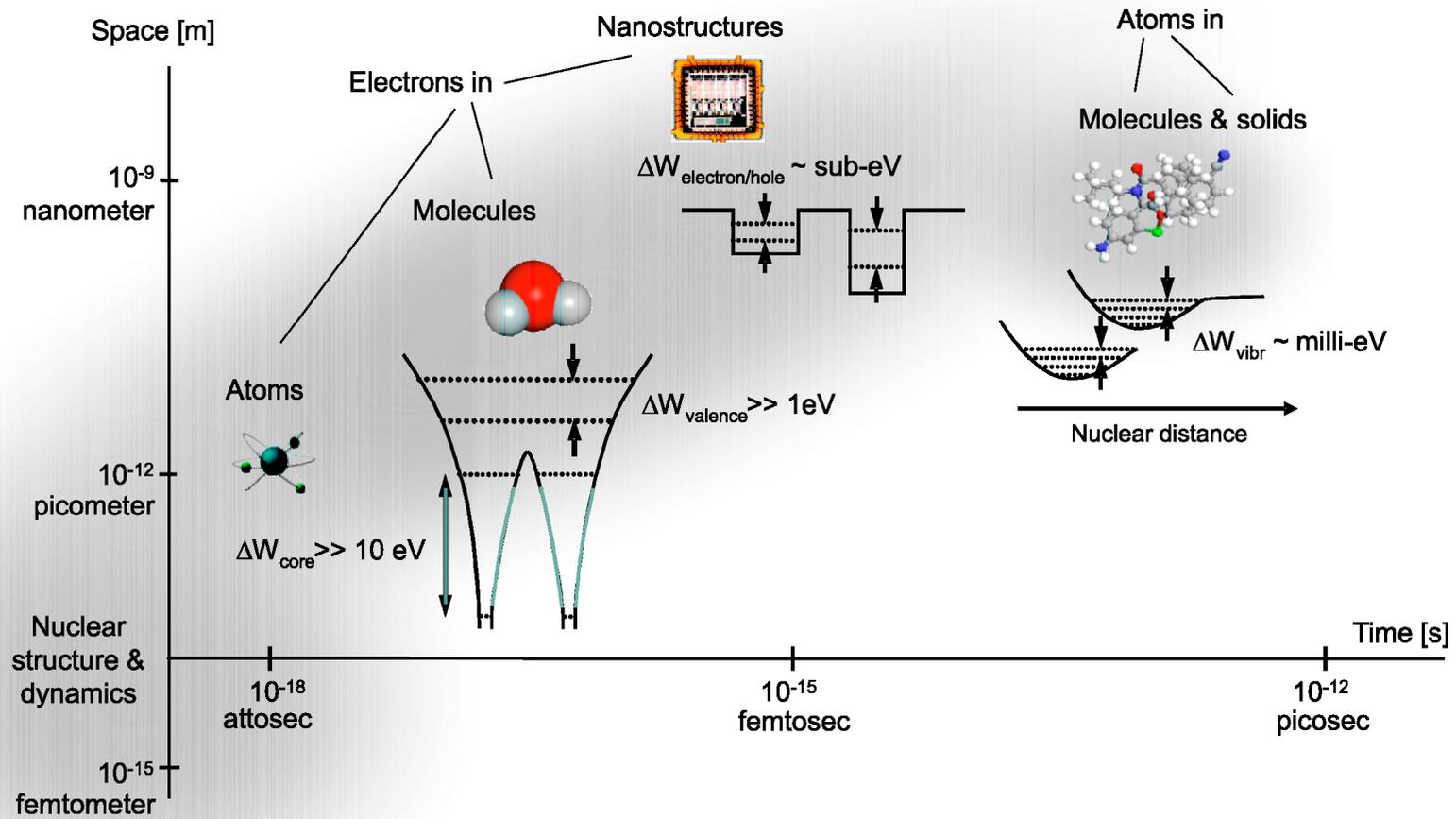


**РЕЗОНАНСНАЯ ГЕНЕРАЦИЯ ВЫСОКИХ ГАРМОНИК  
ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ И  
ПОЛУЧЕНИЕ АТТОСЕКУНДНЫХ ИМПУЛЬСОВ**

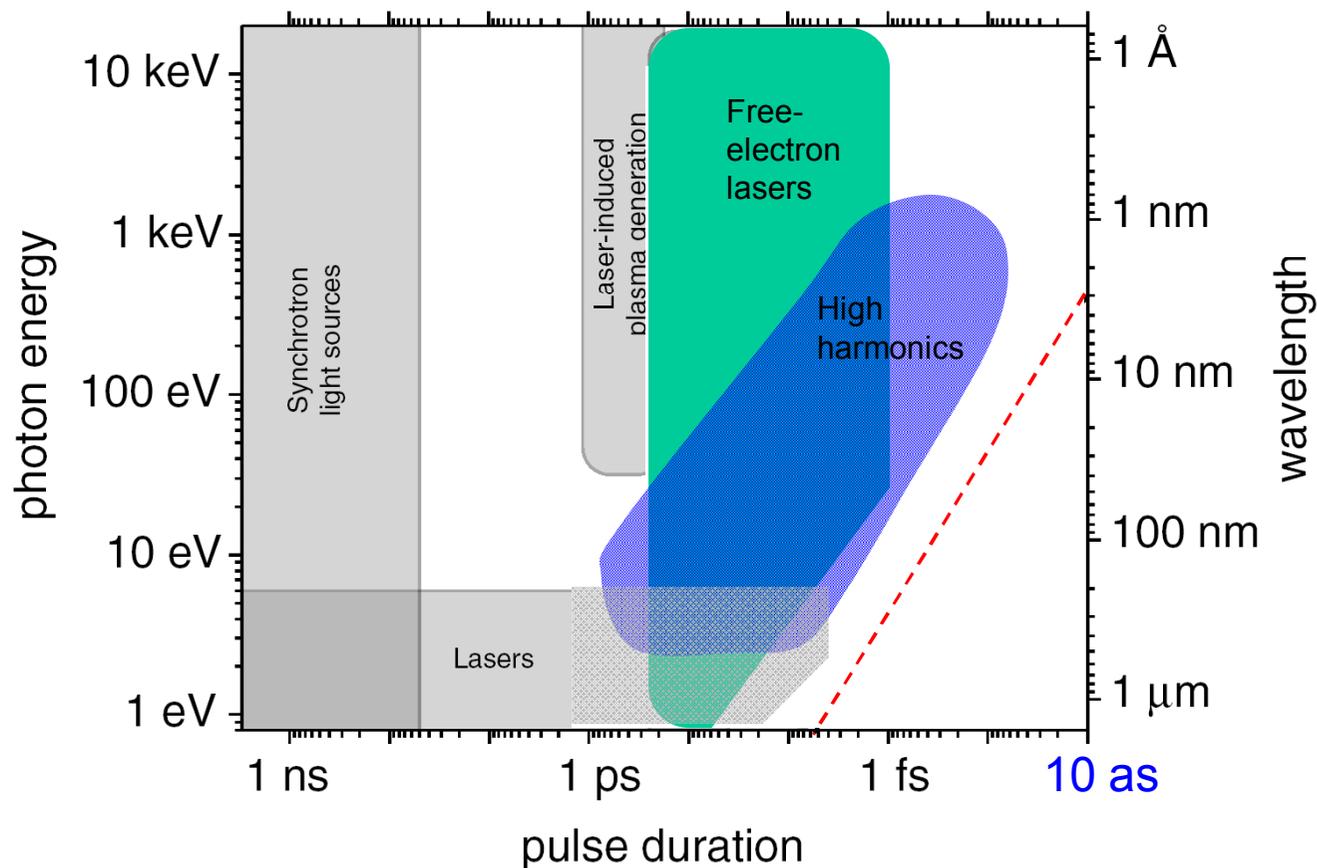
[В. В. Стрелков](#)

Физический институт им.П.Н. Лебедева

Институт прикладной физики им. А. В. Гапонова-Грехова



Пространственные и временные масштабы, характерные для различных микроскопических объектов



Области длин волн и длительностей импульса, покрываемые различными источниками когерентного электромагнитного излучения. **Пунктирная линия** – предельно-короткий импульс (длительность импульса равна периоду поля). Видно, что в ультрафиолетовом и рентгеновском диапазоне приблизиться к этому пределу позволяют источники, основанные на генерации гармоник высокого порядка.

