIS спектрометр позволяет измерять компоненты скоростей ионов, лежащие в плоскости, перпендикулярной направлению ионного пучка (на рисунке 3.1 приведено схематическое изображение VMIS). Такой подход нашел широкое применение (см., например, [71, 90]). Однако, Стапельфельдт с коллегами

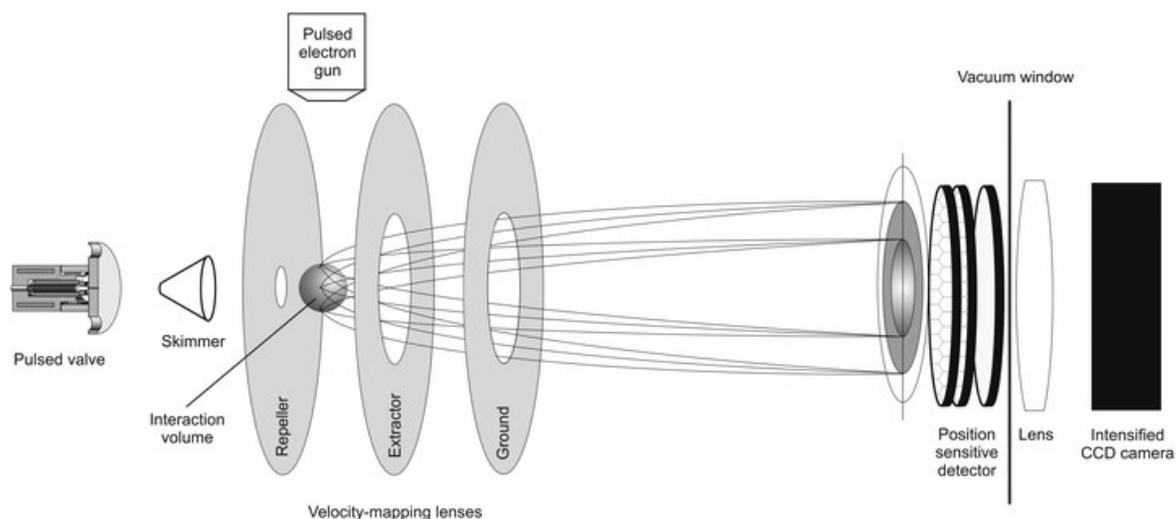


Рис. 3.1. Принцип работы VMIS спектрометра. Из работы [40].

[67] вместо двухимпульсной схемы «накачка-зондирование» использовали одиночный интенсивный фемтосекундный импульс для отрыва всех валентных электронов от молекулы. В результате такого процесса, называемого «кулоновским взрывом», получившиеся ионизированные атомы отталкиваются друг от друга вдоль направлений разорванных связей, после чего попадают на детектор. Преимущество такого подхода заключается в том, что все молекулы диссоциируют, независимо от их ориентации в пространстве, так что окончательное изображение четко отражает угловое распределение молекулярных осей в газовой мишени.

На рисунке 3.2 приведен взятый из работы [67] пример измерения для случая выстраивания лазерным импульсом молекулы йодбензола. На приведенных изображениях видны группы точек, распределенных вдоль окружностей двух радиусов, соответствующих двукратной ($C_6H_5I \Rightarrow I^+ + C_6H_5^+$, медленно разлетающиеся фрагменты) и трехкратной ($C_6H_5I \Rightarrow I^+ + C_6H_5^{2+}$, быстро разлетающиеся фрагменты) ионизации. Рисунок (а) соответствует отсутствию выстраивающего импульса, приводящему к равновероятному распределению фрагментов молекулы по углу разлета. Рисунок (б) соответствует случаю, когда ионизация, приводящая к

кулоновскому взрыву, была произведена в максимуме выстраивающего импульса. Выстраивающий импульс был поляризован по вертикали, и на рисунке можно заметить, что ионы йода разлетаются в узкий интервал углов относительно вертикальной оси, из чего следует, что молекулярные оси C-I в молекулах йодбензола были исключительно сильно поляризованы вдоль вектора напряженности электрического поля выстраивающего лазерного излучения. Усилить выстроенность можно, как упоминалось в предыдущей главе, с помощью отбора нижних или верхних вращательных состояний. На рисунках (с) и (d) приведены распределения, полученные для самого низкого и самого высокого отбираемого вращательного состояния.

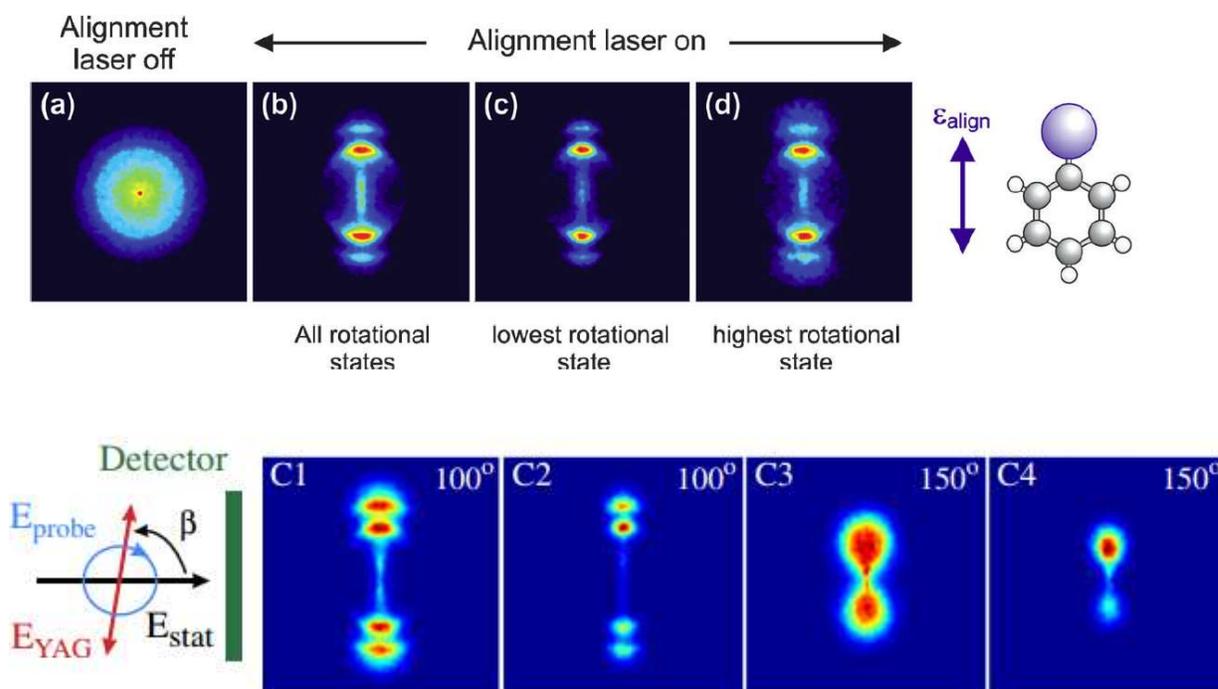


Рис. 3.2. Измерение кулоновским взрывом выстраивания молекулы йодбензола. Представлены зарегистрированные картины распределений фрагментов по поперечным компонентам скоростей: (a) – в отсутствие выстраивающего импульса, (b) – в максимуме выстраивающего импульса, (c) и (d) – в максимуме выстраивающего импульса с предварительно отобранными низкими и высокими вращательными состояниями соответственно. Случаи C1-C4 соответствуют ориентированию молекул при различных углах между лазерным и статическим полями: C1 и C3 – без селекции вращательных состояний, C2 и C4 – с отобранными вращательными состояниями. Взято из работы [67].

В случае, когда действующие на молекулярный ансамбль дополнительные внешние поля приводят к его ориентации (рис. 3.2, случаи C1-C4), метод кулоновского взрыва с использованием VMIS-спектрометрии дает изображения с нарушенной симметрией «верх-низ».

Данный метод обеспечивает детальную информацию об угловых распределениях молекул в исследуемом ансамбле, однако требует использования дорогостоящих спектрометров заряженных частиц, что сильно затрудняет широкое использование такой методики.

3.1.2 Генерация высоких гармоник

Еще одна методика измерений угловых распределений молекулярных осей основана на нелинейной конверсии интенсивного лазерного излучения в ультрафиолетовый или рентгеновский диапазон – генерации высоких гармоник. В изотропной среде при взаимодействии с интенсивным лазерным импульсом в случае отсутствия эффекта опустошения уровней (достаточно слабой ионизации) индуцированный высокочастотный дипольный момент частиц среды на соседних полупериодах лазерного поля совпадает с точностью до смены знака, что приводит к генерации сигнала, состоящего из набора нечетных гармоник. Однако в случае возникновения анизотропии в среде, а точнее – при нарушении центросимметричности из-за асимметрии в процессе ионизации на соседних полупериодах, получаемый в ходе нелинейного преобразования сигнал также будет содержать и четные гармоники. Причем, в силу нулевой интенсивности четных гармоник в изотропном случае, такое изменение спектра сигнала очень чувствительно к нарушению симметрии.

В работе Коркума с коллегами [46] представлены спектры высоких гармоник, полученные в результате взаимодействия импульса зондирования с газом охлажденных молекул CO. Для ориентирования молекул в газе использовался двухцветный лазерный импульс, содержащий компоненты с частотами ω и 2ω и играющий роль накачки в схеме «накачка-зондирование». На рисунке 3.3, взятом из работы [46], приведены спектры высоких гармоник при двух различных задержках зондирующего импульса относительно накачки. Из рисунка видно, что использование в качестве импульса накачки (pump) двухцветного лазерного поля приводит к генерации как нечетных, так и четных гармоник, при этом четные гармоники появляются при определенных значениях времени задержки.

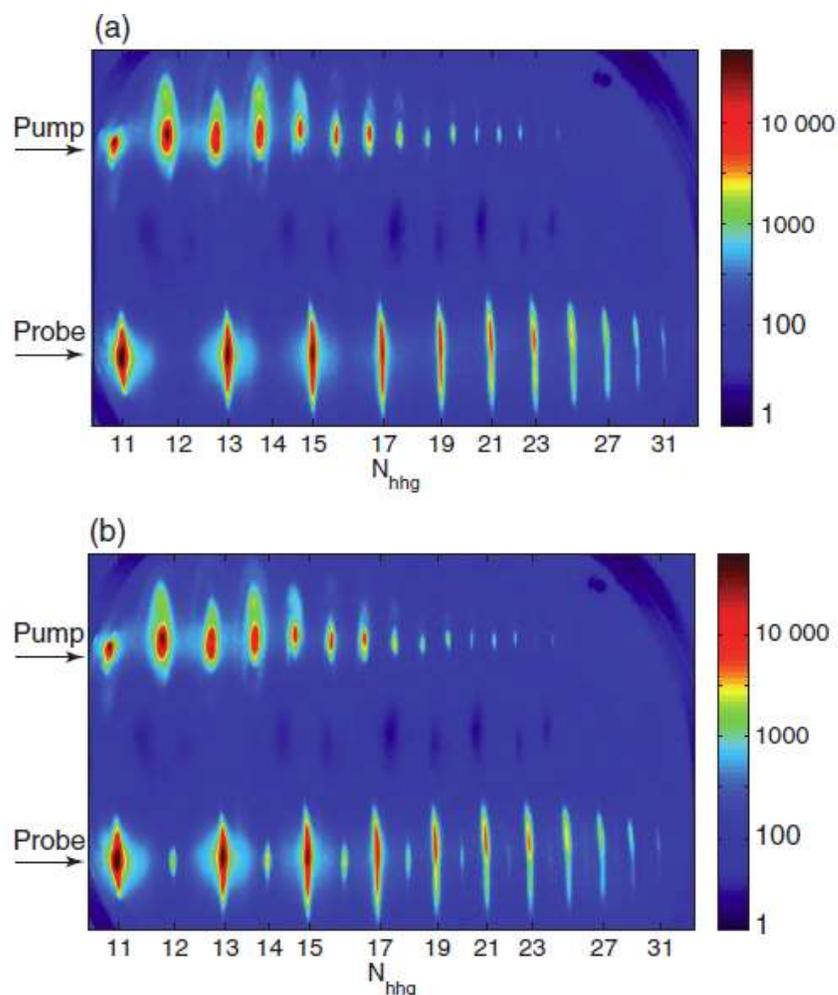


Рис. 3.3. Спектры высоких гармоник для импульса накачки (верхние спектры) и для импульса зондирования (нижние спектры) при двух различных временных задержках. (a) – 7200 фс, (b) – 8850 фс. Взято из работы [46].

Спектр, полученный после воздействия импульса зондирования (probe) с временной задержкой в 7200 фс (отсутствие ориентации), не имеет четных гармоник, а при временной задержке 8850 фс (максимальная ориентация) содержит четные гармоники. Отметим, что во втором случае временная задержка очень близка к полному времени возрождения для молекул CO (соответствующие данные приведены в предыдущей главе). Так как генерация высоких гармоник – когерентный процесс, интенсивность гармоник пропорциональна квадрату числа элементарных излучателей.

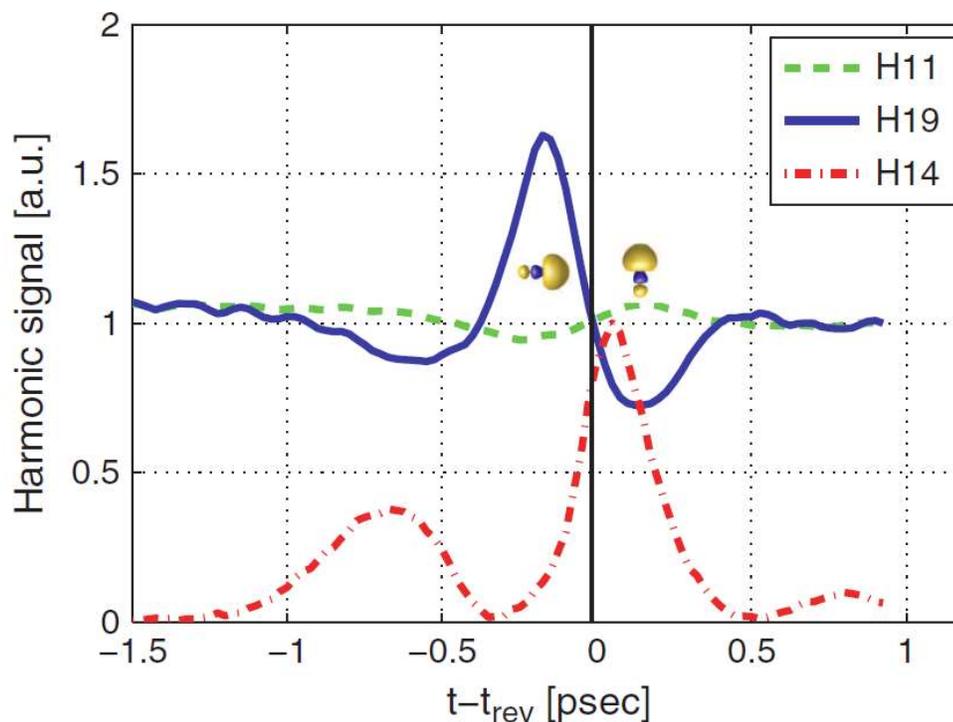


Рис. 3.4. Интенсивности высоких гармоник в зависимости от времени задержки импульса зондирования. Взято из работы [46].

Таким образом, в первом приближении отношение интенсивности четных I_{even} к интенсивности нечетных гармоник I_{odd} будет пропорционально квадрату ожидаемого косинуса угла, являющегося мерой степени ориентированности молекулярного ансамбля:

$$I_{\text{even}}/I_{\text{odd}} \sim \langle \cos\theta \rangle^2, \quad (3.12)$$

где θ – угол между осью молекулы и электрическим полем лазерного импульса.

На рисунке 3.4, также взятом из работы [46], приведены зависимости интенсивностей нескольких высоких гармоник в окрестности времени возрождения ($t=0$) от времени задержки импульса зондирования. Максимум четной гармоники достигается через 75 фс после времени возрождения, что хорошо коррелирует с соответствующими теоретическими расчетами относительно упорядочивания ансамбля (пример таких расчетов будет приведен в следующем пункте данной главы). Данный максимум

соответствует моменту времени, когда в ансамбле молекул наблюдается ярко выраженная преимущественная ориентация вдоль электрического поля лазерного импульса. Кроме того, для нечетных гармоник можно также видеть значительное изменение сигнала при задержке, соответствующей выстраиванию молекул в плоскости, перпендикулярной электрическому полю лазерного импульса. Отметим, что зависимости от времени задержки для 11-й и 19-й гармоник антикоррелируют между собой.