**Механизм генерации гармоник высокого порядка**

**Получение цуга аттосекундных импульсов при генерации высоких гармоник**

**Получение одиночного аттосекундного импульса в лазерном импульсе  
длительностью в **несколько периодов** и в лазерном импульсе  
**переменной эллиптичности****

**Резонансная генерация гармоник высокого порядка**

**Другие нелинейно-оптические процессы высокого порядка: смешение частот и  
параметрическая генерация**

**Заключение**

# Генерация гармоник высокого порядка

лазерный импульс

интенсивность:

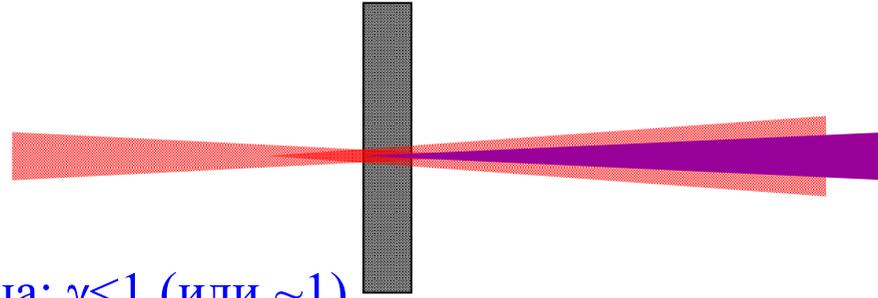
$10^{13} - 10^{15}$  Вт/см<sup>2</sup>

длительность:

1 пс – 5 фс

параметр Келдыша:  $\gamma < 1$  (или  $\sim 1$ )

газообразная мишень



гармоники

номера: до  $\sim 5000$

длина волны: до 0.3 нм

эффективность

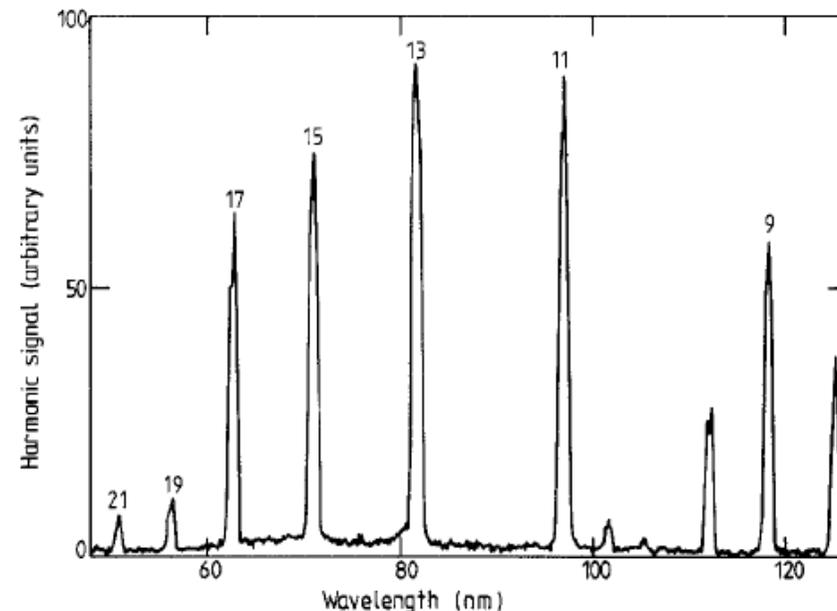
преобразования:

менее  $10^{-4}$

$$\gamma = \sqrt{\frac{I}{2U}} \quad U = \frac{e^2 E^2}{4m\omega^2}$$

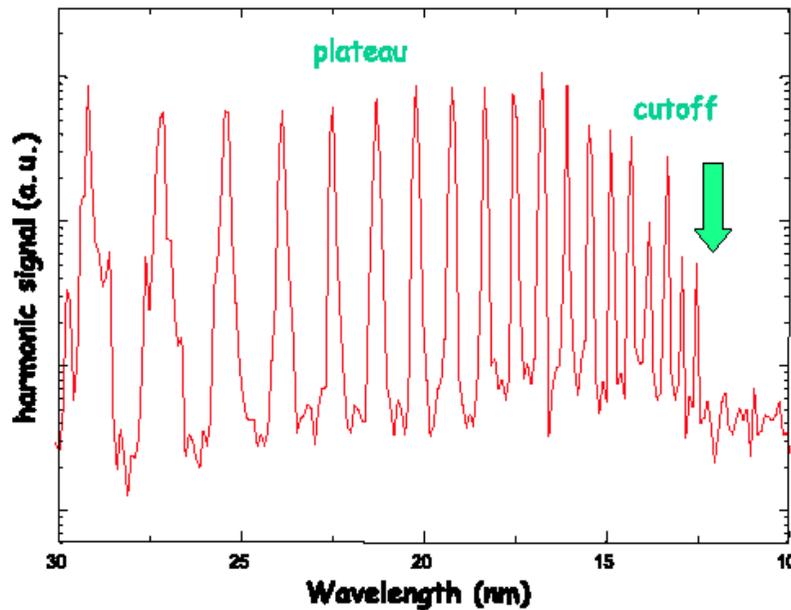
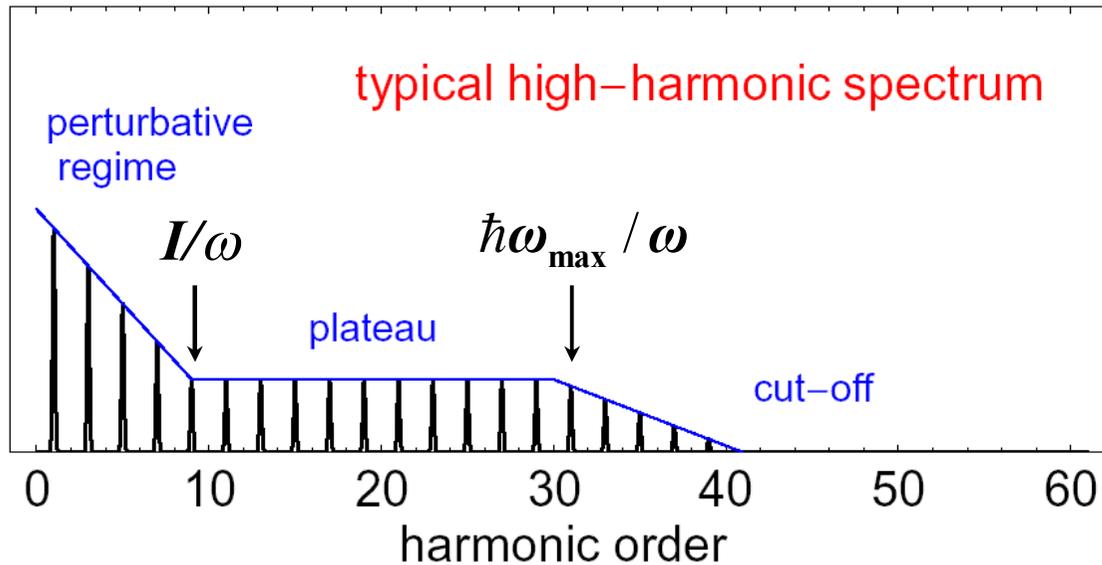
пондеромоторная  
энергия

Xe, 1064 nm,  $3 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>



M. Ferray, A. L'Huillier, et al., "Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases," J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 21, L31 (1988).

# Генерация гармоник высокого порядка



Высокочастотная граница плато:

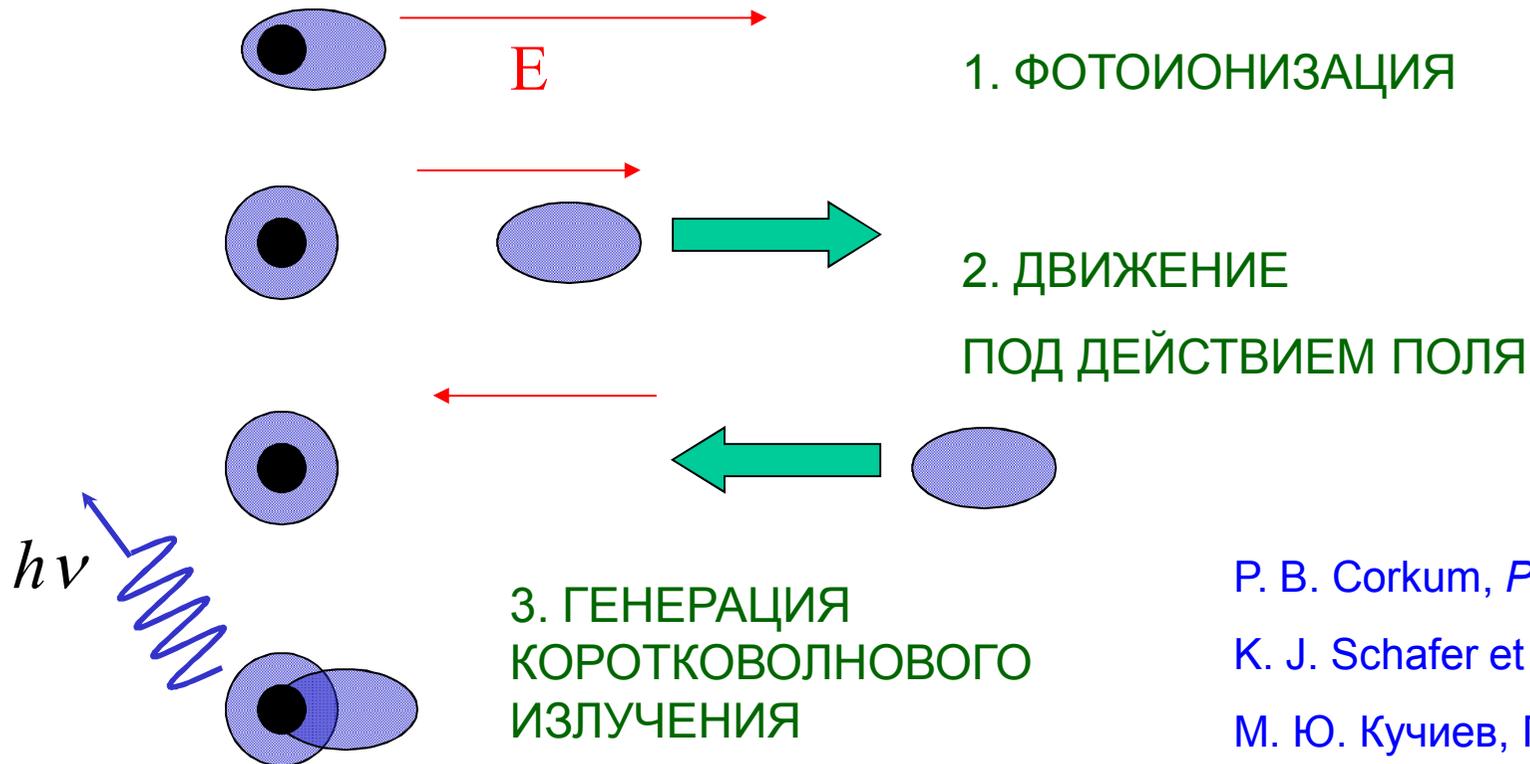
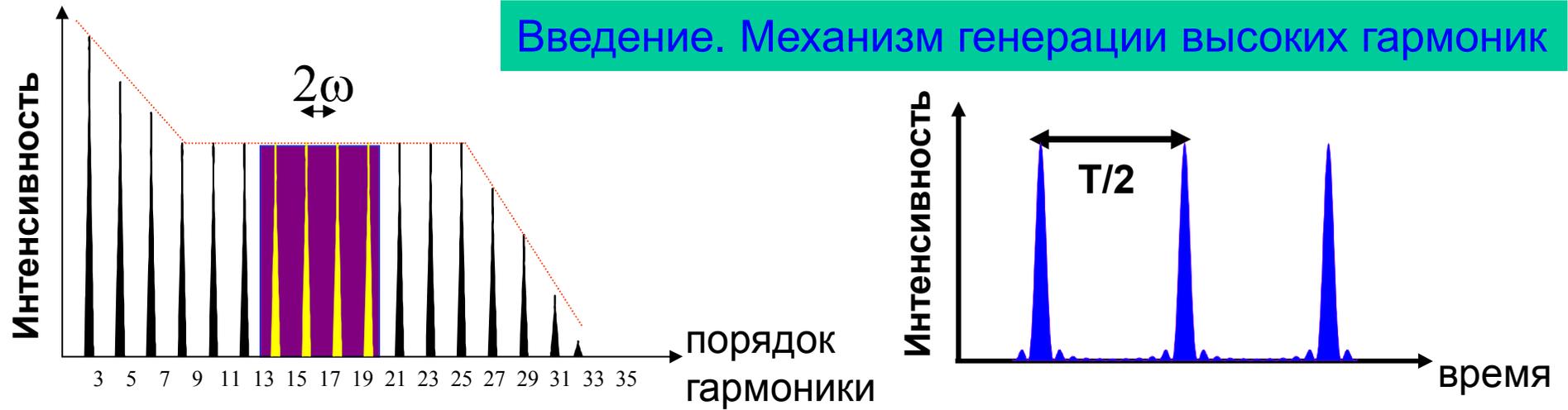
$$\hbar\omega_{\max} \approx I + 3U$$