Таким образом, измеряя спектр генерируемых зондирующим импульсом высоких гармоник при варьировании задержки зондирующего импульса, можно получить богатую информацию относительно процесса углового упорядочивания ансамбля. Однако само по себе измерение спектра относительно слабых высоких гармоник (тем более – четных) – непростая и сравнительно дорогая операция, что можно отнести к недостаткам данного метода. Кроме того, различный характер получаемых зависимостей для различных номеров гармоник усложняет задачу их интерпретации.

3.2 Зондирование вращательной динамики ансамбля молекул по терагерцовому отклику

Результаты, представленные в главе 2 диссертации, позволяют предложить еще один способ измерения степени ориентированности молекулярного ансамбля. Этот способ, представляемый в настоящем разделе, основан на измерении терагерцового отклика среды при взаимодействии с зондирующим лазерным импульсом [6]. Идея измерения основана на выводе, что для молекул с ненулевым статическим дипольным моментом можно ожидать сильную зависимость значения генерируемого остаточного тока от угла между направлениями дипольного момента и вектора напряженности электрического поля в лазерном импульсе. Рассмотрим два частных случая: когда дипольный момент молекулы (1) параллелен и (2) перпендикулярен вектору напряженности электрического поля в лазерном импульсе. В первом случае, как показано во второй главе, остаточный ток возникает вследствие асимметрии процесса ионизации и кулоновского взаимодействия оторванного электрона с родительским ионом. В случае же, когда вектор напряженности электрического поля перпендикулярен направлению дипольного момента молекулы, асимметрии в процессе ионизации возникнуть не должно и, соответственно, остаточный ток будет равен нулю. Здесь и дальше в качестве полярного угла θ сферической системы координат выбираем угол между вектором напряженности электрического поля импульса накачки и дипольным моментом молекулы. Если распределение ансамбля молекул по полярному углу не симметрично относительно $\theta=\pi/2$, это приведет к возникновению макроскопических токов в области оптического пробоя газа молекул и, как следствие, к генерации низкочастотного излучения. Однако остаточный ток может также возникать вследствие сильной ионизации на соседних полупериодах поля и значительной асимметрии поля между этими полупериодами. Для исключения заметного влияния этих эффектов необходимо, чтобы ионизация

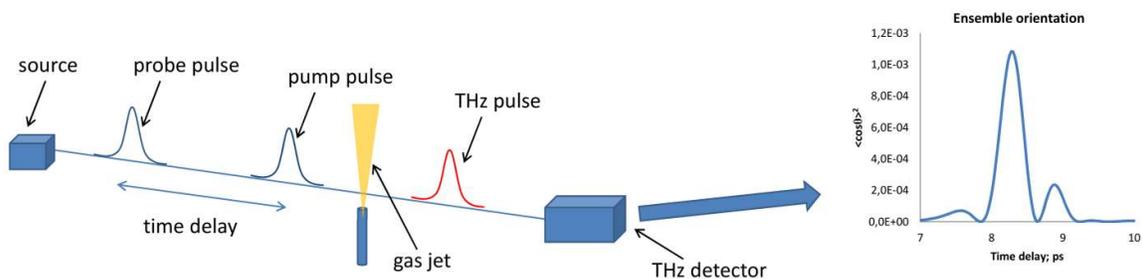


Рис. 3.5. Принцип измерения степени ориентированности молекулярного ансамбля на основе схемы «накачка-зондирование», где регистрируемым сигналом является терагерцовое излучение, генерируемое в газе.

на периоде поля лазерного импульса была незначительна, а сам импульс был квазимонохроматическим. То есть импульс должен быть относительно низкоинтенсивным и достаточно длинным, чтобы было возможно наблюдать терагерцовый отклик, обусловленный именно асимметрией частиц среды.

Ниже рассмотрена возможная экспериментальная реализация предлагаемого измерения степени ориентированности молекулярного ансамбля в схеме «накачка-зондирование». На рисунке 3.5 продемонстрирована предполагаемая схема экспериментальной установки. В схеме импульс накачки запускает вращательный волновой пакет в ансамбле частиц среды, а зондирующий импульс осуществляет их ионизацию; детектор регистрирует терагерцовое излучение, возникающее в ионизованном газе. В силу значительной разницы временных масштабов вращательной динамики молекул и генерации нелинейного ионизационного отклика можно разбить интересующий нас процесс на два этапа. Первый этап – это вращательная динамика свободного молекулярного ансамбля после воздействия ультракороткого импульса накачки, и второй – генерация нелинейного отклика при фиксированном распределении молекулярного ансамбля по углам. Такое разделение процессов вращения и генерации нелинейного отклика возможно благодаря значительной разнице временных

масштабов вращения молекулы (пикосекунды) и электронной динамики (аттосекунды).

3.2.1 Индуцируемая полем вращательная динамика молекул

Вращательную молекулярную динамику можно рассматривать, представляя молекулу в виде жесткого ротатора. В качестве примера в настоящем разделе будем рассматривать молекулу окиси углерода (CO).

В силу того, что характерное время движения ядер в поле лазерного импульса значительно больше длительности периода лазерного излучения, вращательный гамильтониан системы можно усреднить по периоду лазерного поля; получаемый в результате эффективный вращательный гамильтониан записывается как [129]:

$$H(\theta, t) = BJ(J + 1) + V_P(\theta, t) + V_H(\theta, t) + V_I(\theta, t) \quad (3.13)$$

где B – вращательная постоянная; J – полный угловой момент; θ – угол между вектором дипольного момента молекулы и вектором напряженности электрического поля лазерного импульса. Три последних слагаемых отвечают механизмам взаимодействия молекул с лазерным полем, обусловленным поляризуемостью, гиперполяризуемостью и ионизацией молекулы, соответственно [72]:

$$\begin{aligned} V_P(\theta, t) &= -\frac{1}{2} \Delta\alpha |E(t)|^2 \cos^2\theta \\ V_H(\theta, t) &= -\frac{3}{8} \beta_{xxz} |E(t)|^3 \cos\theta - \frac{1}{8} (\beta_{zzz} - 3\beta_{xxz}) |E(t)|^3 \cos^3\theta \\ V_I(\theta, t) &= -(\dot{i}/2) \Gamma_i(\theta, t) \end{aligned} \quad (3.14)$$

Здесь $\Delta\alpha$ – анизотропия поляризуемости, β_{ijk} – тензор гиперполяризуемости, а Γ_i – усредненная по периоду скорость ионизации. В качестве импульса накачки $E(t)$ будем использовать двухцветный импульс следующего вида:

$$E(t) = E_0 f(t) [\cos(\omega t) + \cos(2\omega t)] \quad (3.15)$$

Parameter	Value	Parameter	Value
B	8.7997×10^{-6}	$\Delta\alpha$	3.6
β_{zzz}	28.91	β_{xxz}	7.69
I_p	0.516	c_0	0.2214×10^{-3}
c_1	-0.2141×10^{-3}	c_2	0.0822×10^{-3}

Таблица 1. Молекулярные константы для молекулы CO. (Взято из работы [129])

$$f(t) = \begin{cases} 0 & \text{при } t < 0 \\ \sin(\pi t/2\tau) & \text{при } 0 < t < 2\tau; \tau = 30 \text{ фс} \\ 0 & \text{при } t > 2\tau \end{cases}$$

Если длительность ориентирующего импульса значительно меньше характерного времени отклика жесткого ротатора ($\tau \ll 1/B$), то гамильтониан ротатора можно записать в виде:

$$H(\theta, t) = BJ(J + 1) + [V'_p(\theta) + V'_H(\theta) + V'_I(\theta)]\delta(t), \quad (3.16)$$

где $V'_i(\theta) = \int V_i(\theta, t) dt$

($\delta(t)$ – дельта-функция Дирака). Данное приближение хорошо применимо для фемтосекундных лазерных импульсов, так как характерное время молекулярного вращательного отклика обычно равняется нескольким пикосекундам (например, для молекулы CO характерная длительность существования угловой анизотропии вблизи момента возрождения составляет 2,75 пикосекунды). В (3.5) отдельные слагаемые гамильтониана можно записать в приближенном виде (где учтены только главные зависящие от угла члены разложения по $\cos \theta$ [129]):

$$\begin{aligned} V'_p(\theta) &= -\lambda_p \cos^2 \theta \\ V'_H(\theta) &= -\lambda_H \cos \theta \\ V'_I(\theta) &= -i\lambda_I \cos \theta \end{aligned} \quad (3.17)$$

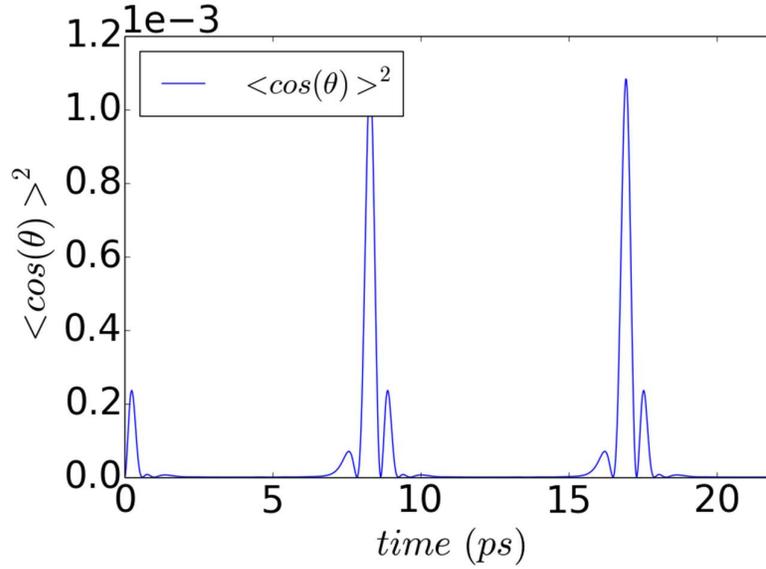


Рис. 3.6. Характерная зависимость квадрата ожидаемого косинуса полярного угла после воздействия импульса накачки на молекулы CO.

Такой вид гамильтониана приводит к тому, что волновая функция после воздействия импульса (в момент времени $t=+0$) может быть записана следующим образом:

$$|\Psi(t = +0)\rangle = \exp(i\lambda_p \cos^2 \theta + i\lambda_H \cos \theta - \lambda_I \cos \theta) |\Psi(t = 0)\rangle \quad (3.18)$$

Дальнейшая динамика может быть рассмотрена как вращение свободного жесткого ротатора с заданной начальной волновой функцией (3.7). В расчетах использовались параметры молекулы CO, приведенные в работе [129]. Значения этих параметров приведены в таблице 1. Динамика ансамбля анализировалась на основе расчета квадрата ожидаемого косинуса угла θ (ориентирование молекул) и ожидаемого квадрата косинуса угла θ (выстраивание молекул):

$$\langle \cos \theta \rangle (t) = \sum_{j,m} P_{j,m} \langle \Psi_{j,m}(t) | \cos \theta | \Psi_{j,m}(t) \rangle \quad (3.19)$$

$$\langle \cos^2 \theta \rangle (t) = \sum_{j,m} P_{j,m} \langle \Psi_{j,m}(t) | \cos^2 \theta | \Psi_{j,m}(t) \rangle,$$

где индексы j, m соответствуют начальным волновым функциям с различными квантовыми числами углового момента и его проекции на ось z , а веса $P_{j,m}$ находились исходя из больцмановского распределения по вращательным состояниям:

$$P_{j,m} = \frac{\exp\left(-\frac{BJ(J+1)}{kT}\right)}{\sum_{J'} (2J'+1) \exp\left(-\frac{BJ'(J'+1)}{kT}\right)} \quad (3.9)$$

Для расчета эволюции волновых функций молекулы СО и интересующих нас физических наблюдаемых начальная волновая функция раскладывалась по базису сферических гармоник. На рисунке 3.6 приведен пример рассчитанной зависимости $\langle \cos^2 \theta \rangle^2$ от времени при интенсивности ориентирующего импульса, равной 6×10^{13} Вт/см², и начальной температуре ансамбля 50 К. На рисунке хорошо видно, что ориентирование молекулы происходит с периодичностью, равной времени возрождения вращательного волнового пакета (8,64 пикосекунд).

3.2.2 Генерация остаточного тока ансамблем молекул с ненулевым дипольным моментом

Как было показано во второй главе, при взаимодействии линейно поляризованного лазерного импульса с молекулами, обладающими ненулевым статическим дипольным моментом, возникает остаточный ток вследствие асимметрии процесса ионизации и кулоновского взаимодействия оторванного электрона с родительским ионом. Однако в случае, когда вектор напряженности электрического поля лазерного импульса перпендикулярен направлению дипольного момента молекулы, никакой асимметрии в процессе ионизации и, соответственно, генерации остаточного тока возникнуть не должно (данное утверждение не является абсолютно строгим, но достаточно хорошо выполняется при условии квазимонохроматичности лазерного излучения и отсутствии эффекта опустошения молекулярных уровней; ниже это будет обсуждено более подробно). Таким образом, можно ожидать сильную зависимость значения генерируемого остаточного тока от угла между вектором напряженности электрического поля и направлением дипольного момента молекулы. Для исследования данной зависимости ниже численно рассмотрена одноэлектронная квантовомеханическая задача с модельным двумерным потенциалом. Ось x координатной системы выбрана вдоль оси молекулы, а возможность различной ориентации молекулярной оси учитывается тем, что вектор напряженности электрического поля линейно поляризованного лазерного импульса может составлять произвольный угол с осью молекулы. Асимметричный потенциал ионного остова записывается в следующем виде:

$$U(x, y) = -\frac{z_1}{\sqrt{0.49 + \left(x - \frac{d}{2}\right)^2 + y^2}} - \frac{z_2}{\sqrt{0.49 + \left(x + \frac{d}{2}\right)^2 + y^2}}, \quad (3.10)$$

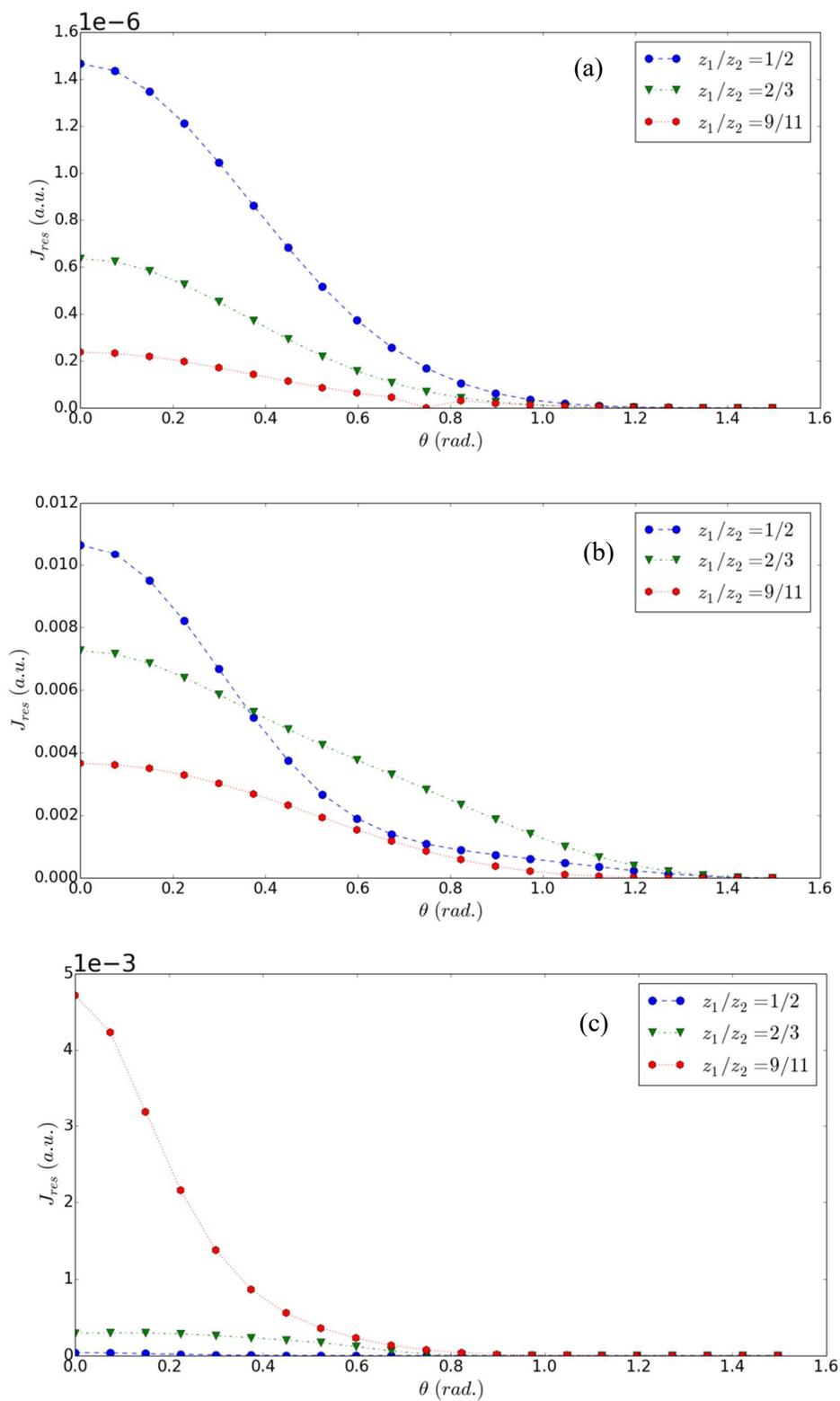


Рис. 3.7. Зависимость от угла θ квадрата параллельной компоненты остаточного тока для различных отношений зарядов ядер и межъядерных расстояний при различных интенсивностях. (a) 1.5 а.е. и 5×10^{13} Вт/см², (b) 3 а.е. и 5×10^{13} Вт/см², (c) 4.5 а.е. и 10^{13} Вт/см².

где $z_1 + z_2 = 1$ – суммарный заряд иона (рассматривались различные отношения зарядов ядер), d – межъядерное расстояние, которое также варьировалось в расчетах. Считалось, что ионизирующий импульс имеет гауссову форму огибающей и длительность τ , равную 30 периодам по полувысоте; центральная длина волны лазерного излучения считалась равной 800 нм (титан-сапфировый лазер):

$$E = E_0 \exp\left(-\ln(4) * \left(\frac{4t}{\tau}\right)^2\right) * \cos(\omega t) \text{ при } -\frac{\tau}{2} < t < \frac{\tau}{2}; \lambda = 800 \text{ нм} \quad (3.11)$$

Интенсивность лазерного импульса для каждого межъядерного расстояния подбиралась отдельно, чтобы избежать сильной ионизации (в численном эксперименте рассматривались процессы с ионизацией за время импульса не больше 10%); при этом наблюдаемая генерация остаточного тока будет в основном обусловлена асимметрией потенциала (как уже упоминалось, при сильной ионизации ток может генерироваться также вследствие неэквивалентности вкладов от соседних полупериодов лазерного поля, что является нежелательным эффектом в интересующей нас постановке задачи). На рисунках 3.7 и 3.8 приведены, для различных межъядерных расстояний и отношений зарядов ядер, зависимости от угла θ компонент остаточного тока, генерируемого в направлении вектора напряженности электрического поля (параллельная компонента, рис. 3.7) и в перпендикулярном направлении (перпендикулярная компонента, рис. 3.8) соответственно.

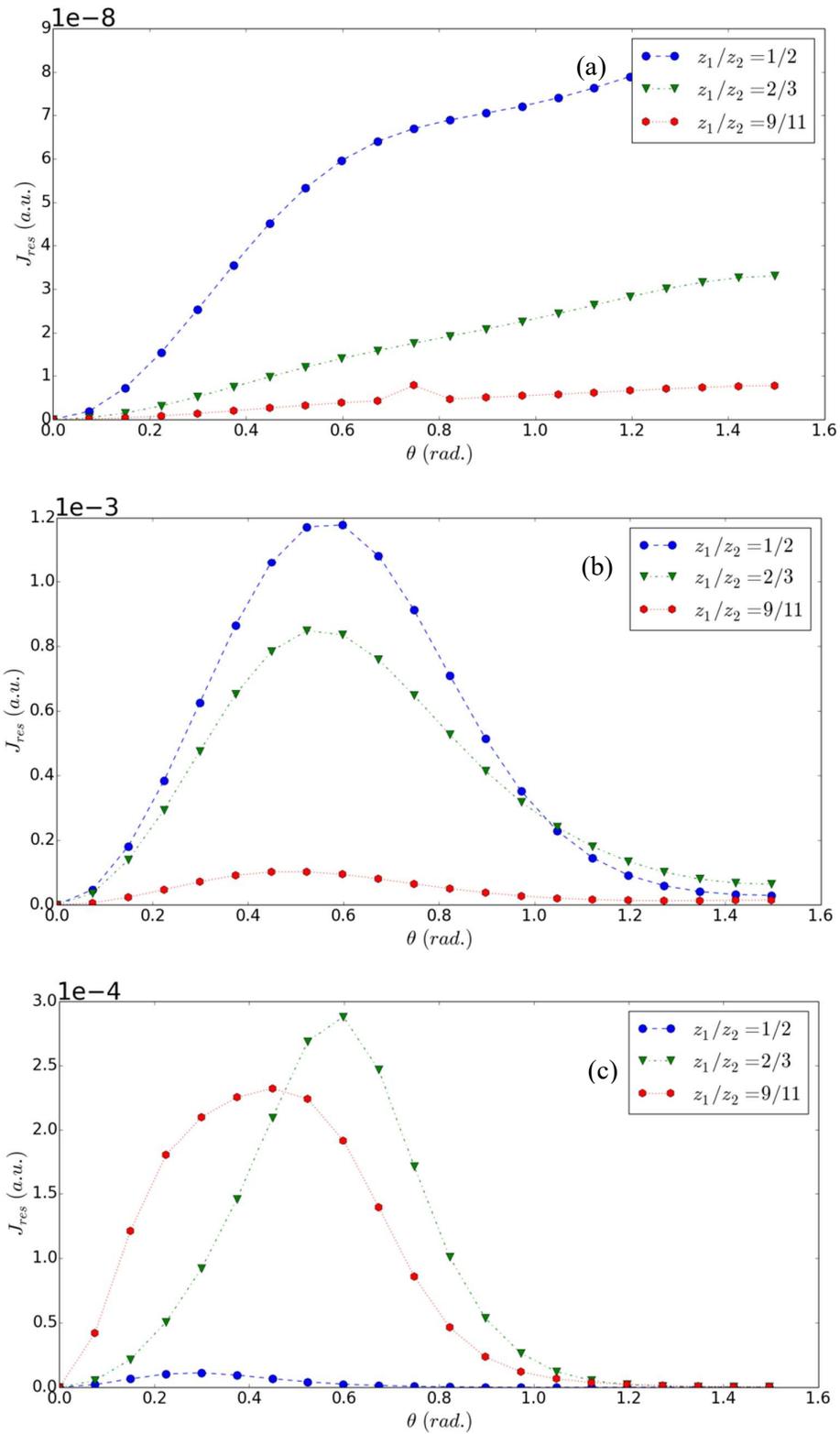


Рис. 3.8. Зависимость от угла θ квадрата перпендикулярной компоненты остаточного тока для различных отношений зарядов ядер и межъядерных расстояний при различных интенсивностях (таких же, как на рис. 3.7).

Из результатов для перпендикулярной компоненты остаточного тока видно, что для малых значений межъядерного расстояния рассуждения о симметричности процесса ионизации при перпендикулярной ориентации дипольного момента молекулы по отношению к вектору напряженности электрического тока ($\theta = \pi/2$) не вполне справедливы, так как в поперечном направлении генерируется остаточный ток (см. кривые на рис 3.8(а) при $\theta \rightarrow \pi/2$). Это связано с тем, что при неравных зарядах ядер волновая функция преимущественно локализована около ядра с более высоким зарядом. При отрыве электрона под действием поля лазерного импульса на электрон, независимо от направления отрыва, со стороны ядра с меньшим зарядом действует кулоновская сила, всегда направленная в одну сторону. Это в свою очередь, приводит к генерации перпендикулярной к электрическому полю компоненты остаточного тока (рис. 3.9).

Следует, однако, отметить, что в интересующей нас задаче перпендикулярная компонента элементарного тока не приводит к возникновению макроскопического тока, так как предполагается, что в исходном состоянии ансамбля направления проекции молекулярной оси на плоскость (x, y) равновероятны. И если под воздействием импульса накачки функция распределения по полярному углу меняется, то распределение по азимутальному углу остается равновероятным. Таким образом, усредненное значение перпендикулярной компоненты остаточного тока всегда будет иметь нулевое значение.

Для молекул с относительно большими межъядерными расстояниями вероятность ионизации может значительно различаться для различной степени асимметрии потенциала (в том числе из-за упомянутого ранее во второй главе эффекта ускоренной ионизации), и при заданной интенсивности сильно отклоняться от желаемых 10%. Это приводит к тому, что остаточный ток определяется не только асимметрией потенциала и его величина может сильно меняться под влиянием ряда факторов. Именно поэтому на рис. 3.7

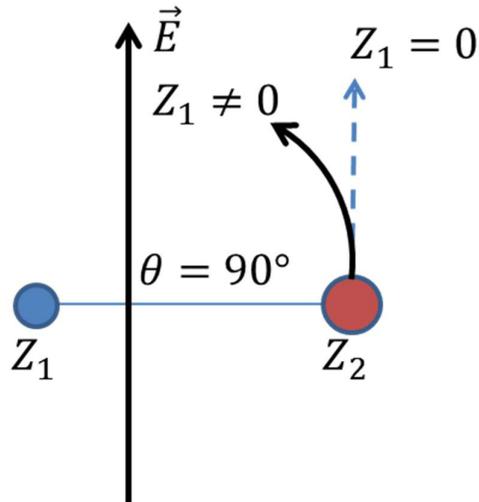


Рис. 3.9. Траектория электрона при отрыве от асимметричного молекулярного остова в поле, перпендикулярном оси молекулы. Пунктирная кривая – предельный случай бесконечно малого заряда Z_1 , сплошная кривая – случай не нулевого заряда Z_1 . Притяжение со стороны 1-го ядра искривляет траекторию электрона, приводя к ненулевому току вдоль оси молекулы.

значения тока для молекул с межъядерным расстоянием 4.5 а.е. выше для меньшей степени асимметрии; это связано с тем, что вероятность ионизации для небольшой асимметрии близка к 100%, в то время как для отношения зарядов 1 к 2 она составляет 10%.

Зная зависимость распределения ансамбля молекул по полярному углу от времени после воздействия ультракороткого импульса накачки (определяемую не чем иным как зависимостью волновой функции ротатора от времени, метод получения которой описан в предыдущем пункте) и зависимость эффективности генерации остаточного тока от угла между векторами дипольного момента молекулы и напряженности электрического поля зондирующего лазерного импульса, легко получить временную зависимость ожидаемого значения остаточного тока:

$$\langle J_{res} \rangle (t) = \sum_{j,m} P_{j,m} \langle \Psi_{j,m}(t) | J_{res}(\theta) | \Psi_{j,m}(t) \rangle \quad (3.12)$$

В свою очередь, как неоднократно упоминалось, эффективность генерации терагерцового излучения из среды пропорциональна квадрату ожидаемого значения остаточного тока. На рисунке 3.10 приведены вычисленные для различных межъядерных расстояний характерные временные зависимости квадрата ожидаемого значения остаточного тока в предложенной схеме «накачка-зондирование». Вычисления проведены для различных отношений эффективных зарядов ядер. При вычислениях использованы полученные ранее волновые функции $\Psi_{j,m}(t)$ для молекулы CO. Приведены результаты, полученные при начальной температуре ансамбля $T=50$ К и интенсивности импульса накачки 6×10^{13} Вт/см². На основании полученных зависимостей можно констатировать, что зондирование по терагерцовому отклику динамики упорядоченности молекулярного ансамбля должно обеспечивать высокую степень контрастности для широкого диапазона параметров молекул и зондирующих импульсов. Практически при всех рассмотренных параметрах потенциала поведение квадрата ожидаемого остаточного тока как функции от времени задержки между импульсами накачки и зондирования качественно совпадает с зависимостью квадрата ожидаемого косинуса полярного угла для жесткого ротатора, моделирующего поведение молекулы CO.

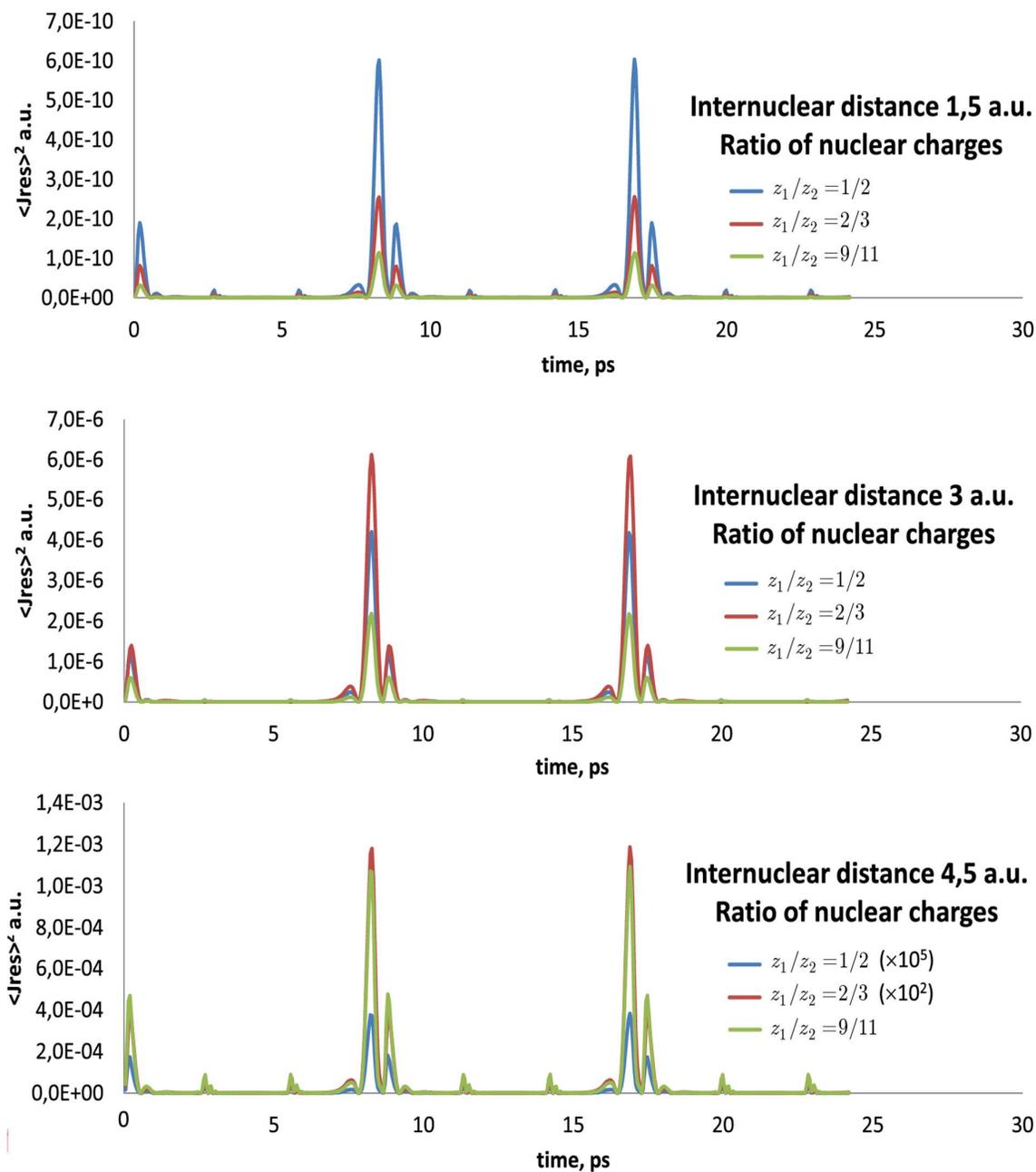


Рис. 3.10. Зависимость квадрата ожидаемого остаточного тока от временной задержки между импульсами накачки и зондирования для различных отношений зарядов ядер и различных межъядерных расстояний.