энергия ионизации

пондеромоторная энергия

$$U = \frac{e^2 E^2}{4m\omega^2}$$

# Введение. Механизм генерации высоких гармоник



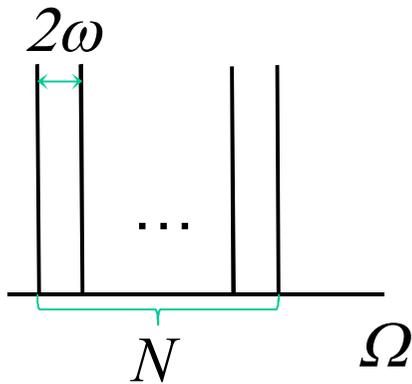
P. B. Corkum, *PRL* (1993)

K. J. Schafer et al., *PRL* (1993)

М. Ю. Кучиев, Письма в ЖЭТФ

(1987)

## Получение цуга аттосекундных импульсов

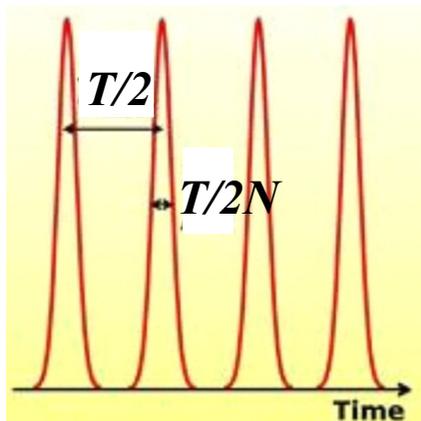


$$I(t) \propto \left| \sum_{q=q_0}^{q=q_0+N-1} e^{-i(2q+1)\omega t + i\varphi_q} \right|^2$$

Если бы гармоники имели случайные фазы, то генерировался бы **нерегулярный сигнал**

Если гармоники имеют одинаковые фазы, то генерируется **последовательность коротких импульсов**:

$$I(t) \propto \frac{\sin^2(N\omega t)}{\sin^2(\omega t)}$$

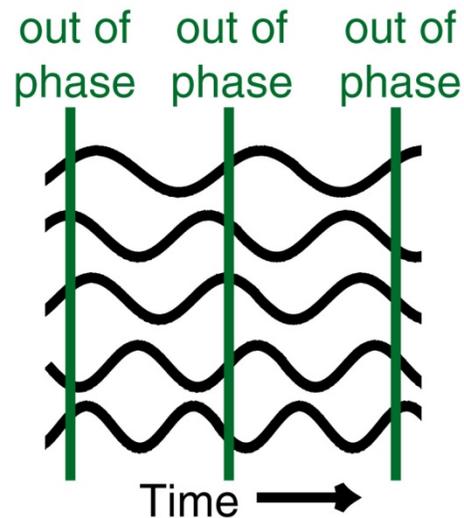


Периодичность:  $T/2 = \pi/\omega$

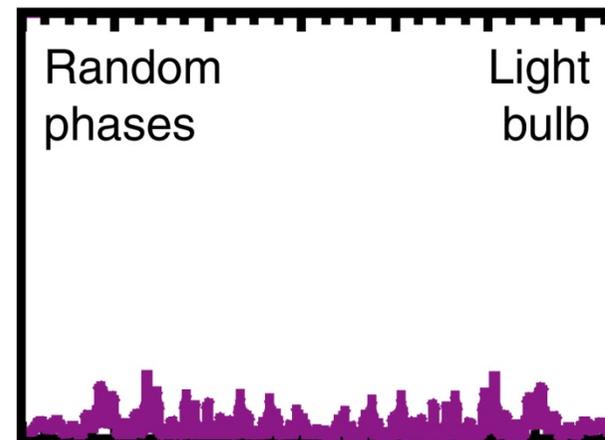
FWHM:  $\Delta T \approx T/2N$

# Синхронизация мод в лазере и получение цуга коротких импульсов

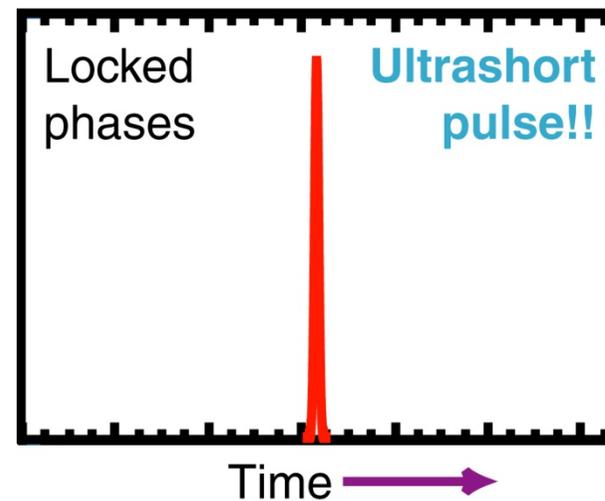
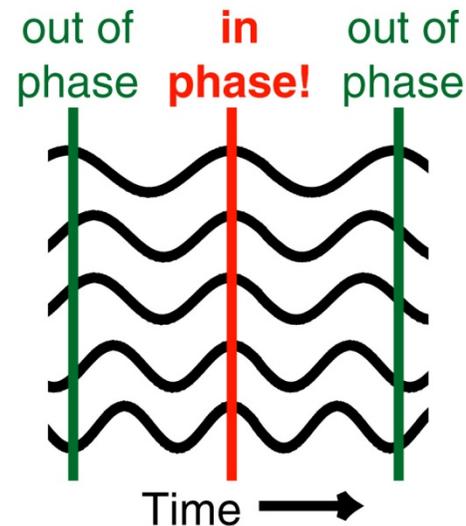
**Random**  
phases  
of all  
laser  
modes



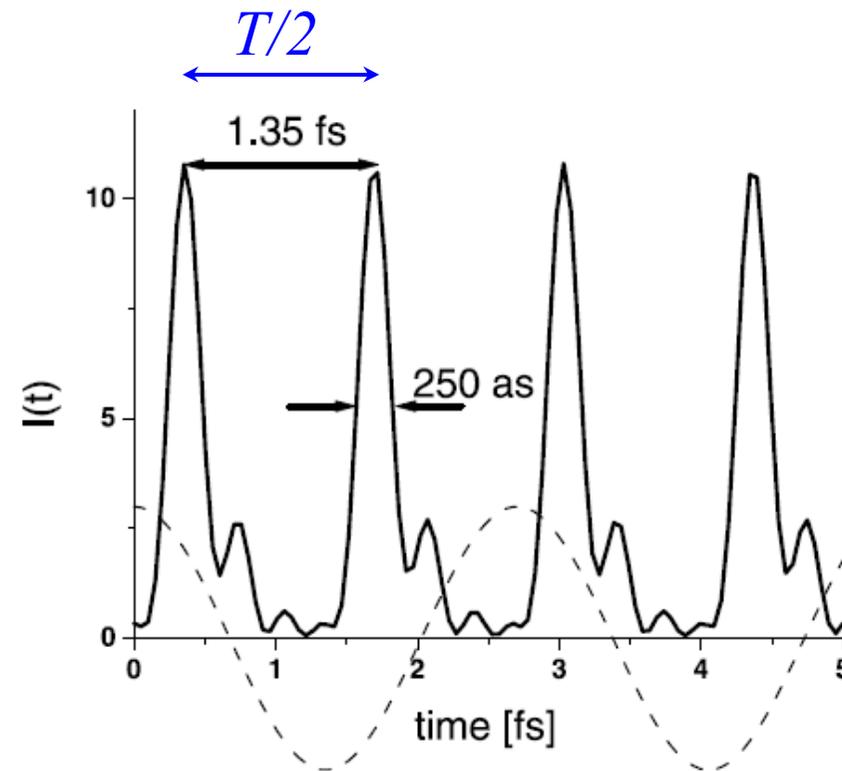
Irradiance vs. time



**Locked**  
phases  
of all  
laser  
modes



## Получение цуга аттосекундных импульсов



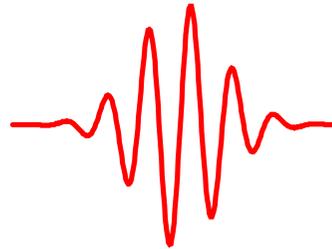
Temporal intensity profile of a sum of five harmonics, as reconstructed from measured phases and amplitudes. The FWHM of each peak is  $\sim 250$  as. The cosine function represents the IR probe field for zero delay.