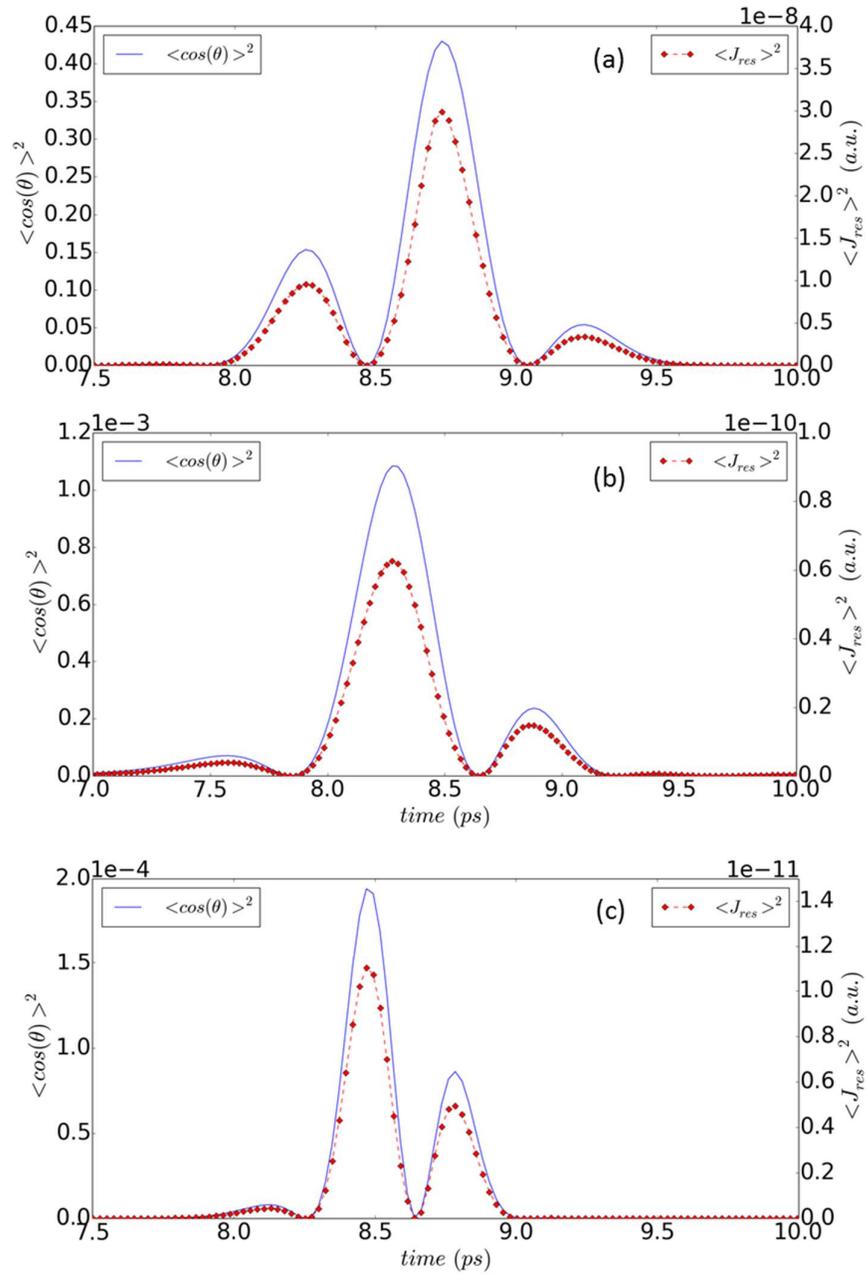


Рис. 3.11. Зависимость квадрата ожидаемого остаточного тока (точки) от временной задержки между импульсами накачки и зондирования для молекулы СО при различных значениях интенсивности импульса накачки и температуры ансамбля. Сплошные кривые соответствуют зависимости квадрата ожидаемого косинуса угла от времени при тех же условиях. (a) $I = 1.5 \times 10^{14}$ Вт/см², $T = 50$ К; (b) $I = 6 \times 10^{13}$ Вт/см², $T = 50$ К; (c) $I = 6 \times 10^{13}$ Вт/см², $T = 290$ К.

Для моделирования взаимодействия импульса зондирования с молекулой CO был подобран двумерный модельный потенциал, для которого статический дипольный момент и потенциал ионизации совпадают с соответствующими значениями в молекуле CO. Значение дипольного момента составляет 0,0432 атомных единицы; потенциал ионизации равен 0,515 атомным единицам, а межъядерное расстояние равно 2,13 атомным единицам.

Указанным значениям соответствуют следующие параметры потенциала: отношение зарядов ядер Z_2/Z_1 равно 1,05; параметр сглаживания равен $\alpha=0,25$ (вместо 0,49 в формуле (3.10)) и межъядерное расстояние равно 2,13. На рисунке 3.11 сопоставлены временные зависимости квадрата ожидаемого косинуса угла и квадрата ожидаемого значения остаточного тока для различных интенсивностей импульса накачки и различных начальных температур ансамбля молекул CO.

Из приведенных результатов видно, что зависимость энергии терагерцового сигнала от времени задержки будет в целом воспроизводить соответствующую зависимость квадрата ожидаемого косинуса угла с точностью до калибровочного коэффициента (отметим, однако, наблюдаемые небольшие различия этих двух зависимостей, которые могут быть обусловлены вкладами от высших моментов молекулярного углового распределения). Получение данного калибровочного коэффициента, и, как следствие, количественное измерение степени упорядоченности молекулярного ансамбля, по-видимому, возможно только при проведении соответствующих полных квантовомеханических расчетов. Однако сама по себе данная зависимость позволяет получить информацию о состоянии и вращательной динамике молекулярного ансамбля. Например, на основе спектра полученной зависимости (энергии терагерцового импульса от времени задержки импульса зондирования) можно судить об относительной заселенности вращательных уровней молекулярного ансамбля после

воздействия импульса накачки на ансамбль. А получаемая информация о временных интервалах, в течение которых наблюдается высокая степень ориентированности молекулярного ансамбля, важна при осуществлении различного рода экспериментов с ориентированными определенным образом молекулами, в том числе в смеси различных изотопов.

На основе результатов численных расчетов можно утверждать, что предложенный способ измерения обладает высокой степенью контрастности, так как в отсутствие ориентированности молекулярного ансамбля терагерцовый сигнал из области пробоя стремится к нулю, то есть полезный сигнал детектируется на нулевом фоне. Для обеспечения высокой контрастности измерений необходимыми являются два условия: 1) квазимонохроматичность лазерного излучения и 2) невысокий (не более 50%) уровень ионизации газа. Оба условия необходимы для исключения паразитных (с точки зрения предложенного метода) механизмов генерации остаточного тока. Так, в случае использования очень короткого лазерного импульса или при быстрой ионизации газа симметрия процесса ионизации будет нарушена в силу различной вероятности отрыва электрона на соседних полупериодах лазерного излучения независимо от ориентированности молекулярного ансамбля, и остаточный ток в среде будет возбуждаться даже при случайном распределении молекул по углам. Поэтому используемое для зондирования лазерное излучение должно иметь умеренную интенсивность и достаточно большую длительность для исключения паразитных эффектов. Вместе с тем, длительность зондирующего лазерного импульса не должна превышать характерных временных масштабов вращательной динамики исследуемого газа, а интенсивность должна быть достаточной для индуцирования терагерцового сигнала, превышающего порог детектирования, в моменты возникновения высокой ориентированности молекулярного ансамбля. Комбинируя вышеописанные ограничения, для

каждого исследуемого газа можно получить диапазон рабочих параметров зондирующего лазерного излучения.

К достоинствам предложенного метода стоит отнести его применимость для зондирования вращательной динамики широкого класса полярных молекул и возможность исследования такой динамики в плотных средах, для которых слабо применимы другие методики зондирования (основанные на «кулоновском взрыве» или на детектировании сигнала высоких гармоник). Следует, в частности, ожидать, что данный метод позволит наблюдать предсказанное недавно явление ориентационного эха в газе полярных молекул [76] (аналогичное, более легко обнаружимое явление эха выстроенности неполярных молекул наблюдалось в работе [76] в тепловом ансамбле молекул CO_2 путем измерения сигнала двулучепреломления, возникающего при выстраивании молекул). Более того, наличие в сигнале остаточного тока вклада от высших моментов молекулярного углового распределения создает благоприятные условия для возможного наблюдения в ансамбле полярных молекул эффекта дробного эха (в данном случае – ориентационного), обсуждавшегося в недавней работе [75].

В целом предложенный подход отличается сравнительной простотой реализации экспериментальных измерений, так как, в отличие от описанных в начале данной главы методов, не требует глубокого вакуума и дорогостоящих спектрометров заряженных частиц, а также, как в случае использования генерации высоких гармоник, реализации фазового синхронизма между лазерным и генерируемым излучением. К тому же предлагаемый метод является полностью оптическим.

3.2.3 Генерация остаточного тока ансамблем молекул с нулевым дипольным моментом

В предыдущем пункте был предложен подход к зондированию вращательной динамики ансамбля полярных молекул, однако во многом схожий подход можно реализовать для ансамбля неполярных молекул.

Для неполярных молекул, вследствие повышенной симметрии по сравнению со случаем полярных молекул, пропадают вышеуказанные механизмы генерации остаточных токов, связанные с отсутствием центральной симметрии у полярных молекул. Симметрию ионизационного процесса в данном случае, как и в случае атомарных газов, можно, однако, нарушить путём использования двухцветного лазерного импульса. При этом в молекулярных газах анизотропия потенциала молекулярного остова может обуславливать чувствительность возникающих остаточных токов к наклону молекулярных осей по отношению к электрическому полю лазерного импульса. Действительно, теоретические расчеты и экспериментальные измерения, проведенные для ряда молекул (см., например, [140, 92, 112]), показывают, что скорость туннельной ионизации молекулы в линейно-поляризованном лазерном поле обладает ярко выраженной зависимостью от угла между электрическим полем ионизирующего импульса и молекулярной осью. При этом форма наблюдаемой угловой зависимости, как правило, определяется в основном симметрией углового распределения вероятности валентной электронной орбитали, из которой происходит ионизация. Как результат, скорость ионизации определенным образом выстроенных молекул может в несколько раз превышать соответствующие значения для других углов выстраивания или для случайного распределения направлений молекулярных осей. Поскольку в ионизационных процессах, приводящих к возникновению макроскопических токов, величина этих токов зависит от вероятности ионизации, можно ожидать наблюдения угловых зависимостей

возбуждаемых токов, подобных вышеупомянутым угловым зависимостям скорости ионизации.

В ходе работы над диссертацией было выявлено, что описываемый выше подход для неполярных молекул был независимо реализован экспериментально [153, 69] и экспериментальные результаты хорошо объясняются угловыми зависимостями скорости ионизации. Однако в настоящей диссертации проведено более тщательное по сравнению с вышеуказанными работами исследование физических причин сильной зависимости остаточных токов от угла выстраивания молекул и выявлено, что кулоновские эффекты тоже могут играть значительную роль в формировании наблюдаемых угловых зависимостей.

Как и в предыдущем пункте, были проведены численные квантовомеханические расчёты в рамках приближения одного активного электрона для двумерной модели, описываемой потенциалом вида (3.10) с одинаковым зарядом ядер $Z=0.5$. Параметры потенциала подбирались таким образом, чтобы значения межъядерного расстояния и потенциала ионизации совпадали с соответствующими значениями для молекулы N_2 . Этому требованию соответствуют значения $\alpha = 0.13$ и $d = 2.075$.

В качестве зондирующего (ионизирующего) импульса использовалось высокоинтенсивное двухцветное лазерное поле, содержащее компоненты на фундаментальной частоте (соответствующей излучению титан-сапфирового лазера с длиной волны 800 нм) и её второй гармонике. Предполагалось, что ионизирующий импульс имеет гауссову форму огибающей и полную длительность на уровне половинной интенсивности, равную 30 периодам поля на основной частоте; электрическое поле ионизирующего импульса представлялось в виде

$$E = E_0 \exp\left(-\ln(4) * \left(\frac{4t}{\tau}\right)^2\right) * [\cos(\omega t) + K_2 f(t) \cos(2\omega t + \varphi)] \quad (3.13)$$

Огибающая для компоненты поля на второй гармонике задавалась в соответствии с обычно используемым в эксперименте (см., например, [159]) методом генерации второй гармоники с помощью нелинейного кристалла, т.е. функция $f(t)$ выбиралась равной $\exp\left(-\ln(4) * \left(\frac{4t}{\tau}\right)^2\right)$, а относительная фаза φ и отношение амплитуд K_2 являлись варьируемыми параметрами задачи.

Эволюция волновой функции электрона, взаимодействующего с ионизирующим полем, как и остаточный ток, возникающий при ионизации молекулы лазерным импульсом, находились по аналогии с моделью в предыдущем пункте.

На рис. 3.12 представлены вычисленные для рассматриваемой здесь модели молекулы N_2 зависимости квадрата ненормированного (а) и нормированного на вероятность ионизации (б) остаточного тока J_{res}^2 от угла θ при интенсивности лазерного излучения на основной частоте $I = 5 \times 10^{13}$ Вт/см², отношении амплитуд полей $K_2 = 0.1$ и различных значениях относительной фазы φ между компонентами двухцветного поля.

Результаты расчетов показывают, что в приведенном случае молекулы N_2 в широком диапазоне значений фазы φ как ненормированный (рис. 3.12а), так и нормированный на вероятность ионизации (рис. 3.12б) остаточные токи, как правило, уменьшаются с ростом угла θ от 0 (параллельное выстраивание молекул относительно электрического поля лазерного импульса) до $\pi/2$ (перпендикулярное выстраивание). Наблюдаемая на рис. 3.12а общая тенденция к уменьшению остаточного тока по мере перехода от параллельного к перпендикулярному выстраиванию молекулярной оси по отношению к электрическому полю лазерного импульса в определенной мере обусловлена аналогичным характером угловой зависимости скорости ионизации молекулы N_2 . Однако наблюдаемый в расчетах закон спадания остаточного тока с увеличением угла выстраивания, как правило, не полностью согласуется с экспериментально измеренной [92] угловой

зависимостью скорости ионизации молекулы азота. Это свидетельствует о том, что скорость ионизации не является единственным фактором, определяющим наблюдаемый вид зависимости квадрата остаточного тока от угла θ и описание наблюдаемых зависимостей в опубликованных ранее экспериментальных работах [153, 69] не является полным.

Данное предположение подтверждается представленными на рис. 3.12б угловыми зависимостями квадрата остаточного тока, разделенного на скорость ионизации. Вычисленная таким образом нормированная величина J_{res}^2 по-прежнему спадает с увеличением угла θ в широком диапазоне значений фазы φ . Наличие таких зависимостей может быть объяснено влиянием кулоновских эффектов на исследуемый нами процесс. В предыдущих главах нами было показано, что воздействие кулоновского потенциала атомарного или молекулярного остова на отрываемый электрон оказывает значительное влияние на величину направленных токов, генерируемых при ионизации частиц газа в интенсивном лазерном поле. В рассматриваемой здесь задаче анизотропия двухцветового кулоновского потенциала молекулярного остова даёт вклад в соответствующую анизотропию генерируемого остаточного тока. При различных временных профилях двухцветного электрического поля, соответствующих различным значениям относительной фазы φ , и при различных углах вылета электронов относительно направления молекулярной оси классические траектории отрываемых электронов в разной степени подвержены влиянию кулоновского поля, чем и объясняются наблюдаемые зависимости остаточных токов от параметров φ и θ .

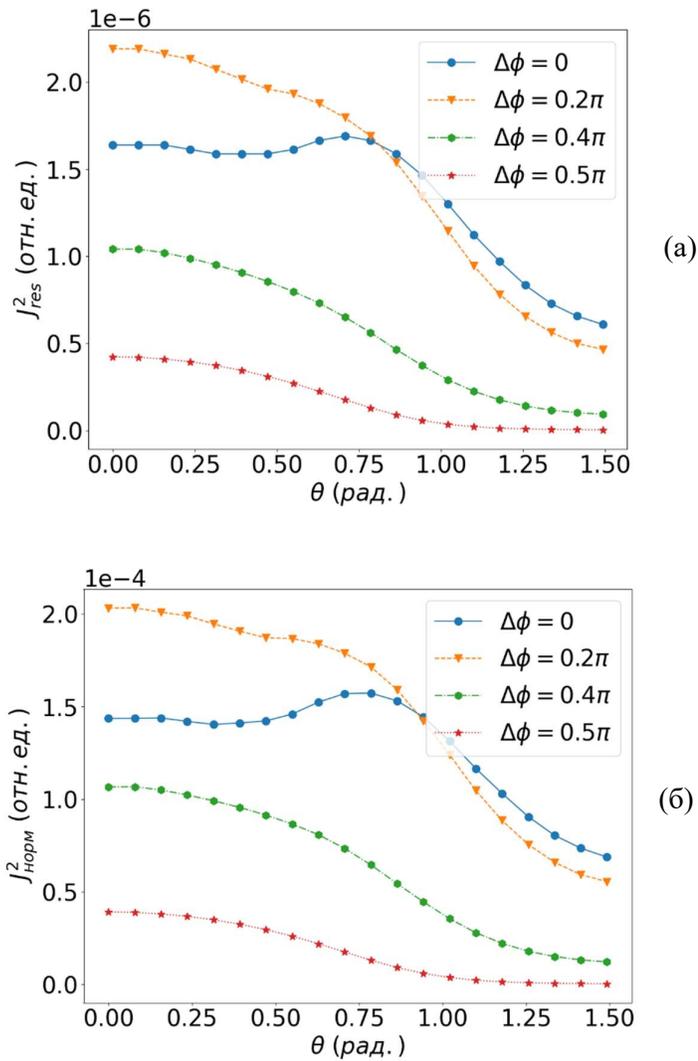


Рис. 3.12. Зависимость квадрата ненормированного (а) и нормированного на вероятность ионизации (б) остаточного тока от угла θ между вектором напряженности электрического поля в двухцветном линейно поляризованном лазерном импульсе и осью молекулы N_2 . Интенсивность лазерного излучения на основной частоте равна 5×10^{13} Вт/см², отношение амплитуд второй гармоники и поля на основной частоте равно 0.1. Приведены результаты для разных значений относительной фазы ϕ между компонентами двухцветного лазерного поля.

Наличие такого однозначного соответствия между направлением молекулярной оси и величиной возникающего при ионизации остаточного тока создает хорошие предпосылки для использования генерации терагерцового излучения как эффективного средства диагностики степени

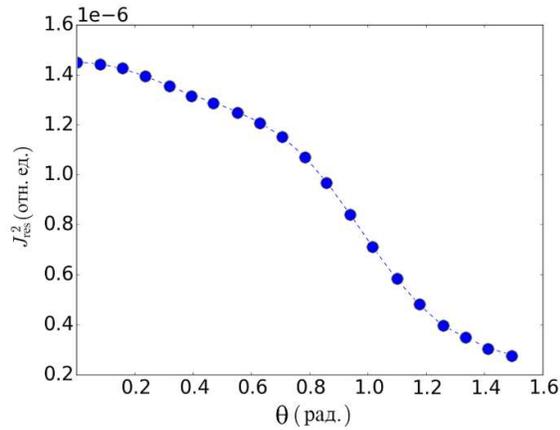


Рис. 3.13. То же, что на рис. 3.12, но для остаточного тока, усредненного по относительной фазе φ .

угловой упорядоченности молекулярного ансамбля. Заметим, однако, что при небольших значениях относительной фазы φ (меньше или порядка 0.1π) монотонность зависимости $J_{\text{res}}^2(\theta)$ нарушается (см. кривую для $\varphi=0$ на рис. 3.12), что может затруднять интерпретацию получаемых экспериментальных данных. С другой стороны, следует иметь в виду, что в условиях реального эксперимента, в особенности при наличии заметного уровня ионизации среды, контролировать величину относительной фазы φ весьма непросто. В частности, из-за дисперсии возникающей неоднородной плазмы значения фазового сдвига в разных точках среды становятся различными. В связи с этим большой интерес представляет рассмотрение усреднённого по относительной фазе φ остаточного тока [5].

На рис. 3.13 представлена зависимость квадрата усреднённого по φ остаточного тока от угла θ . Из рисунка следует, что, хотя в области малых значений относительной фазы зависимость $J_{\text{res}}^2(\theta)$ немонотонна, и эта область характеризуется значительно большими остаточными токами по сравнению с областью больших φ (см. рис. 3.12), в результате усреднения по φ результирующая зависимость квадрата остаточного тока всё же

оказывается монотонной, что значительно предпочтительнее с точки зрения практических применений.

Далее рассмотрим результаты численных расчетов, моделирующих экспериментальное измерение вращательной динамики ансамбля неполярных молекул методом «накачка-зондирование». По аналогии с предыдущим пунктом численные расчеты могут быть разбиты на две независимые стадии: на первой стадии рассматривается вращательная динамика свободного молекулярного ансамбля после воздействия импульса накачки, а на второй стадии для разных моментов времени вычисляется нелинейный отклик на воздействие зондирующего импульса при соответствующем данному моменту времени фиксированном распределении молекулярного ансамбля по углам выстраивания.

Вращательная динамика после воздействия ультракороткого импульса накачки для рассматриваемых здесь в качестве примера молекул N_2 моделировалась с использованием подхода, предложенного в работе [129]. В качестве накачки использовался двухцветный лазерный импульс, электрическое поле которого записывается в следующем виде:

$$E(t) = E_0 f(t) [\cos(\omega t) + \cos(2\omega t)] \quad (3.14)$$

где $f(t) = \sin\left(\frac{\pi t}{2\tau_p}\right)$, $0 < t < 2\tau_p$, $\tau_p = 30$ фс. Для анализа молекулярной вращательной динамики рассчитывалось по формуле (3.8) зависящее от времени ожидаемое значение квадрата косинуса угла θ , являющееся общепринятой характеристикой степени выстроенности молекулярного ансамбля.

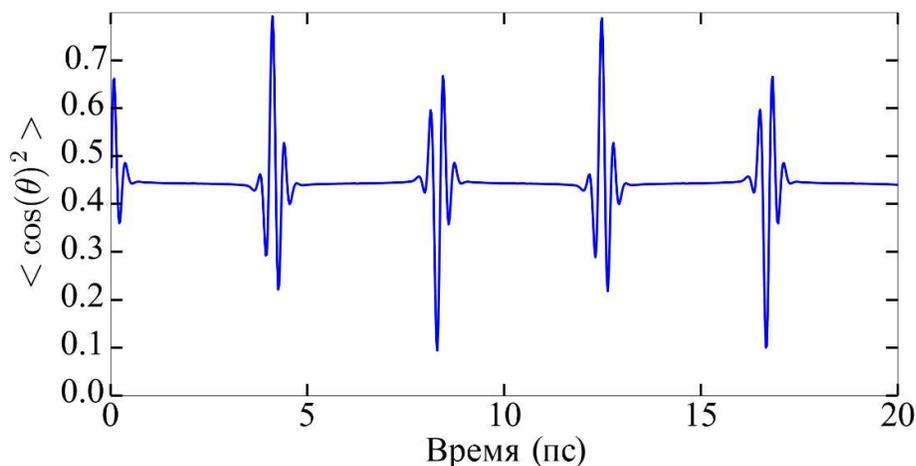


Рис. 3.14. Временная зависимость ожидаемого значения квадрата косинуса угла выстраивания молекул N_2 после воздействия импульса накачки с интенсивностью 5×10^{14} Вт/см². Начальная температура ансамбля равна 50 К. Аномальная выстроенность молекул наблюдается вблизи моментов дробных (с кратностью 1/2) и полных возрождений вращательного волнового пакета

На рис. 3.14 приведен пример рассчитанной зависимости величины $\langle \cos^2\theta \rangle$ от времени при интенсивности выстраивающего импульса, равной 1.5×10^{14} Вт/см², и начальной температуре ансамбля 50 К. На рисунке хорошо видно, что в течение определенных интервалов времени вблизи моментов, соответствующих дробным (кратность возрождения 1/2, $t \sim 4.2$ пс, 12.6 пс и т.д.) и полным (кратность возрождения 1, $t \sim 8.4$ пс, 16.8 пс и т.д.) возрождениям вращательного волнового пакета, наблюдается аномальная выстроенность молекул. Отметим, что наблюдаемое на рис. 3.14 фоновое значение величины $\langle \cos^2\theta \rangle$ превышает значение 1/3, соответствующее случайному распределению направлений молекулярных осей. Причина этого состоит в том, что импульс накачки инициирует рамановские переходы в возбужденные вращательные состояния, при которых вращательное квантовое число j возрастает, а проекция момента m , в соответствии с дипольными правилами отбора, остается неизменной [92]. Заселяемые таким образом вращательные состояния соответствуют вращению жесткого волчка в плоскости с уменьшенным наклоном относительно оси квантования, что

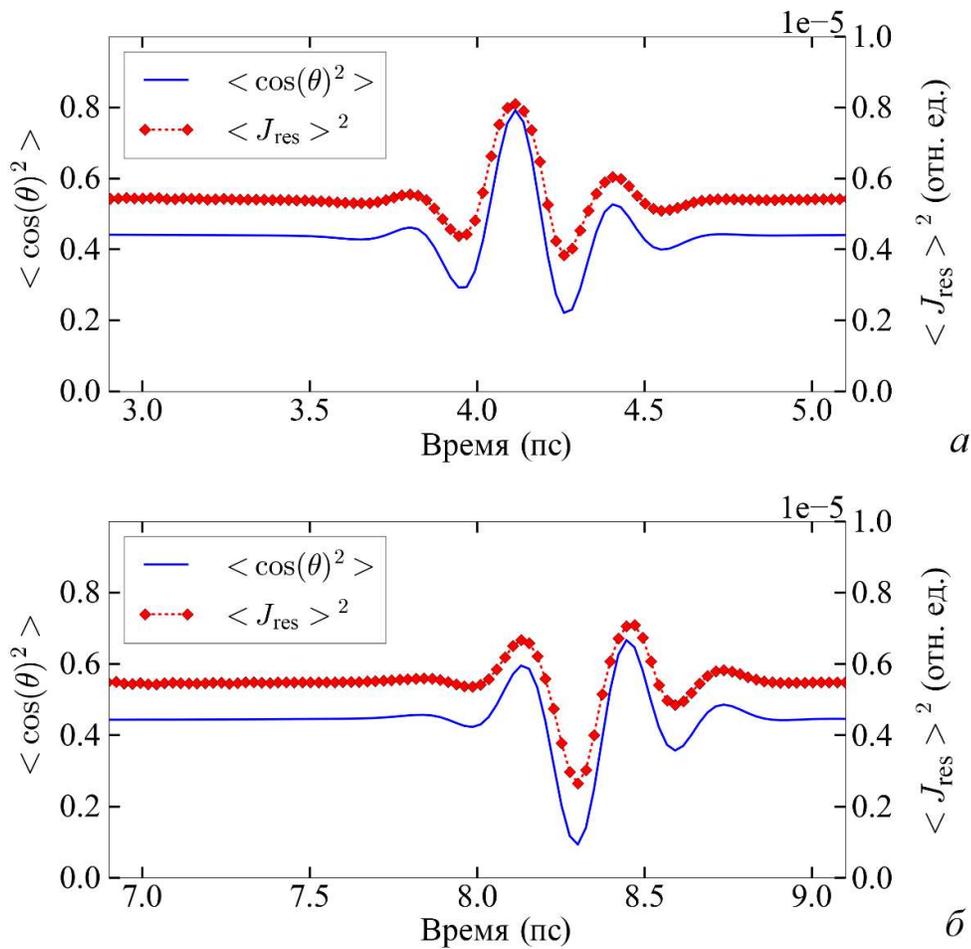


Рис. 3.15. Зависимости квадрата остаточного тока (точки) и ожидаемого значения квадрата косинуса угла θ (сплошные кривые) от времени задержки между импульсами накачки и зондирования. Представленные интервалы времен задержки соответствуют первым моментам (а) дробного (с кратностью 1/2) и (б) полного возродений вращательного волнового пакета. Интенсивность выстраивающего импульса равна 1.5×10^{14} Вт/см², температура молекулярного ансамбля $T = 50$ К.

приводит к появлению некоторой повышенной средней выстроенности молекулярных осей по сравнению с их исходным изотропным распределением.

На завершающей стадии расчетов вычислялся усредненный по ансамблю остаточный ток, возбуждаемый пробным импульсом при различных временах задержки t . Для этого использовались результаты проведенных ранее расчетов одночастичного остаточного тока как функции от угла выстраивания θ и результаты анализа свободной эволюции вращательного

волнового пакета, т.е., аналогично (3.8), остаточный ток $J_{\text{res}}^2(\theta)$ усреднялся по найденным для различных моментов времени угловым распределениям всего молекулярного ансамбля (см. формулу (3.12)).

На рис. 3.15 приведены примеры зависимостей усредненного по ансамблю молекул N_2 остаточного тока от времени задержки зондирующего импульса вблизи первых моментов дробного (рис. 3.15а) и полного (рис. 3.15б) возрождений вращательного волнового пакета, рассчитанных для тех же значений интенсивности выстраивающего импульса и начальной температуры молекулярного ансамбля, что и на рис. 3.14. Для сравнения на рис. 3.15 также приведены соответствующие фрагменты временной зависимости величины $\langle \cos^2\theta \rangle(t)$, представленной на рис. 3.14

Результаты, представленные на рис. 3.15, показывают, что квадрат величины генерируемого в молекулярном газе макроскопического ионизационного тока сильно коррелирует со средним по ансамблю квадратом косинуса угла наклона оси молекулы по отношению к выделенному направлению в лабораторной системе. Необходимо отметить, что в рассмотренном случае температуры газа 50 К величина остаточного тока вблизи моментов полных или дробных возрождений возбужденных в среде молекулярных вращательных волновых пакетов может изменяться более чем в два раза. В силу прямой связи между величинами генерируемого в среде остаточного тока и сигнала терагерцового излучения можно сделать вывод о том, что проведенные исследования подтверждают возможность эффективного зондирования вращательной динамики ансамбля неполярных молекул по генерируемому в нем терагерцовому излучению. Отметим также, что, поскольку при достаточно низких температурах может достигаться степень выстроенности молекул, близкая к 100% (см. [28] и цитируемую литературу), выстраивание молекул можно рассматривать как одно из возможных средств повышения эффективности генерации терагерцового излучения при оптическом пробое молекулярных газов.

Заключение

Ниже перечислены **основные результаты**, полученные в диссертации:

1. На основе полного квантовомеханического и полуклассического рассмотрения исследовано явление возбуждения остаточных макроскопических токов при пробое газа двухцветным лазерным импульсом, содержащим излучение на основной и удвоенной частоте. Показано, что оптимальная с точки зрения эффективности генерации остаточного тока относительная фазовая задержка между излучением на основной и удвоенной частоте монотонно зависит от интенсивности лазерного импульса.
2. На основе сопоставления результатов квантовомеханического и полуклассического рассмотрения зависимость оптимальной фазовой задержки между излучением на основной и удвоенной частоте от интенсивности лазерного импульса объяснена как результат конкуренции двух различных механизмов генерации остаточного тока, один из которых обусловлен действием лазерного поля на оторванный электрон, а второй – действием кулоновского потенциала родительского иона. Показано, что в области высоких интенсивностей лазерного излучения доминирует первый механизм, а в области низких интенсивностей – второй.
3. На основе численного интегрирования одномерного уравнения Шредингера исследована возможность модификации процесса ионизации в длинном лазерном импульсе за счет асимметрии потенциала ионизируемой частицы, а также рассмотрено влияние длительности, интенсивности и фазы заполнения импульса на величину возбуждаемого остаточного тока. Показано, что взаимодействие отрываемого электрона с родительским ионом является основной причиной возникновения больших остаточных токов при ионизации асимметричных систем. Продемонстрировано,

что эффективность генерации остаточного тока при ионизации асимметричных систем значительно выше по сравнению со случаем симметричных систем при любой длительности лазерного импульса.