P. M. Paul, ..., **P. Agostini**, "Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation," *Science* 292(5522), 1689 (2001).

**Получение**

**одиного аттосекундного импульса**

# Получение одиночного аттосекундного импульса в коротком лазерном импульсе



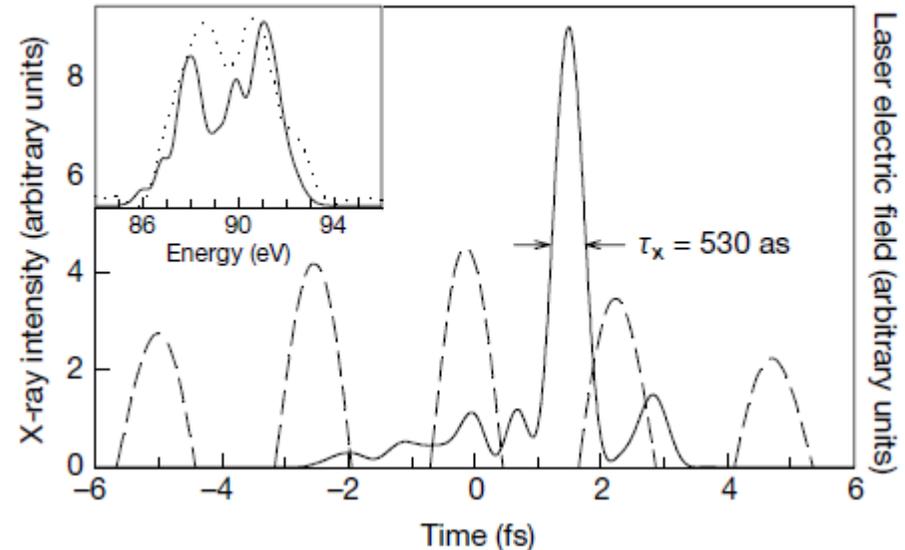
очень короткий  
генерирующий импульс



только одно перерассеяние



одиночный аттосекундный  
импульс

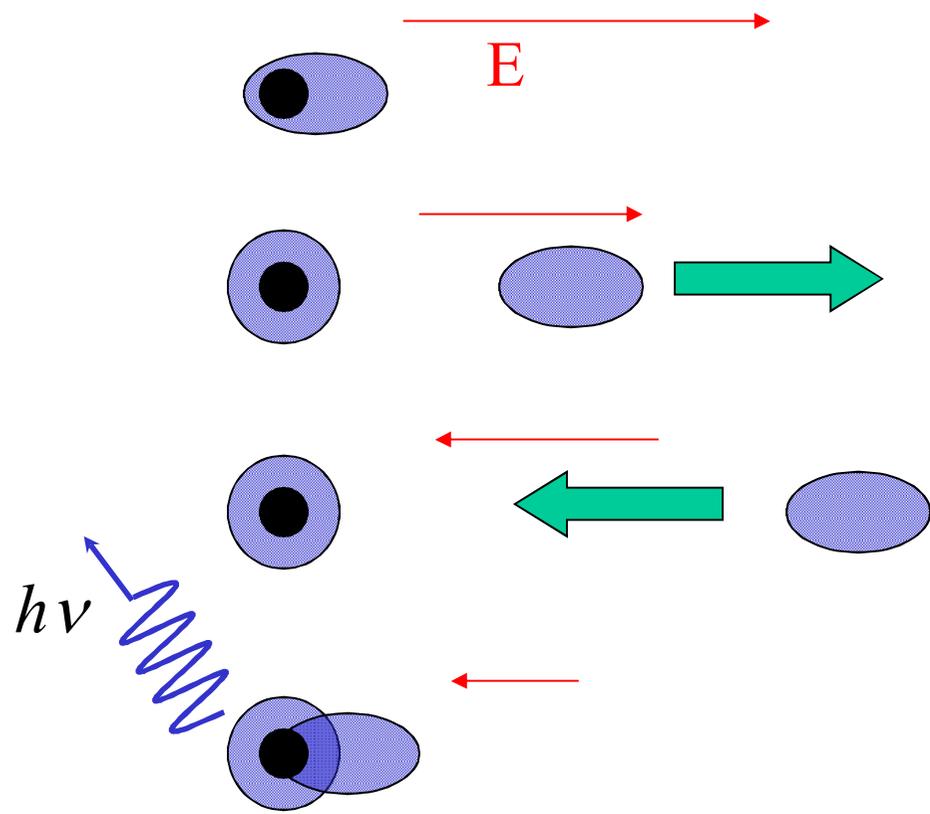


Calculated far-field, near-axis temporal intensity profile of a soft-X-ray pulse. The X-ray pulse is produced in a 3-mm-long 200-mbar neon gas volume by a 7-fs, 750-nm gaussian laser pulse with an on-axis peak intensity of  $9 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ . For the electric field of the laser pulse,  $E(t) \propto \exp(-t^2/\tau_L^2) \cos(\omega_0 t + \varphi)$  with  $\varphi = 0$  (cosine pulse), where  $\tau_L$  is the pulse duration,  $\omega_0$  is the angular carrier frequency and  $\varphi$  is the 'absolute' phase. The dashed line shows the on-axis electric field of the laser pulse leaving the interaction region. The calculated X-ray radiation is selected within a 5-eV spectral range near 90 eV. Inset, calculated (full line) and measured (dotted line) X-ray pulse spectrum selected by the Mo/Si reflector, showing that about 90% of the total fluence is within a 5-eV range around 90 eV.

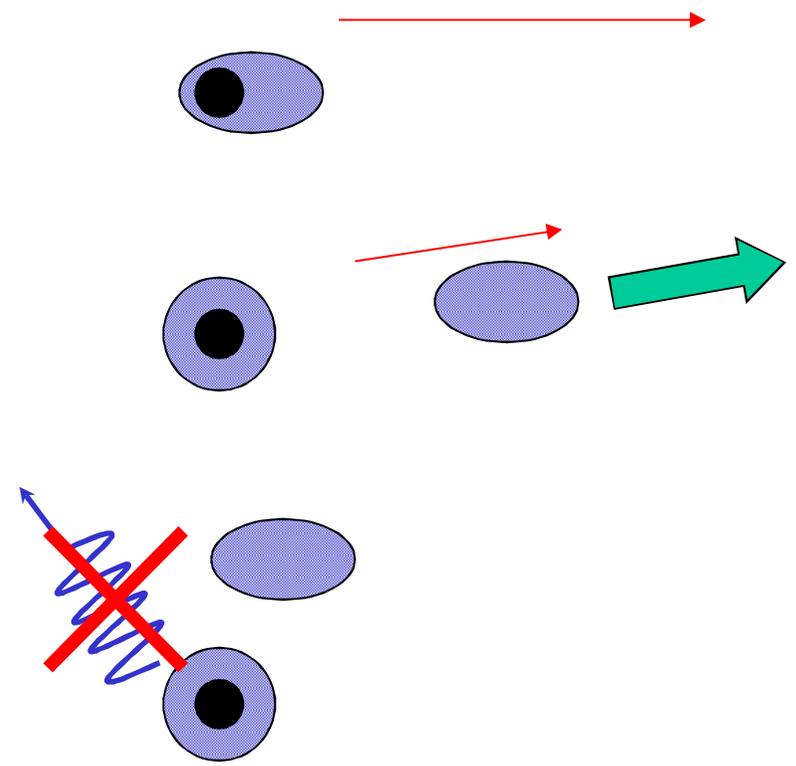
M. Hentschel, ..., F. Krausz, "Attosecond metrology," Nature 414, 509 (2001).