4. Предложен новый полностью оптический метод измерения степени угловой упорядоченности и вращательной динамики молекулярного ансамбля. В основе метода лежит измерение энергии терагерцового излучения, генерируемого в ходе ионизации интенсивным фемтосекундным импульсом ансамбля молекул, подвергнутых воздействию ориентирующего ультракороткого лазерного импульса. В проведенных численных экспериментах, моделирующих зондирование вращательной динамики газа из молекул CO по схеме «накачка-зондирование», продемонстрирована высокая чувствительность предложенного метода зондирования и его применимость для широкого набора молекул.

Приложения

4.1 Детали численного интегрирования одноэлектронного уравнения Шредингера

Для квантовомеханического описания эволюции волновой функции электрона $\Psi(x, t)$ в поле лазерного импульса, а также для нахождения стационарных состояний электрона в атоме или молекуле использовался метод операторного расщепления («сплит-степ» метод) с использованием быстрого преобразования Фурье [44] (более подробно данный метод описан в Приложении 4.3). Здесь отметим несколько особенностей квантовомеханических расчетов, проводившихся в работе. Для минимизации артефактов, которые могут возникать при вычислении волновой функции на конечной расчетной сетке, использовался мнимый граничный потенциал вида:

$$U^*(x) = 100 * \left(\tanh \left(0,2 * \left| x - \frac{L_{mesh}}{2} \right| - \left(\frac{L_{mesh}}{2} + 6 \right) \right) - 1 \right) \quad (\text{П. 1})$$

Форма и параметры граничного потенциала продиктованы требованиями отсутствия отражения элементов волнового пакета, выходящих за пределы расчетной сетки, а также их эффективного поглощения. В противном случае в силу свойств дискретного преобразования Фурье данные элементы могут возникать на противоположной границе расчетной сетки. Размер сетки L_{mesh} определялся исходя из оценки радиуса колебаний классического электрона в заданном переменном поле: $L_{mesh} > 4R_{osc}$, где $R_{osc} = E/\omega^2$. Дискретизация сетки (шаги в пространстве и времени) осуществлялась так, чтобы обеспечить устойчивость решения, достаточным условием которой является сохранение собственного (начального) состояния электрона на сетке на временах, больших расчетных в отсутствие внешнего поля. Кроме того, для корректного описания взаимодействия электрона с полем на шаг по времени накладывалось дополнительное условие – набег фазы волновой функции на

одном шаге по времени должен быть значительно меньше 2π . В целом на расчетах это сказывается таким образом, что чем более глубокий и острый потенциал используется, тем меньшим должен быть шаг по времени. Для повышения надежности результатов и меньшей зависимости от численной реализации в работе использовались два метода нахождения стационарных состояний – мнимого и действительного времени (описаны в Приложении 4.3).

4.2 Численные алгоритмы и методы

4.2.1 Метод операторного расщепления с использованием быстрого преобразования Фурье

Суть метода достаточно легко пояснить на примере одномерного нестационарного уравнения Шредингера, имеющего вид:

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi(x, t) = \hat{H}(x, t) \Psi(x, t) \quad (\text{П. 2})$$

где гамильтониан содержит импульсную и координатную части:

$$\hat{H}(x, t) = \frac{\hat{p}^2}{2} + \hat{U}(x, t) = \hat{H}_p(p) + \hat{H}_x(x, t) \quad (\text{П. 3})$$

Решение уравнения (П. 14) можно представить в операторном виде:

$$\Psi(x, t) = e^{-i\hat{H}(x,t)t} \Psi_0(x, 0) \quad (\text{П. 4})$$

Тогда, учитывая, что представления волновой функции в импульсном и координатном пространстве связаны через преобразование Фурье \hat{F} , решение для волновой функции в момент $t+dt$ можно записать в следующем приближенном виде

$$\Psi(x, t + dt) = \hat{F}^{-1} \left(e^{-iH_p(p)dt} \hat{F} \left(e^{-iH_x(x,t)dt} \Psi(x, t) \right) \right) \quad (\text{П. 5})$$

В численных расчетах применялись быстрое дискретное преобразование Фурье (*FFT*) и уточненная схема:

$$\Psi(x, t + \Delta t) = \left(e^{-iH_x(x,t)\Delta t/2} FFT^{-1} \left(e^{-iH_p(p)\Delta t} FFT \left(e^{-iH_x(x,t)\Delta t/2} \Psi(x, t) \right) \right) \right) \quad (\text{П. 6})$$

Необходимо отметить, что даже для одномерного случая эффективная параллелизация вычислений в рамках данного метода весьма затруднительна, что накладывает ограничения на объемы проводимых вычислений. В многомерном случае возможна частичная параллелизация за счет сведения к одномерным преобразованиям, однако в конечном счете эффективность и такой параллелизации тоже невысока, особенно при использовании протокола MPI, что связано с необходимостью пересылки между ячейками практически всего массива волновой функции на каждом шаге по времени. Скорость такой процедуры значительно ниже скорости одномерного дискретного преобразования Фурье.

4.2.2 Метод мнимого времени

Метод мнимого времени использовался в работе для нахождения собственных электронных волновых функций. В данном методе, как следует из названия, в решении нестационарного уравнения Шредингера осуществляется переход к мнимому времени, в результате чего вместо (П. 16) имеем:

$$\Psi(x, t') = e^{-\hat{H}(x,t')t'} \Psi_0(x, 0), \quad (\text{П. 7})$$

что приводит к экспоненциальному росту амплитуд всех стационарных состояний, содержащихся в произвольном начальном распределении $\Psi_0(x, 0)$. Наибольший инкремент будет иметь основное состояние, в силу того, что энергия этого собственного состояния наибольшая по абсолютному значению. Выбирая для нормировки какую-либо точку x_0 , близкую к максимуму искомого состояния, мы можем следить за изменениями отношения величин волновых функций в данной точке на соседних шагах по времени и перенормировать волновую функцию по окончании каждого шага, деля ее на это отношение:

$$\Psi(x, t' + \Delta t') = e^{-\hat{H}(x, t')\Delta t'} \Psi(x, t'), \quad (\text{П. 8})$$

$$C = \frac{\Psi(x_0, t' + \Delta t')}{\Psi(x_0, t')}, \quad (\text{П. 9})$$

$$\Psi(x, t') = \Psi(x, t')/C. \quad (\text{П. 10})$$

Из того, что величина C выходит на постоянное значение, следует, что вклад возбужденных состояний становится пренебрежимо мал. Если нас интересует какое-либо возбужденное собственное состояние, то для его нахождения на каждом шаге из волновой функции необходимо вычитать проекции на все более низкие состояния, которые необходимо найти до этого.

4.2.3 Метод действительного времени

Напомним, что эволюцию волновой функции можно представить в виде:

$$\Psi(x, t) = e^{-i\hat{H}(x, t)t} \Psi(x, 0) = \sum_n a_n \Psi_n e^{-iE_n t} \quad (\text{П. 11})$$

где Ψ_n и E_n – волновые функции и энергии стационарных состояний. Для нахождения собственных значений энергии можем рассмотреть корреляционную функцию:

$$P(t) = \langle \Psi(0) | \Psi(t) \rangle = \sum_n |a_n|^2 e^{-iE_n t} \quad (\text{П. 12})$$

Максимумы спектра данной корреляционной функции $\tilde{P}(E)$ будут соответствовать энергиям собственных состояний:

$$\tilde{P}(E) = \hat{F}\omega(t)P(t) = \sum_n |a_n|^2 \alpha(E - E_n) \quad (\text{П. 13})$$

где функции α описывают спектральный профиль возникающих резонансных линий (из-за дискретности осуществляемых преобразований эти функции отличаются от дельта-функции Дирака). Рассматривая волновую функцию, помноженную на $e^{-iE_0 t}$:

$$\tilde{\Psi}(x, t) = \Psi(x, t)e^{-iE_0 t} = a_0 \Psi_0 + \sum_{n=1} a_n \Psi_n e^{-i\Delta E_n t} \quad (\text{П. 14})$$

можно заметить, что при усреднении ее по времени вклады всех состояний, кроме состояния с энергией E_0 , будут стремиться к нулю:

$$\frac{1}{T} \int_0^T \tilde{\Psi}(x, t) dt = a_0 \Psi_0 + \frac{1}{T} \int_0^T \sum_{n=1} a_n \Psi_n e^{-i\Delta E_n t} dt \quad (\text{П. 15})$$

Аналогично находятся и волновые функции возбужденных состояний.

4.3 Системы единиц. Атомная система единиц

В квантовой механике и атомной физике для краткости записи уравнений часто используется атомная система единиц. В этой системе единицами массы и заряда являются, соответственно, масса и заряд электрона; расстояния измеряются в радиусах первой боровской орбиты электрона в атоме водорода, а единицей времени является время, за которое электрон на первой боровской орбите совершает поворот на один радиан. Численные значения основных используемых в работе атомных единиц:

Время: $1 \text{ а.е.} = 2,42 \times 10^{-17} \text{ с.}$

Расстояние: $1 \text{ а.е.} = 5,29 \times 10^{-11} \text{ м.}$

Скорость: $1 \text{ а.е.} = c/137 = 2,18 \times 10^7 \text{ м/с.}$

Интенсивность излучения: $1 \text{ а.е.} = 3,5 \times 10^{16} \text{ Вт/см}^2$

Список литературы

1. M. Abu-samha and L. B. Madsen, Photoelectron angular distributions from polar molecules probed by intense femtosecond lasers // *Phys. Rev. A*. 2010. V. 82, № 4. Art. no. 043413.
2. H. Akagi, T. Otobe, A. Staudte, A. Shiner, F. Turner, R. Dörner, D. M. Villeneuve, and P. B. Corkum, Laser tunnel ionization from multiple orbitals in HCl // *Science*. 2009. V. 325, № 5946. P. 1364-1367.
3. S. Akturk, A. Couairon, M. Franco, and A. Mysyrowicz, Spectrogram representation of pulse self compression by filamentation // *Opt. Express*. 2008. V. 16, № 22, P. 17626-17636.
4. L. N. Alexandrov, M. Yu. Emelin, and M. Yu. Ryabikin, Unidirectional current excitation in tunneling ionization of asymmetric molecules // *Phys. Rev. A*. 2013. V. 87, № 1. Art. no. 013414.
5. L. N. Alexandrov, M. Yu. Emelin, and M. Yu. Ryabikin, Coulomb effects in directional current excitation in the ionization of gas by a two-color laser field // *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 2014. V. 47, № 20. Art. no. 204028.
6. L. N. Alexandrov, M. Yu. Emelin, and M. Yu. Ryabikin, Probing the field-free orientation dynamics of polar molecules using laser-induced THz wave generation // *Mol. Phys.* 2017. V. 115, № 15-16. P. 1797-1802.
7. A. V. Andreev and S. Yu. Stremoukhov, Terahertz-radiation generation in the ionization-free regime of light-atom interaction // *Phys. Rev. A*. 2013. V. 87, № 5. Art. no. 053416.
8. V. A. Andreeva, O. G. Kosareva, N. A. Panov, D. E. Shipilo, P. M. Solyankin, M. N. Esaulkov, P. González de Alaiza Martínez, A. P. Shkurinov, V. A. Makarov, L. Bergé, and S. L. Chin, Ultrabroad terahertz spectrum generation from an air-based filament plasma // *Phys. Rev. Lett.* 2016. V. 116, № 6. Art. no. 063902.

9. A. A. Andronov, Yu. N. Nozdryn, and V. N. Shastin, Tunable FIR lasers in semiconductors using hot holes // *Infrared Phys.* 1987. V. 27, № 1. P. 31–38.
10. V. Aquilanti, D. Ascenzi, D. Cappelletti, and F. Pirani, Velocity dependence of collisional alignment of oxygen molecules in gaseous expansions // *Nature.* 1994. V. 371, № 6496. P. 399-402.
11. D. H. Auston and P. R. Smith, Generation and detection of millimeter waves by picosecond photoconductivity // *Appl. Phys. Lett.* 1983. V. 43, № 7. P. 631–633.
12. D. H. Auston, K. P. Cheung, J. A. Valdmanis, and D. A. Kleinman, Cherenkov radiation from femtosecond optical pulses in electro-optic media // *Phys. Rev. Lett.* 1984. V. 53, № 16. P. 1555–1558.
13. I. Sh. Averbukh and N. F. Perelman, Fractional revivals: Universality in the long-term evolution of quantum wave packets beyond the correspondence principle dynamics // *Phys. Lett. A.* 1989. V. 139, № 9. P. 449-453.
14. I. Babushkin, W. Kuehn, C. Köhler, S. Skupin, L. Bergé, K. Reimann, M. Woerner, J. Herrmann, and T. Elsaesser, Ultrafast spatiotemporal dynamics of terahertz generation by ionizing two-color femtosecond pulses in gases // *Phys. Rev. Lett.* 2010. V. 105, № 5. Art. no. 053903.
15. M. I. Bakunov, S. B. Bodrov, and E. A. Mashkovich, Terahertz generation with tilted-front laser pulses: dynamic theory for low-absorbing crystals // *J. Opt. Soc. Am. B.* 2011. V. 28, № 7. P. 1724–1734.
16. A. V. Balakin, A. V. Borodin, I. A. Kotelnikov, and A. P. Shkurinov, Terahertz emission from a femtosecond laser focus in a two-color scheme // *J. Opt. Soc. Am. B.* 2010. V. 27, № 1. P. 16–26.
17. A. S. Barker, Jr., and R. Loudon, Response functions in the theory of Raman scattering by vibrational and polariton modes in dielectric crystals // *Rev. Mod. Phys.* 1972. V. 44, № 1. P. 18-47.
18. M. Bass, P. A. Franken, J. F. Ward, and G. Weinreich, Optical rectification // *Phys. Rev. Lett.* 1962. V. 9, № 11. P. 446–448.

19. M. Beck, H. Schäfer, G. Klatt, J. Demsar, S. Winnerl, M. Helm, and T. Dekorsy, Impulsive terahertz radiation with high electric fields from an amplifier-driven large-area photoconductive antenna // *Opt. Express*. 2010. V. 18, № 9. P. 9251–9257.
20. L. Bergé, S. Skupin, C. Köhler, I. Babushkin, and J. Herrmann, 3D numerical simulations of THz generation by two-color laser filaments // *Phys. Rev. Lett.* 2013. V. 110, № 7. Art. no. 073901.
21. F. Blanchard et al, Generation of 1.5 μ J single-cycle terahertz pulses by optical rectification from a large aperture ZnTe crystal // *Opt. Express*. 2007. V. 15, № 20. P. 13212–13220.
22. A. V. Bogatskaya, E. A. Volkova, and A. M. Popov, Generation and amplification of sub-THz radiation in a rare gases plasma formed by a two-color femtosecond laser pulse // *Laser Phys. Lett.* 2018. V. 15, № 6. Art. no. 065301.
23. A. V. Borodin, N. A. Panov, O. G. Kosareva, V. A. Andreeva, M. N. Esaulkov, V. A. Makarov, A. P. Shkurinov, S. L. Chin, and X.-C. Zhang, Generation of 0.9-mJ THz pulses in DSTMS pumped by a Cr:Mg₂SiO₄ laser // *Opt. Lett.* 2013. V. 38, № 11. P. 1906-1908.
24. E. Bründermann, H. P. Röser, W. Heiss, E. Gornik, and E. E. Haller, High repetition rate far-infrared p-type germanium hot hole lasers // *Appl. Phys. Lett.* 1995. V. 67, № 24. P. 3543–3545.
25. J. Bulthuis, J. J. van Leuken, and S. Stolte, Hexapole state selection and focusing vs. brute force orientation of beam molecules // *J. Chem. Soc. Faraday Trans.* 1995. V. 91, № 2. P. 205-214.
26. T. Y. Chang, T. J. Bridges, and E. G. Burkhardt, Cw submillimeter laser action in optically pumped methyl fluoride, methyl alcohol, and vinyl chloride gases // *Appl. Phys. Lett.* 1970. V. 17, № 6. P. 249–251.
27. W. Chen, Y. Huang, C. Meng, J. Liu, Z. Zhou, D. Zhang, J. Yuan, and Z. Zhao, Theoretical study of terahertz generation from atoms and aligned molecules

- driven by two-color laser fields // *Phys. Rev. A*. 2015. V. 92, № 3. Art. no. 033410.
28. Q. Cheng, J. Liu, X. Zhou, D. Yue, Q. Meng, Field-free molecular alignment induced by a super-Gaussian laser pulse // *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 2018. V. 51, № 6. Art. no. 065401.
29. M. Clerici et al, Wavelength scaling of terahertz generation by gas ionization // *Phys. Rev. Lett.* 2013. V. 110, № 25. Art. no. 253901.
30. D. J. Cook and R. M. Hochstrasser, Intense terahertz pulses by four-wave rectification in air // *Opt. Lett.* 2000. V. 25, № 16. P. 1210–1212.
31. P. B. Corkum, Plasma perspective on strong-field multiphoton ionization // *Phys. Rev. Lett.* 1993. V. 71, № 13. P. 1994–1997.
32. H. Dai and J. Liu, Phase dependence of the generation of terahertz waves from two-color laser-induced gas plasma // *J. Opt.* 2011. V. 13, №5. Art. no. 055201.
33. J. Dai, N. Karpowicz, and X.-C. Zhang, Coherent polarization control of terahertz waves generated from two-color laser-induced gas plasma // *Phys. Rev. Lett.* 2009. V. 103, № 2. Art. no. 023001.
34. A. G. Davies, A. D. Burnett, W. Fan, E. H. Linfield, and J. E. Cunningham, Terahertz spectroscopy of explosives and drugs // *Mater. Today*. 2008. V. 11, № 3. P. 18-26.
35. S. De et al, Field-free orientation of CO molecules by femtosecond two-color laser fields // *Phys. Rev. Lett.* 2009. V. 103, № 15. Art. no. 153002.
36. T. Dekorsy, V. A. Yakovlev, W. Seidel, M. Helm, and F. Keilmann, Infrared-phonon–polariton resonance of the nonlinear susceptibility in GaAs // *Phys. Rev. Lett.* 2003. V. 90, № 5. Art. no. 055508.
37. L. Dhar, J. A. Rogers, and K. A. Nelson, Time-resolved vibrational spectroscopy in the impulsive limit // *Chem. Rev.* 1994. V. 94, № 1. P. 157–193.

38. P. Dietrich, N. H. Burnett, M. Ivanov, and P. B. Corkum, High-harmonic generation and correlated two-electron multiphoton ionization with elliptically polarized light // *Phys. Rev. A*. 1994. V. 50, № 5. Art. no. R3585(R).
39. J. H. Eberly, N. B. Narozhny, and J. J. Sanchez-Mondragon, Periodic spontaneous collapse and revival in a simple quantum model // *Phys. Rev. Lett.* 1980. V. 44, № 20. P. 1323-1326.
40. A. T. G. B. Eppink and D. H. Parker, Velocity map imaging of ions and electrons using electrostatic lenses: Application in photoelectron and photofragment ion imaging of molecular oxygen // *Rev. Sci. Instrum.* 1997. V. 68, № 9. P. 3477-3484.
41. C. Fattinger and D. Grischkowsky, Terahertz beams // *Appl. Phys. Lett.* 1989. V. 54, № 6. P. 490–492.
42. F. Filsinger, J. Küpper, G. Meijer, L. Holmegaard, J. H. Nielsen, I. Nevo, J. L. Hansen, and H. Stapelfeldt, Quantum-state selection, alignment, and orientation of large molecules using static electric and laser fields // *J. Chem. Phys.* 2009. V. 131, № 6. Art. no. 064309.
43. B. Fischer, M. Hoffmann, H. Helm, G. Modjesch, and P. U. Jepsen, Chemical recognition in terahertz time-domain spectroscopy and imaging // *Semicond. Sci. Technol.* 2005. V. 20, № 7. P. S246–S253.
44. J. A. Fleck, Jr., J. R. Morris, and M. D. Feit, Time-dependent propagation of high energy laser beams through the atmosphere // *Appl. Phys.* 1976. V. 10, № 2. P. 129-160.
45. B. Friedrich and D. Herschbach, Alignment and trapping of molecules in intense laser fields // *Phys. Rev. Lett.* 1995. V. 74, № 23. P. 4623-4626.
46. E. Frumker, C. T. Hebeisen, N. Kajumba, J. B. Bertrand, H. J. Wörner, M. Spanner, D. M. Villeneuve, A. Naumov, and P. B. Corkum, Oriented rotational wave-packet dynamics studies via high harmonic generation // *Phys. Rev. Lett.* 2012. V. 109, № 11. Art. no. 113901.

47. J. A. Fülöp, Z. Ollmann, C. Lombosi, C. Skrobol, S. Klingebiel, L. Pálfalvi, F. Krausz, S. Karsch, and J. Hebling, Efficient generation of THz pulses with 0.4 mJ energy // *Opt. Express*. 2014. V. 22, № 17. P. 20155–20163.
48. S. Ganichev and W. Prettl. Intense terahertz excitation of semiconductors. Oxford: Oxford University Press, 2005.
49. O. Ghafur, A. Rouzée, A. Gijsbertsen, W. K. Siu, S. Stolte, and M. J. J. Vrakking, Impulsive orientation and alignment of quantum-state-selected NO molecules // *Nature Phys*. 2009. V. 5, № 4. P. 289-293.
50. V. B. Gildenburg and N. V. Vvedenskii, Optical-to-THz wave conversion via excitation of plasma oscillations in the tunneling-ionization process // *Phys. Rev. Lett*. 2007. V. 98, № 24. Art. no. 245002.
51. R. E. Glover, III and M. Tinkham, Transmission of superconducting films at millimeter-microwave and far infrared frequencies // *Phys. Rev*. 1956. V. 104, № 3. P. 844-845.
52. I. S. Gregory, C. Baker, W. R. Tribe, M. J. Evans, H. E. Beere, E. H. Linfield, A. G. Davies, and M. Missous, High resistivity annealed low-temperature GaAs with 100 fs lifetimes // *Appl. Phys. Lett*. 2003. V. 83, № 20. P. 4199–4201.
53. A. Hadni, A short history of 50 years of research in the far infrared: 1952–2002 // *Int. J. Infrared Millim. Waves*. 2003. V. 24, № 2. P. 91–118.
54. H. Hamster, A. Sullivan, S. Gordon, W. White, and R. W. Falcone, Subpicosecond, electromagnetic pulses from intense laser–plasma interaction // *Phys. Rev. Lett*. 1993. V. 71, № 17. P. 2725-2728.
55. P. W. Harland, W.-P. Hu, C. Vallance, and P. R. Brooks, Spatial deorientation of upper-Stark-state-selected supersonic beams of CH₃F, CH₃Cl, CH₃Br, and CH₃I // *Phys. Rev. A*. 1999. V. 60, № 4. P. 3138-3143.
56. E. S. Harmon, M. R. Melloch, J. M. Woodall, D. D. Nolte, N. Otsuka, and C. L. Chang, Carrier lifetime versus anneal in low temperature growth GaAs // *Appl. Phys. Lett*. 1993. V. 63, № 16. P. 2248–2250.

- 57.M. Harwit, The Herschel mission // *Adv. Space Res.* 2004. V. 34, № 3. P. 568–572.
- 58.C. P. Hauri, C. Ruchert, C. Vicario, and F. Ardana, Strong-field single-cycle THz pulses generated in an organic crystal // *Appl. Phys. Lett.* 2011. V. 99, № 16. Art. no. 161116.
- 59.J. Hebling, A. G. Stepanov, G. Almási, B. Bartal, and J. Kuhl, Tunable THz pulse generation by optical rectification of ultrashort laser pulses with tilted pulse fronts // *Appl. Phys. B: Lasers Opt.* 2004. V. 78, № 5. P. 593–599.
- 60.J. Hebling, G. Almási, I. Kozma, and J. Kuhl, Velocity matching by pulse front tilting for large-area THz-pulse generation // *Opt. Express.* 2002. V. 10, № 21. P. 1161–1166.
- 61.H. Hirori, A. Doi, F. Blanchard, and K. Tanaka, Single-cycle terahertz pulses with amplitudes exceeding 1 MV/cm generated by optical rectification in LiNbO₃ // *Appl. Phys. Lett.* 2011. V. 98, № 9. Art. no. 091106.
- 62.M. C. Hoffmann and D. Turchinovich, Semiconductor saturable absorbers for ultrafast terahertz signals // *Appl. Phys. Lett.* 2010. V. 96, № 15. Art. no. 151110.
- 63.M. C. Hoffmann and J. A. Fülöp, Intense ultrashort terahertz pulses: generation and applications // *J. Phys. D: Appl. Phys.* 2011. V. 44, № 8. Art. no. 083001.
- 64.M. C. Hoffmann, J. Hebling, H. Y. Hwang, K. L. Yeh, and K. A. Nelson, Impact ionization in InSb probed by terahertz-pump—terahertz-probe spectroscopy // *Phys. Rev. B.* 2009. V. 79, № 16. Art. no. 161201(R).
- 65.M. C. Hoffmann, J. Hebling, H. Y. Hwang, K. L. Yeh, and K. A. Nelson, THz-pump/THz-probe spectroscopy of semiconductors at high field strengths // *J. Opt. Soc. Am. B.* 2009. V. 26, № 9. P. A29–A34.
- 66.L. Holmegaard et al, Photoelectron angular distributions from strong-field ionization of oriented molecules // *Nature Phys.* 2010. V. 6, № 6. P. 428-432.

67. L. Holmegaard, J. H. Nielsen, I. Nevo, H. Stapelfeldt, F. Filsinger, J. Küpper, and G. Meijer, Laser-induced alignment and orientation of quantum-state-selected large molecules // *Phys. Rev. Lett.* 2009. V. 102, № 2. Art. no. 023001.
68. J. Horvat and R. A. Lewis, Peeling adhesive tape emits electromagnetic radiation at terahertz frequencies // *Opt. Lett.* 2009. V. 34, № 14. P. 2195–2197.
69. Y. Huang, C. Meng, X. Wang, Z. Lü, D. Zhang, W. Chen, J. Zhao, J. Yuan, and Z. Zhao, Joint Measurements of Terahertz Wave Generation and High-Harmonic Generation from Aligned Nitrogen Molecules Reveal Angle-Resolved Molecular Structures // *Phys. Rev. Lett.* 2015. V. 115, № 12. Art. no. 123002
70. N. Ishii, A. Kosuge, T. Hayashi, T. Kanai, J. Itatani, S. Adachi, and S. Watanabe, Quantum path selection in high-harmonic generation by a phase-locked two-color field // *Opt. Express.* 2008. V. 16, № 25, P. 20876-20883.
71. M. H. M. Janssen, J. W. G. Mastenbroek and S. Stolte, Imaging of oriented molecules // *J. Phys. Chem. A.* 1997. V. 101, № 41. P. 7605-7613.
72. T. Kanai and H. Sakai, Numerical simulations of molecular orientation using strong, nonresonant, two-color laser fields // *J. Chem. Phys.* 2001. V. 115, № 12. P. 5492-5497.
73. N. Karpowicz and X.-C. Zhang, Coherent terahertz echo of tunnel ionization in gases // *Phys. Rev. Lett.* 2009. V. 102, № 9. Art. no. 093001.
74. N. Karpowicz, X. Lu and X.-C. Zhang, Terahertz gas photonics // *J. Mod. Opt.* 2009. V. 56, № 10. P. 1137–1150.
75. G. Karras, E. Hertz, F. Billard, B. Lavorel, G. Siour, J.-M. Hartmann, O. Faucher, E. Gershnel, Y. Prior, and I. Sh. Averbukh, Experimental observation of fractional echoes // *Phys. Rev. A.* 2016. V. 94, № 3. Art. no. 033404.
76. G. Karras, E. Hertz, F. Billard, B. Lavorel, J.-M. Hartmann, O. Faucher, E. Gershnel, Y. Prior, and I. Sh. Averbukh, Orientation and alignment echoes // *Phys. Rev. Lett.* 2015. V. 114, № 15. Art. no. 153601.

77. K. Y. Kim, A. J. Taylor, J. H. Glowacki, and G. Rodriguez, Coherent control of terahertz supercontinuum generation in ultrafast laser–gas interactions // *Nature Photon.* 2008. V. 2, № 10. P. 605–609.
78. K. Y. Kim, J. H. Glowacki, A. J. Taylor, and G. Rodriguez, Terahertz emission from ultrafast ionizing air in symmetry-broken laser fields // *Opt. Express.* 2007. V. 15, № 8. P. 4577–4584.
79. M. F. Kimmitt, Reststrahlen to T-rays – 100 years of terahertz radiation // *J. Biol. Phys.* 2003. V. 29, № 2-3. P. 77–85.
80. R. Köhler, A. Tredicucci, F. Beltram, H. E. Beere, E. H. Linfield, A. G. Davies, D. A. Ritchie, R. C. Iotti, and F. Rossi, Terahertz semiconductor-heterostructure laser // *Nature.* 2002. V. 417, № 6885. P. 156–159.
81. S. A. Korff and G. Breit, Optical dispersion // *Rev. Mod. Phys.* 1932. V. 4, № 3. P. 471-504.
82. G. Kozlov and A. Volkov, Coherent source submillimeter wave spectroscopy // In: *Millimeter and Submillimeter Wave Spectroscopy of Solids (Series: Topics in Applied Physics, Vol. 74)* (ed. G. Gruner). Berlin: Springer, 1998. P. 51-109.
83. P. M. Kraus, A. Rupenyan, and H. J. Wörner, High-harmonic spectroscopy of oriented OCS molecules: emission of even and odd harmonics // *Phys. Rev. Lett.* 2012. V. 109, № 23. Art. no. 233903.
84. P. M. Kraus, D. Baykusheva, and H. J. Wörner, Two-pulse field-free orientation reveals anisotropy of molecular shape resonance // *Phys. Rev. Lett.* 2014. V. 113, № 2. Art. no. 023001.
85. P. M. Kraus, D. Baykusheva, and H. J. Wörner, Two-pulse orientation dynamics and high-harmonic spectroscopy of strongly-oriented molecules // *J. Phys. B.: At. Mol. Opt. Phys.* 2014. V. 47, № 12. Art. no. 124030.
86. M. Kress, T. Löffler, S. Eden, M. Thomson, and H. G. Roskos, Terahertz-pulse generation by photoionization of air with laser pulses composed of both fundamental and second-harmonic waves // *Opt. Lett.* 2004. V. 29, № 10. P. 1120–1122.

87. C. Kübler, R. Huber, and A. Leitenstorfer, Ultrabroadband terahertz pulses: generation and field-resolved detection // *Semicond. Sci. Technol.* 2005. V. 20, № 7. P. S128-S133.
88. W. Kuehn, P. Gaal, K. Reimann, M. Woerner, T. Elsaesser, and R. Hey, Coherent ballistic motion of electrons in a periodic potential // *Phys. Rev. Lett.* 2010. V. 104, № 14. Art. no. 146602.
89. G. Lagmago Kamta and A. D. Bandrauk, Nonsymmetric molecules driven by intense few-cycle laser pulses: Phase and orientation dependence of enhanced ionization // *Phys. Rev. A.* 2007. V. 76, № 5. Art. no. 053409.
90. J. J. Larsen, H. Sakai, C. P. Safvan, I. Wendt-Larsen, and H. Stapelfeldt, Aligning molecules with intense nonresonant laser fields // *J. Chem. Phys.* 1999. V. 111, № 17. P. 7774-7781.
91. H. Li, K. J. Franks, R. J. Hanson, and W. Kong, Brute force orientation and alignment of pyridazine probed by resonantly enhanced multiphoton ionization // *J. Phys. Chem. A.* 1998. V. 102, № 42. P. 8084-8090.
92. I. V. Litvinyuk, K.F. Lee, P.W. Dooley, D.M. Rayner, D.M. Villeneuve, P.B. Corkum, Alignment-Dependent Strong Field Ionization of Molecules // *Phys. Rev. Lett.* 2003. V. 90, № 33. Art. no. 233003.
93. J. Liu, J. Dai, S. L. Chin, and X.-C. Zhang, Broadband terahertz wave remote sensing using coherent manipulation of fluorescence from asymmetrically ionized gases // *Nature Photon.* 2010. V. 4, № 9. P. 627-631.
94. H. J. Loesch and A. Remscheid, Brute force in molecular reaction dynamics: A novel technique for measuring steric effects // *J. Chem. Phys.* 1990. V. 93, № 7. P. 4779-4790.
95. H. J. Loesch and J. Möller, Brute force in reactive scattering: steric effects in the reaction $K+ICl \rightarrow KI+Cl$, $KCl+I$ at $E_{tr} = 3.03$ eV // *J. Phys. Chem.* 1993. V. 97, № 10. P. 2158–2166.