# Зависимость эффективности генерации гармоник высокого порядка (ГВП) от эллиптичности лазерного излучения

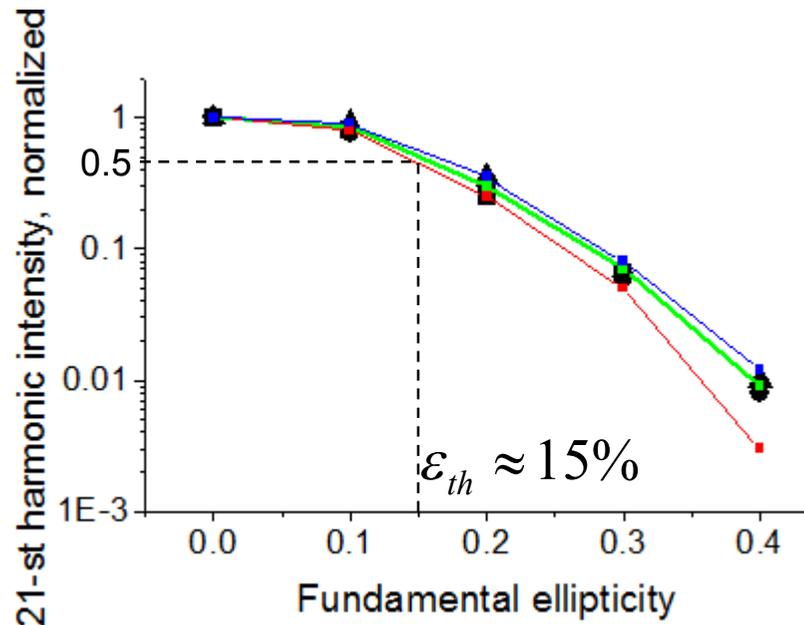
линейная поляризация



эллиптическая поляризация

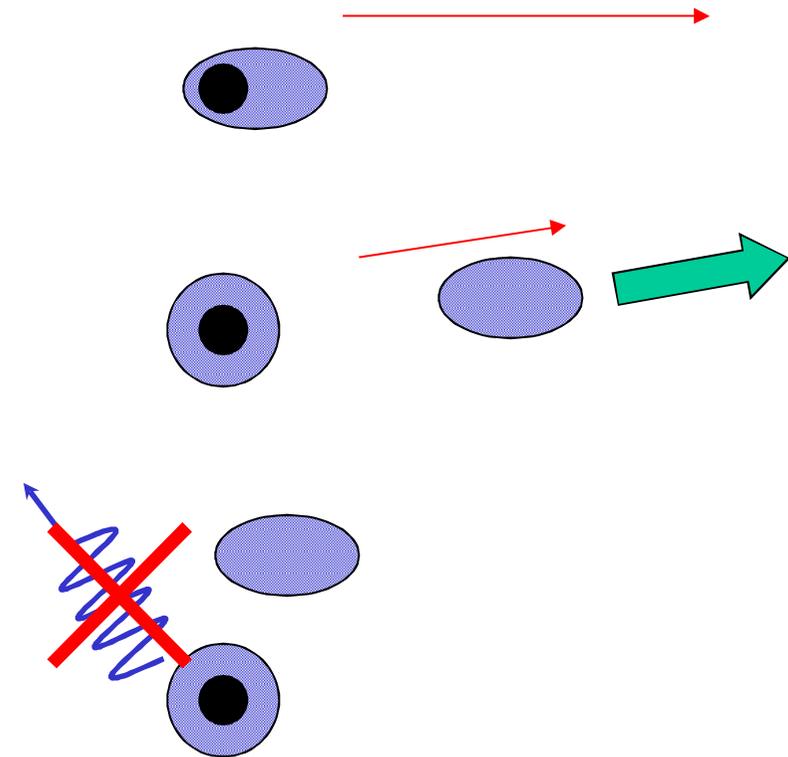


# Зависимость эффективности генерации гармоник высокого порядка (ГВП) от эллиптичности лазерного излучения

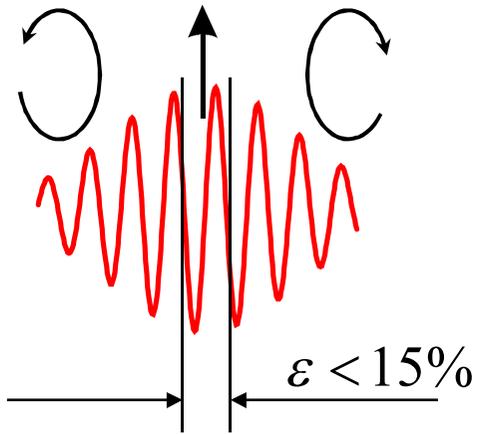


- ▲ experiment K. S. Budil, et al. PRA (1993)
- experiment P. Dietrich, et al. PRA (1994)
- theory V. V. Strelkov, Phys. Rev. A 74, 013405 (2006).
- theory, SP (short path)
- theory, LP (long path)

эллиптическая поляризация



# ELLIPTICITY GATING

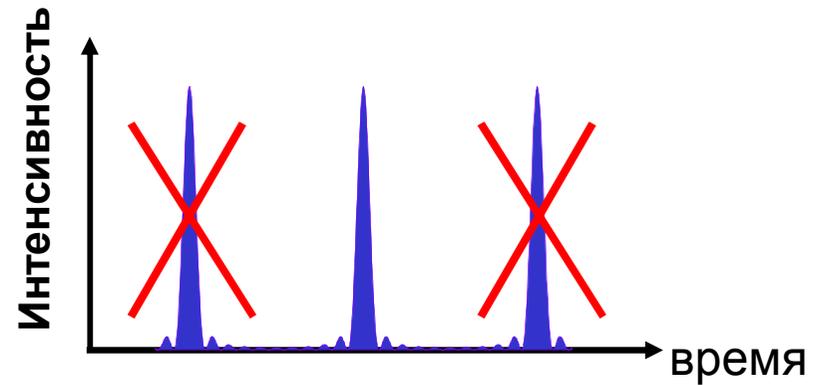
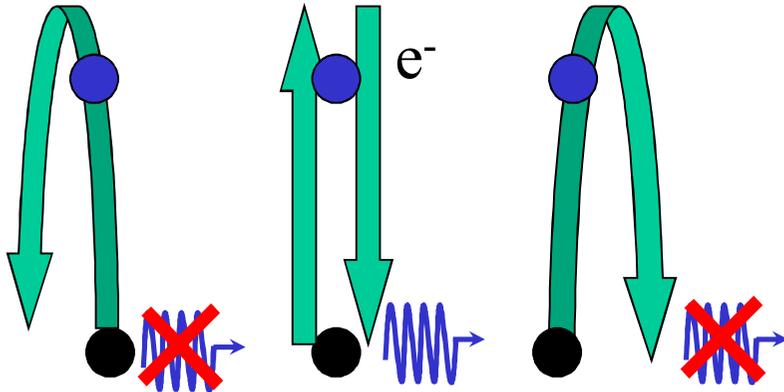


## Ellipticity-modulated fundamental pulse

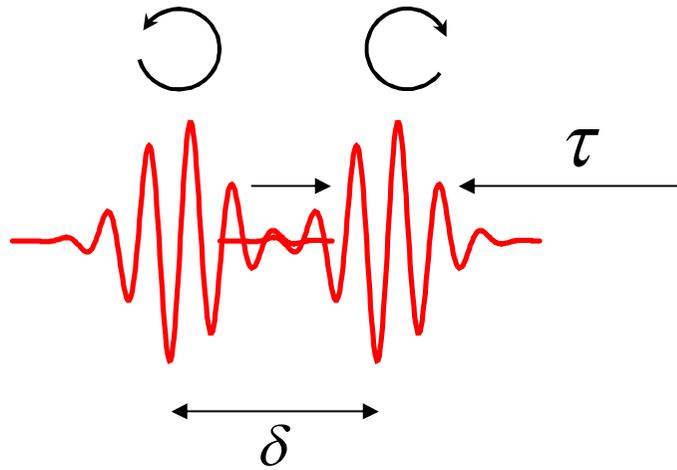
P. Corkum, *et. al.*, *Optics Letters* **19**, 1870 (1994)

V. T. Platonenko, V. V. Strelkov, *JOSA. B* **16**, 435 (1999)

I. Sola, *et al.* *Nature Physics*, **2**, 281(2006)



# ELLIPTICITY GATING

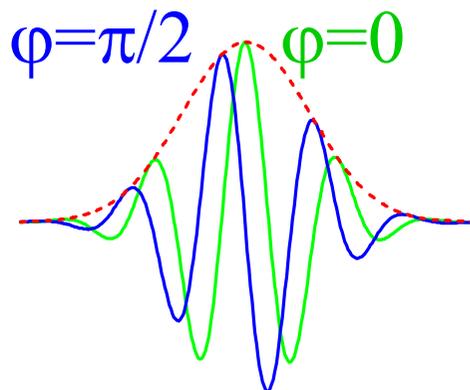
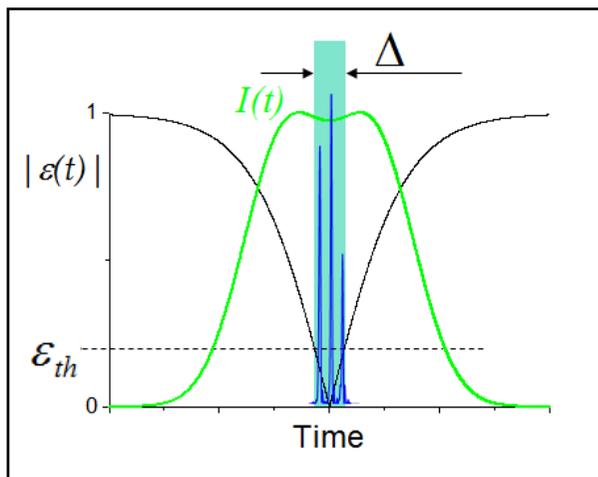


Field with time-varying ellipticity

$$\Delta = \frac{\varepsilon_{th} \tau^2}{\delta \ln 2}$$

$\varepsilon_{th}$  – threshold ellipticity

V. Strelkov, et. al. *J. Phys. B* (2005)



абсолютная фаза



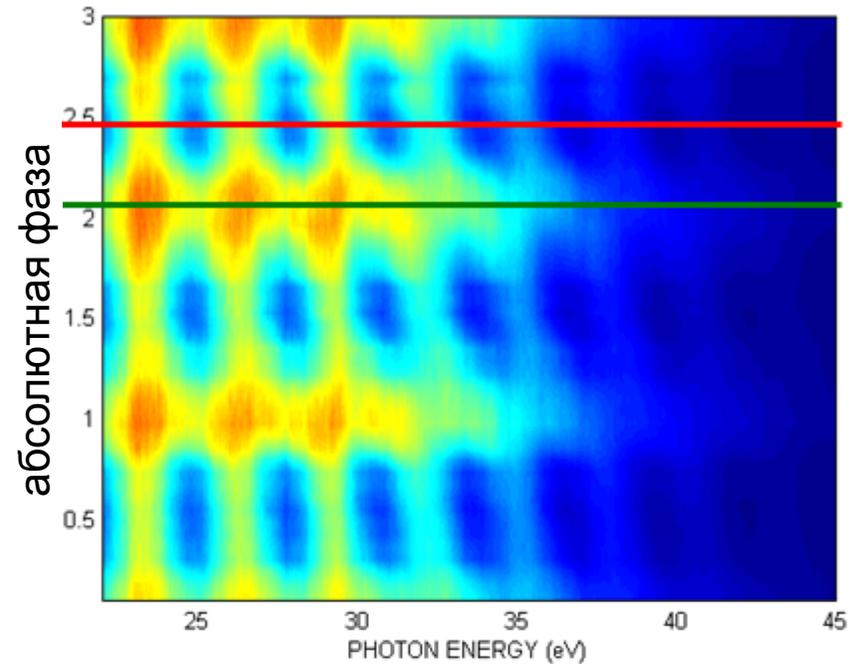
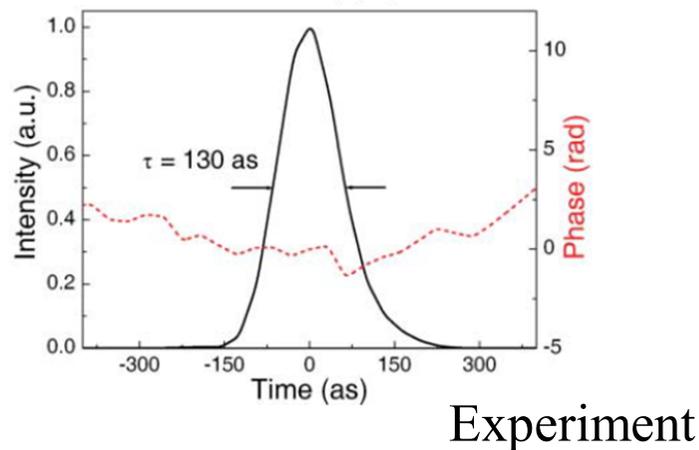
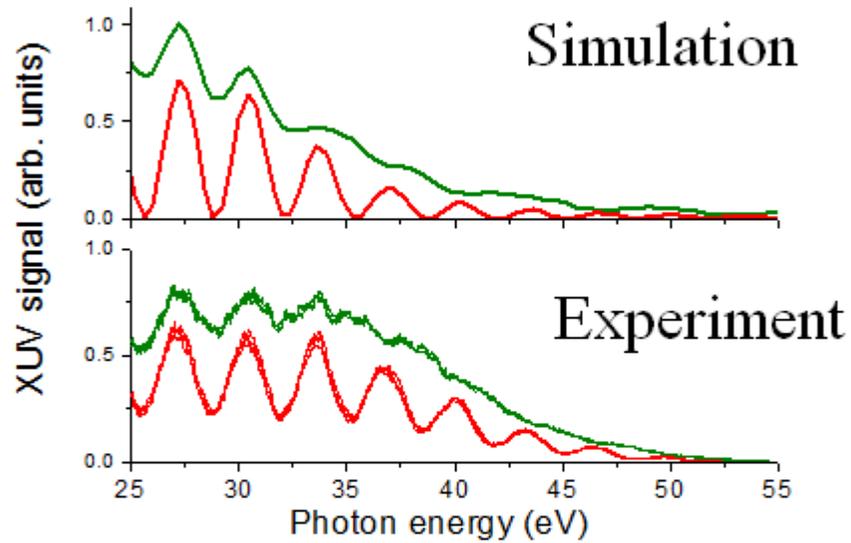
$$E(t) = F(t) \cos(\omega t + \varphi)$$

# ELLIPTICITY GATING

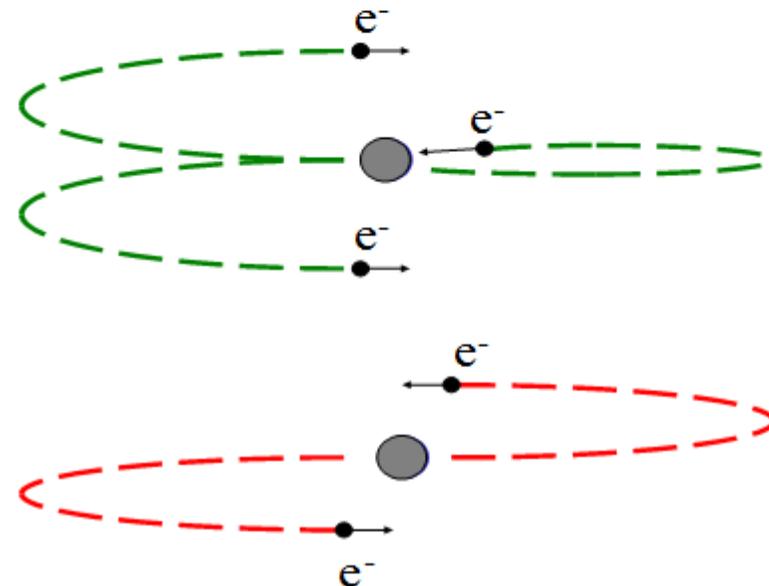
## experiment+simulation:

I. Sola, et al. *Nature Phys.* **2**, 281(2006)

G.Sansone, et al., *Science* 314, 443 (2006)