96. H. J. Loesch and J. Möller, Reactive scattering from oriented molecules: The three-center reaction $K+ICl \rightarrow KI+Cl$, $KCl+I$ // *J. Chem. Phys.* 1992. V. 97, № 12. P. 9016-9030.
97. T. Löffler, M. Kress, M. Thomson, T. Hahn, N. Hasegawa, and H. G. Roskos, Comparative performance of terahertz emitters in amplifier-laser-based systems // *Semicond. Sci. Technol.* 2005. V. 20, № 7. P. S134–S141.
98. T. Löffler, T. Hahn, M. Thomson, F. Jacob, and H. G. Roskos, Large-area electro-optic ZnTe terahertz emitters // *Opt. Express.* 2005. V. 13, № 14. P. 5353–5362.
99. H. S. Loka, S. D. Benjamin, and P. W. Smith, Optical characterization of low-temperature-grown GaAs for ultrafast all-optical switching devices // *IEEE J. Quantum Electron.* 1998. V. 34, № 8. P. 1426–1437.
100. Z. Lü, D. Zhang, C. Meng, X. Du, Z. Zhou, Y. Huang, Z. Zhao, and J. Yuan, Attosecond synchronization of terahertz wave and high-harmonics // *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 2013. V. 46, № 15. Art. no. 155602.
101. R. J. Matlack and T. W. Crowe, GaAs Schottky devices for submillimeter wavelengths // *Int. J. Infrared Millim. Waves.* 1987. V. 8, № 10. P. 1235–1241.
102. A. Mayer and F. Keilmann, Far-infrared nonlinear optics. I. $\chi(2)$ near ionic resonance // *Phys. Rev. B.* 1986. V. 33, № 10. P. 6954-6968.
103. C. Meng, W. Chen, Z. Lv, X. Wang, Y. Huang, D. Zhang, Z. Zhao, and J. Yuan, Enhancement of terahertz radiation by using circularly polarized two-color laser fields // *Appl. Phys. Lett.* 2016. V. 109, № 13. Art. no. 131105.
104. J. R. Morris and Y. R. Shen, Far-infrared generation by picosecond pulses in electro-optical materials // *Opt. Commun.* 1971. V. 3, № 2. P. 81–84.
105. J. E. Mosch, S. A. Safron, and J. P. Toennies, Electric quadrupole state selectors for measurements of rotational state distributions of reactively scattered molecules // *Chem. Phys.* 1975. V. 8, № 3. P. 304-323.
106. I. Nevo, L. Holmegaard, J. H. Nielsen, J. L. Hansen, H. Stapelfeldt, F. Filsinger, G. Meijer and J. Küpper, Laser-induced 3D alignment and orientation

- of quantum state-selected molecules // *Phys. Chem. Chem. Phys.* 2009. V. 11, № 42. P. 9912-9918.
107. D. Normand, L. A. Lompre, and C. Cornaggia, Laser-induced molecular alignment probed by a double-pulse experiment // *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 1992. V. 25, № 20. P. L497-L503.
108. K. Oda, M. Hita, S. Minemoto, and H. Sakai, All-optical molecular orientation // *Phys. Rev. Lett.* 2010. V. 104, № 21. Art. no. 213901.
109. A. J. Orr-Ewing, Dynamical stereochemistry of bimolecular reactions // *J. Chem. Soc. Faraday Trans.* 1996. V. 92, № 6. P. 881-900.
110. J. Parker and C. R. Stroud, Jr., Coherence and decay of Rydberg wave packets // *Phys. Rev. Lett.* 1986. V. 56, № 7. P. 716-719.
111. G. G. Paulus, W. Becker, W. Nicklich, and H. Walther, Rescattering effects in above-threshold ionization: a classical model // *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 1994. V. 27, № 21. P. L703-L708.
112. D. Pavičić, K.F. Lee, D.M. Rayner, P.B. Corkum, D.M. Villeneuve, Direct Measurement of the Angular Dependence of Ionization for N₂, O₂, and CO₂ in Intense Laser Fields // *Phys. Rev. Lett.* 2007. V. 98, № 24. Art. no. 243001.
113. S. V. Popruzhenko and V. A. Tulsy, Control of terahertz photoelectron currents generated by intense two-color laser radiation interacting with atoms // *Phys. Rev. A.* 2015. V. 92, № 3. Art. no. 033414.
114. R. P. Prasankumar, A. Scopatz, D. J. Hilton, A. J. Taylor, R. D. Averitt, J. M. Zide, and A. C. Gossard, Carrier dynamics in self-assembled ErAs nanoislands embedded in GaAs measured by optical-pump terahertz-probe spectroscopy // *Appl. Phys. Lett.* 2005. V. 86, № 20. Art. no. 201107.
115. D. P. Pullmann, B. Friedrich, and D. R. Herschbach, Facile alignment of molecular rotation in supersonic beams // *J. Chem. Phys.* 1990. V. 93, № 5. P. 3224-3236.

116. L. Razzari et al, Nonlinear ultrafast modulation of the optical absorption of intense few-cycle terahertz pulses in n-doped semiconductors // *Phys. Rev. B*. 2009. V. 79, № 19. Art. no. 193204.
117. G. Rodriguez and G. L. Dakovski, Scaling behavior of ultrafast two-color terahertz generation in plasma gas targets: energy and pressure dependence // *Opt. Express*. 2010. V. 18, № 14. P. 15130–15143.
118. C. Ruchert, C. Vicario, and C. P. Hauri, Scaling submillimeter single-cycle transients toward megavolts per centimeter field strength via optical rectification in the organic crystal OH1 // *Opt. Lett.* 2012. V. 37, № 5. P. 899-901.
119. C. Ruchert, C. Vicario, and C. P. Hauri, Spatiotemporal focusing dynamics of intense supercontinuum THz pulses // *Phys. Rev. Lett.* 2013. V. 110, № 12. Art. no. 123902.
120. H. Sakai, S. Minemoto, H. Nanjo, H. Tanji, and T. Suzuki, Controlling the orientation of polar molecules with combined electrostatic and pulsed, nonresonant laser fields // *Phys. Rev. Lett.* 2003. V. 90, № 8. Art. no. 083001.
121. B. Sartorius, H. Roehle, H. Künzel, J. Böttcher, M. Schlak, D. Stanze, H. Venghaus, and M. Schell, All-fiber terahertz time-domain spectrometer operating at 1.5 μm telecom wavelengths // *Opt. Express*. 2008. V. 16, № 13. P. 9565–9570.
122. T. Seideman, M. Yu. Ivanov, and P. B. Corkum, Role of electron localization in intense-field molecular ionization // *Phys. Rev. Lett.* 1995. V. 75, № 15. P. 2819-2822.
123. T. Seideman, Revival structure of aligned rotational wave packets // *Phys. Rev. Lett.* 1999. V. 83, № 24. P. 4971-4974.
124. M. Shalaby, C. Vicario, K. Thirupugalmani, S. Brahadeeswaran, and C. P. Hauri, Intense THz source based on BNA organic crystal pumped at Ti:sapphire wavelength // *Opt. Lett.* 2016. V. 41, № 8. P.1777-1780.

125. Y. C. Shen, P. C. Upadhyaya, E. H. Linfield, H. E. Beere and A. G. Davies, Ultrabroadband terahertz radiation from low-temperature-grown GaAs photoconductive emitters // *Appl. Phys. Lett.* 2003. V. 83, № 15. P. 3117–3119.
126. P. H. Siegel, Terahertz technology in biology and medicine // *IEEE Trans. Microwave Theory Tech.* 2004. V. 52, № 10. P. 2438-2447.
127. A. A. Silaev and N. V. Vvedenskii, Residual-current excitation in plasmas produced by few-cycle laser pulses // *Phys. Rev. Lett.* 2009. V. 102, № 11. Art. no. 115005.
128. C. Sirtori, S. Dhillon, C. Faugeras, A. Vasanelli, and X. Marcadet, Quantum cascade lasers: the semiconductor solution for lasers in the mid- and far-infrared spectral regions // *Phys. Status Solidi.* 2006. V. 203, № 14. P. 3533–3537.
129. M. Spanner, S. Patchkovskii, E. Frumker, and P. Corkum, Mechanisms of two-color laser-induced field-free molecular orientation // *Phys. Rev. Lett.* 2012. V. 109, № 11. Art. no. 113001.
130. H. Stapelfeldt and T. Seideman, Colloquium: Aligning molecules with strong laser pulses // *Rev. Mod. Phys.* 2003. V. 75, № 2. P. 543-557.
131. A. G. Stepanov, J. Kuhl, I. Z. Kozma, E. Riedle, G. Almási, and J. Hebling, Scaling up the energy of THz pulses created by optical rectification // *Opt. Express.* 2005. V. 13, № 15. P. 5762-5768.
132. A. G. Stepanov, L. Bonacina, S. V. Chekalin, and J.-P. Wolf, Generation of 30 μ J single-cycle terahertz pulses at 100 Hz repetition rate by optical rectification // *Opt. Lett.* 2008. V. 33, № 21. P. 2497–2499.
133. V. V. Strelkov, M. A. Khokhlova, A. A. Gonoskov, I. A. Gonoskov, and M. Yu. Ryabikin, High-order harmonic generation by atoms in an elliptically polarized laser field: Harmonic polarization properties and laser threshold ellipticity // *Phys. Rev. A.* 2012. V. 86, № 1. Art. no. 013404.
134. V. V. Strelkov, Theory of high-order harmonic generation and attosecond pulse emission by a low-frequency elliptically polarized laser field // *Phys. Rev. A.* 2006. V. 74, № 1. Art. no. 013405.

135. F. H. Su et al, Terahertz pulse induced intervalley scattering in photoexcited GaAs // *Opt. Express*. 2009. V. 17, № 12. P. 9620–9629.
136. R. Tehini, Md Z. Hoque, O. Faucher, and D. Sugny, Field-free molecular orientation of 1Σ and 2Π molecules at high temperature // *Phys. Rev. A*. 2012. V. 85, № 4. Art. no. 043423.
137. M. D. Thomson, M. Kress, T. Löffler, and H. G. Roskos, Broadband THz emission from gas plasmas induced by femtosecond optical pulses: From fundamentals to applications // *Laser Photon. Rev.* 2007. V. 1, № 4. P. 349-368.
138. M. D. Thomson, V. Blank, and H. G. Roskos, Terahertz white-light pulses from an air plasma photo-induced by incommensurate two-color optical fields // *Opt. Express*. 2010. V.18, № 22. P. 23173–23182.
139. X. M. Tong and C. D. Lin, Empirical formula for static field ionization rates of atoms and molecules by lasers in the barrier-suppression regime // *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 2005. V. 38, № 15. P. 2593–2600.
140. X. M. Tong, Z.X. Zhao, C.D. Lin, Theory of molecular tunneling ionization // *Phys. Rev. A*. 2002. V. 66, № 3. Art. no. 033402.
141. C. Vallance, Generation, characterisation, and applications of atomic and molecular alignment and orientation // *Phys. Chem. Chem. Phys.* 2011. V. 13, № 32. P. 14427–14441.
142. C. Vicario, A. V. Ovchinnikov, S. I. Ashitkov, M. B. Agranat, V. E. Fortov, and C. P. Hauri, Generation of 0.9-mJ THz pulses in DSTMS pumped by a Cr:Mg₂SiO₄ laser // *Opt. Lett.* 2014. V. 39, № 23. P. 6632-6635.
143. C. Vicario, C. Ruchert, and C. P. Hauri, High field broadband THz generation in organic materials // *J. Mod. Opt.* 2015. V. 62, № 18. P. 1480-1485.
144. M. J. J. Vrakking and S. Stolte, Coherent control of molecular orientation // *Chem. Phys. Lett.* 1997. V. 271, № 4-6. P. 209-215.
145. N. V. Vvedenskii, A. I. Korytin, V. A. Kostin, A. A. Murzanev, A. A. Silaev, and A. N. Stepanov, Two-color laser-plasma generation of terahertz

- radiation using a frequency-tunable half harmonic of a femtosecond pulse // Phys. Rev. Lett. 2014. V. 112, № 5. Art. no. 055004.
146. M. Wagner, H. Schneider, D. Stehr, S. Winnerl, A. M. Andrews, S. Schartner, G. Strasser, and M. Helm, Observation of the intraexciton Autler-Townes effect in GaAs/AlGaAs semiconductor quantum wells // Phys. Rev. Lett. 2010. V. 105, № 16. Art. no. 167401.
147. M. Walther, B. M. Fischer, and P. U. Jepsen, Noncovalent intermolecular forces in polycrystalline and amorphous saccharides in the far infrared // Chem. Phys. 2003. V. 288, № 2-3. P. 261-268.
148. H. Wen, M. Wiczler, and A. M. Lindenberg, Ultrafast electron cascades in semiconductors driven by intense femtosecond terahertz pulses // Phys. Rev. B. 2008. V. 78, № 12. Art. no. 125203.
149. X. Xie, J. Dai, and X.-C. Zhang, Coherent control of THz wave generation in ambient air // Phys. Rev. Lett. 2006. V. 96, № 7. Art. no. 075005.
150. K. H. Yang, P. L. Richards, and Y. R. Shen, Generation of far-infrared radiation by picosecond light pulses in LiNbO₃ // Appl. Phys. Lett. 1971. V. 19, № 9. P. 320–323.
151. K.-L. Yeh, J. Hebling, M. C. Hoffmann, and K. A. Nelson, Generation of high average power 1 kHz shaped THz pulses via optical rectification // Opt. Commun. 2008. V. 281, № 13. P. 3567–3570.
152. K.-L. Yeh, M. C. Hoffmann, J. Hebling, and K. A. Nelson, Generation of 10 μ J ultrashort terahertz pulses by optical rectification // Appl. Phys. Lett. 2007. V. 90, № 17. Art. no. 171121.
153. Y. S. You, T. I. Oh, A. B. Fallahkhair, and K. Y. Kim, Alignment-dependent terahertz radiation in two-color photoionization of molecules // Phys. Rev. A. 2013. V. 87, № 3. Art. no. 035401.
154. S. Zhang, C. Lu, T. Jia, Z. Wang, and Z. Sun, Controlling field-free molecular orientation with combined single- and dual-color laser pulses // Phys. Rev. A. 2011. V. 83, № 4. Art. no. 043410.

155. D. Zhang, Z. Lü, C. Meng, X. Du, Z. Zhou, Z. Zhao, and J. Yuan, Synchronizing terahertz wave generation with attosecond bursts // *Phys. Rev. Lett.* 2012. V. 109, № 24. Art. no. 243002.
156. T. Zuo and A. D. Bandrauk, Charge-resonance-enhanced ionization of diatomic molecular ions by intense lasers // *Phys. Rev. A.* 1995. V. 52, № 4. P. R2511-R2514.
157. М. В. Аммосов, Н. Б. Делоне, В. П. Крайнов, Туннельная ионизация сложных атомов и атомарных ионов в переменном электромагнитном поле // *ЖЭТФ.* 1986. Т. 91, № 6. С. 2008-2013.
158. Р. А. Ахмеджанов, И. Е. Иляков, В. А. Миронов, Е. В. Суворов, Д. А. Фадеев, Б. В. Шишкин, Плазменные механизмы генерации импульсного терагерцового излучения // *Изв. вузов. Радиофизика.* 2009. Т. 52, № 7. С. 536-549.
159. И. Е. Иляков, Б. В. Шишкин, Л. Н. Александров, М. Ю. Емелин, М. Ю. Рябикин, Генерация терагерцового излучения при оптическом пробое воздуха: зависимость оптимального фазового сдвига между компонентами двухцветного лазерного импульса от их интенсивности // *Письма в ЖЭТФ.* 2015. Т. 101, № 2. С. 78-83.
160. А. М. Переломов, В. С. Попов, М. В. Терентьев, Ионизация атомов в переменном электрическом поле. II // *ЖЭТФ.* 1966. Т. 51, № 1. С. 309–326.