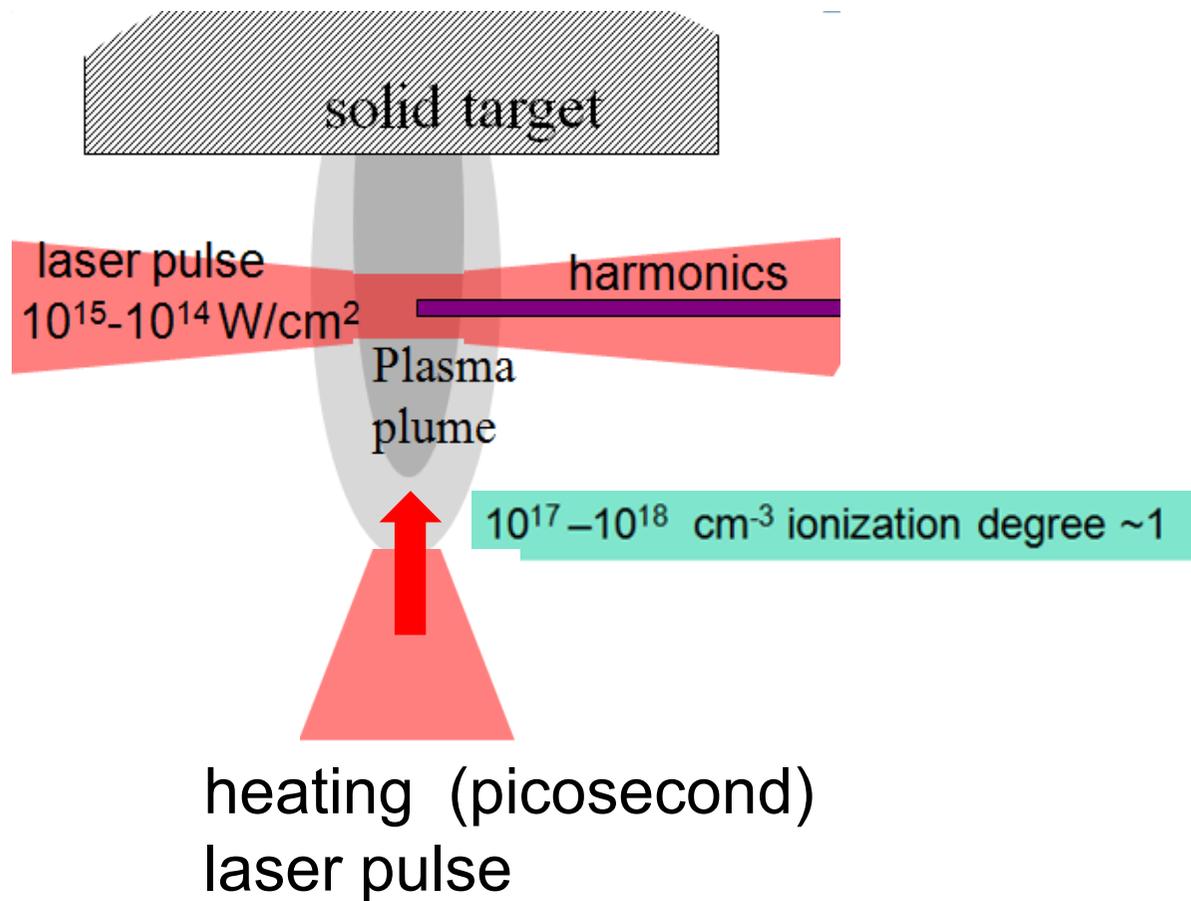


Ar, 5fs pulse,  $2.2 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>

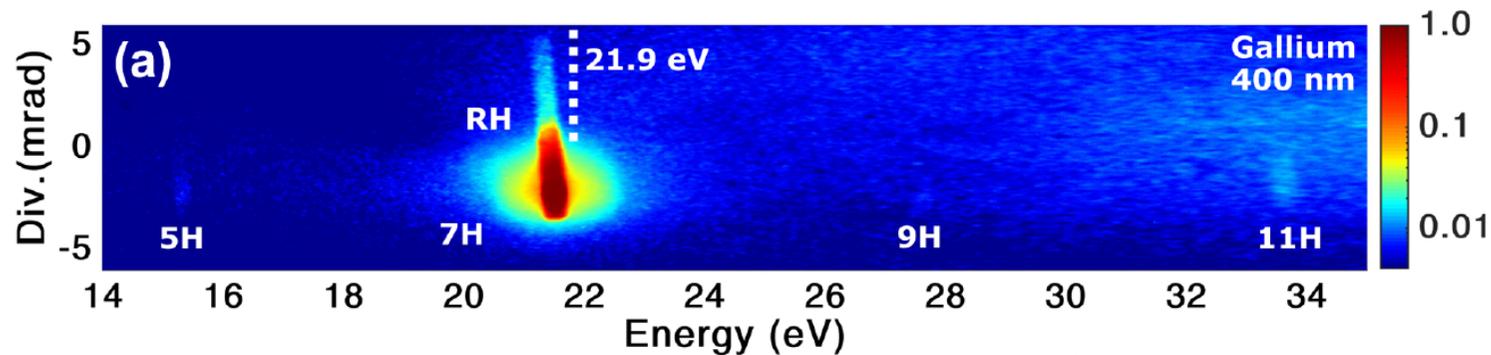


# Резонансная генерация

## гармоник высокого порядка

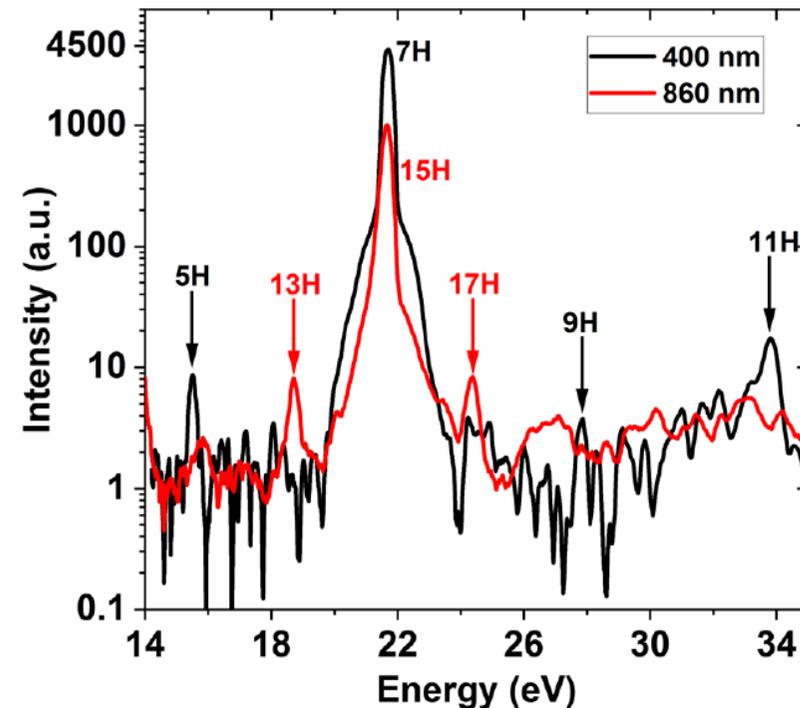


# resonant HHG in Gallium plasma



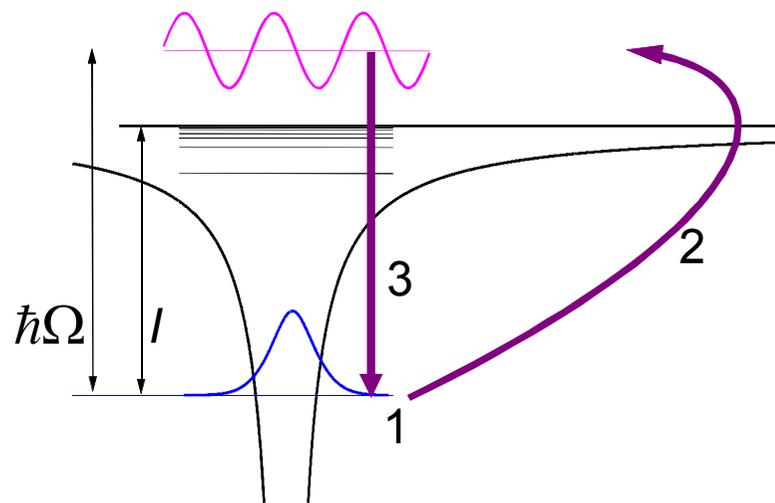
M. Singh, M. Fareed, V. Strelkov, et al.,  
*Optica*, 8, 1122 (2021)

Гармоника генерируется эффективнее, если она находится в резонансе с переходом из основного в возбужденное состояние. Для **высокой** гармоники таким состоянием может быть состояние с энергией возбуждения выше потенциала ионизации (**автоионизационное состояние**).



## Non-resonant HHG

### 3-step model



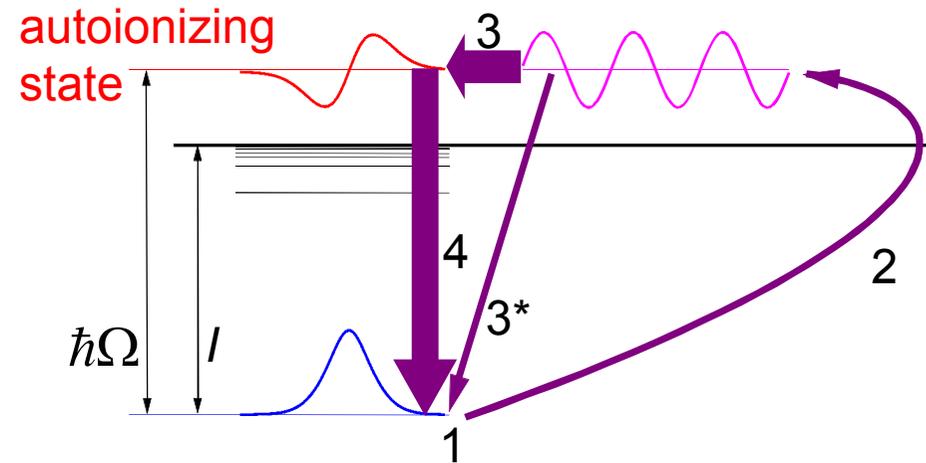
Corkum, *PRL*, **71**, 1994 (1993)

Schafer et al., *PRL*, **70**, 1599 (1993)

Кучиев М. Ю., Письма в ЖЭТФ (1987)

## Resonant HHG

### 4-step model



Strelkov, *PRL*, **104**, 123901 (2010)

Tudorovskaya and Lein, *PRA* **84**, 013430 (2011)

Strelkov, Khokhlova, Shubin, *PRA* **89**, 053833 (2014)

$$\mu(t) = \langle \Psi(t) | x | \Psi(t) \rangle$$

спектр дипольного момента

$$\mu(\omega) = F(\Delta\omega) \mu_{nr}(\omega)$$

$$F(\Delta\omega) = \left( 1 + Q \frac{\Gamma/2}{\Delta\omega + i\Gamma/2} \right)$$

$\Delta\omega$  -- отстройка от резонанса

$\Gamma$  -- ширина  
автоионизационного  
состояния

$Q$  -- комплексный параметр  
Фано

Fano, *Phys Rev*, 1961:

$$\frac{|(\Psi_E | T | i)|^2}{|(\psi_E | T | i)|^2} = \frac{(q + \epsilon)^2}{1 + \epsilon^2} = 1 + \frac{q^2 - 1 + 2q\epsilon}{1 + \epsilon^2}$$

$$q = \frac{(\Phi | T | i)}{\pi V_E^* (\psi_E | T | i)} = \frac{(\Phi | T | i) V_E}{(\psi_E | T | i) \Gamma/2}$$

$$\Gamma = 2\pi |V_E|^2$$

# Theory

$$Q=5 \exp(i \pi/2)$$

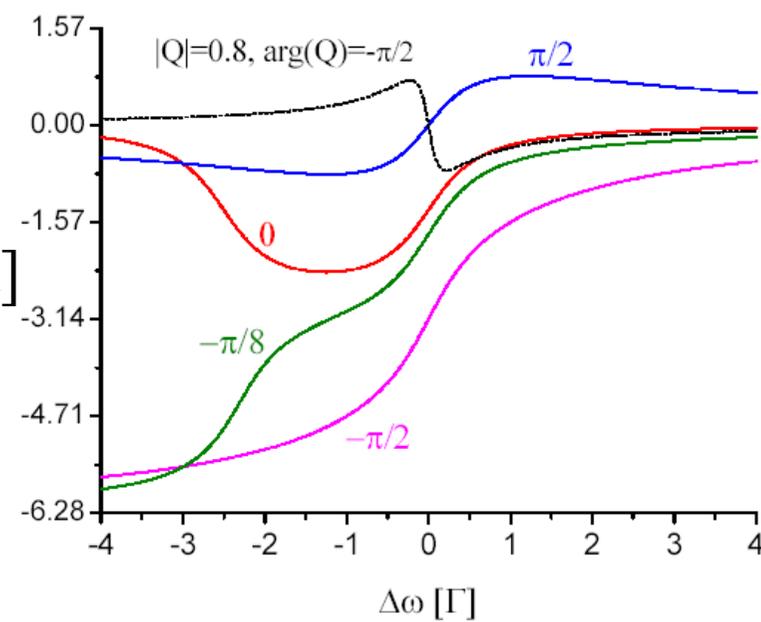
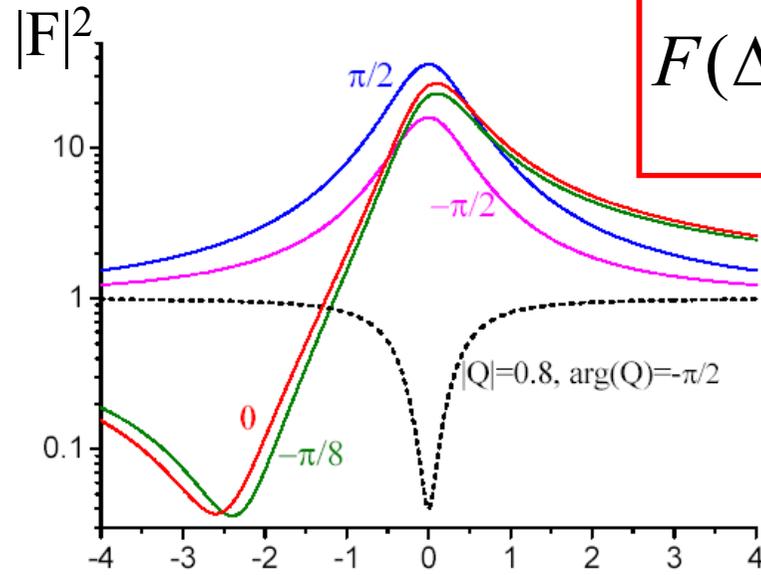
$$Q=5 \exp(-i \pi/2)$$

$$Q=5$$

$$Q=5 \exp(-i \pi/8)$$

$$Q=0.8 \exp(-i \pi/2)$$

$\arg(F)$  [rad]



$$F(\Delta\omega) = \left( 1 + Q \frac{\Gamma/2}{\Delta\omega + i\Gamma/2} \right)$$

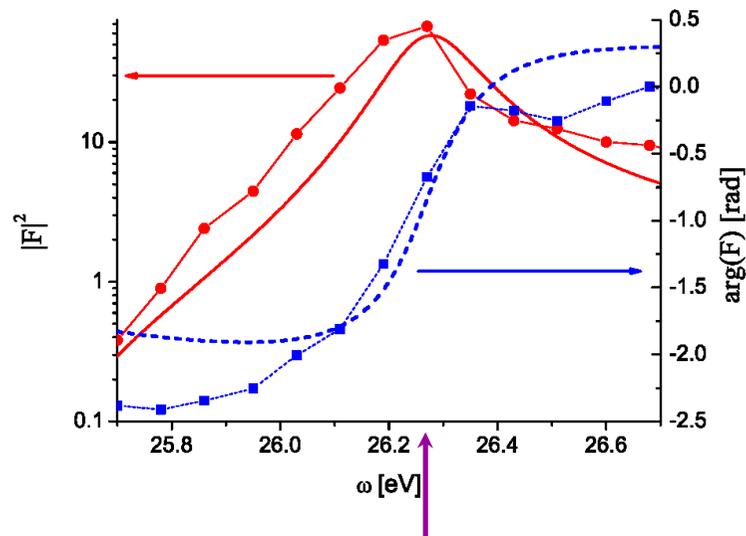
The **slope of the phase** at the resonance for high  $|Q|$  corresponds to the delay in the emission of the resonant harmonic. This delay is approximately the **doubled lifetime of the quasi-stable state**.

**Phase advance:**  $\sim \pi$  (or less) in the vicinity of the resonance, another  $\sim \pi$  or  $\sim -\pi$  either near minimum of  $|F|^2$ , or distributed at the wings in the case of the symmetric line.

The phase behavior can be very sensitive to  $\arg(Q)$ , unlike the line-shape.

# Theory vs numerical time-dependent Schrödinger equation solution

Sn II: transition  $4d^{10}5s^25p^2 P_{3/2} \leftrightarrow 4d^95s^25p^2 ({}^1D) {}^2D_{5/2}$



Resonant energy 26,27 eV

curves with symbols: numerical TDSE solution for a model system in an intense laser field

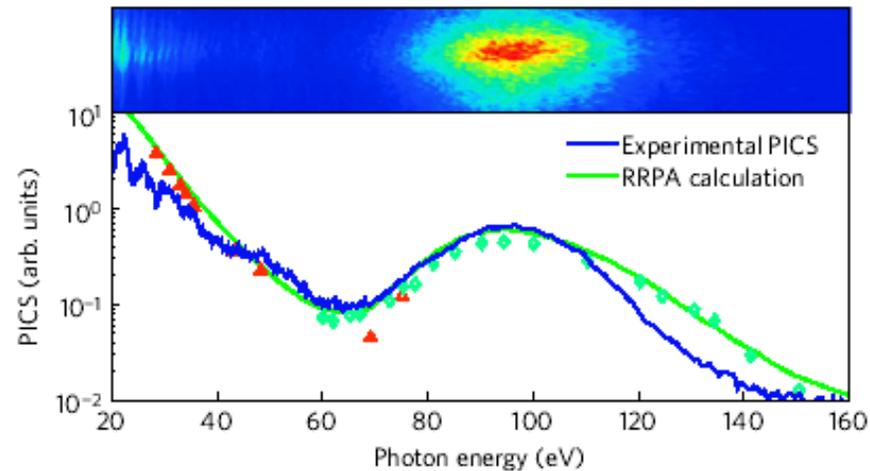
curves without symbols: analytical theory

- Strong **enhancement** of the HHG efficiency near resonance
- Line **asymmetry**
- **phase modification**

Note that modification of the resonance by the **laser field** is not taken into account in the analytical theory but is present in TDSE.

# XUV generation near giant resonance in Xenon

**Theoretical prediction:** Frolov, et. al., *PRL* **102**, 243901 (2009).  
**Experiment** Shiner, et al., *Nature Phys.*, **07**, 464 (2011)

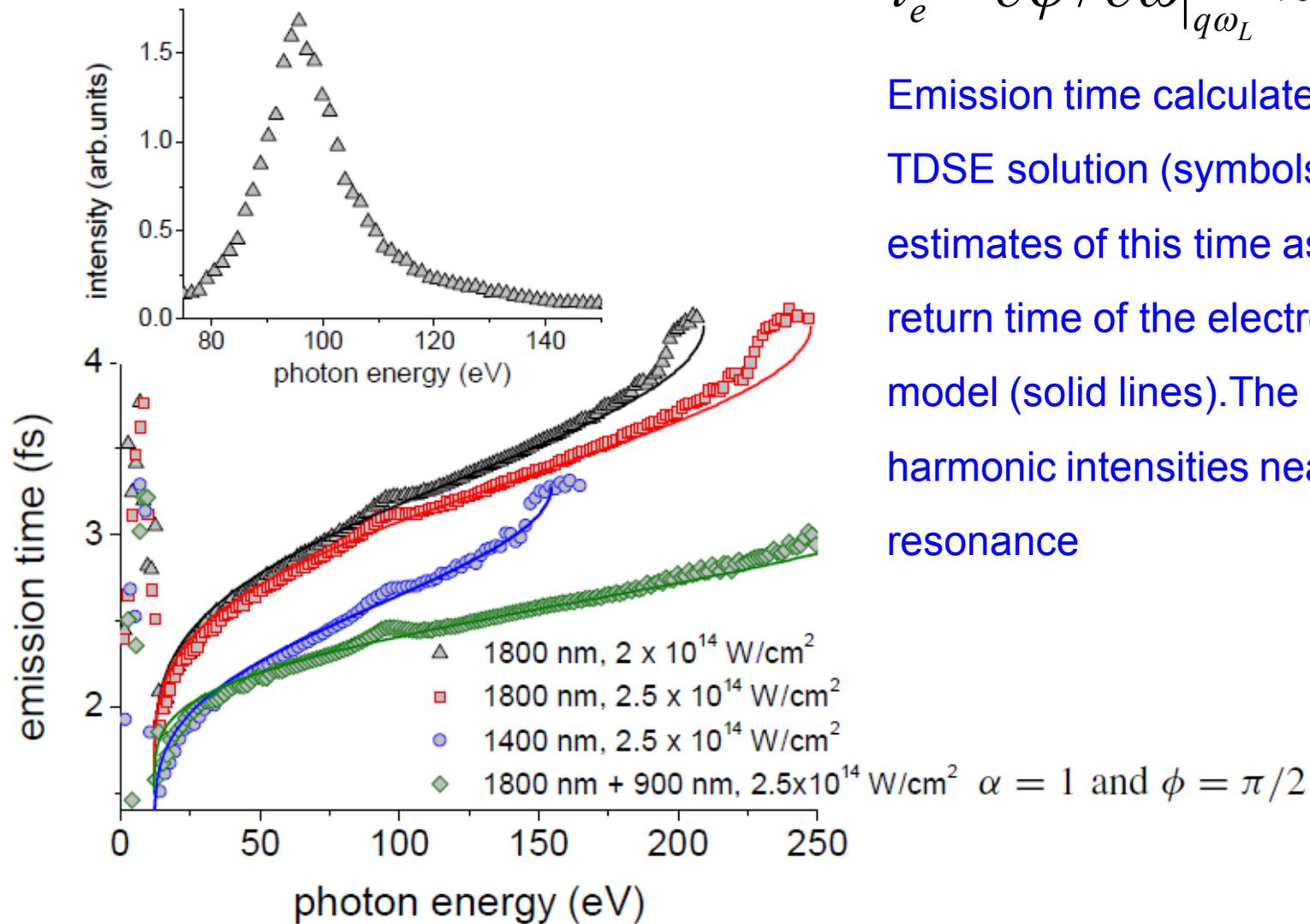


**Figure 3 | Results for xenon.** Top, the raw HHG spectrum from xenon at an intensity of  $1.9 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ . The horizontal scale has been stretched to be linear in frequency rather than wavelength. Bottom, experimental HHG spectrum divided by the krypton wave packet (blue) and the relativistic random-phase approximation (RRPA) calculation of the xenon photoionization cross-section (PICS) from ref. 25 (green). The red and green symbols are PICS measurements from refs 31 and 24 respectively, each weighted using the anisotropy parameter calculated in ref. 25.

wide resonance – short attosecond pulse from the group of resonantly enhanced harmonics

# Numerical solution of the 3D Schrödinger equation for Xenon

Strelkov, *PRA* **94**, 063420 (2016)



$$t_e = \left. \frac{\partial \varphi}{\partial \omega} \right|_{q\omega_L} \approx \frac{\Delta \varphi_q}{2\omega_L}$$

Emission time calculated via numerical TDSE solution (symbols) and the estimates of this time as a classical return time of the electron in the 3-step model (solid lines). The inset shows harmonic intensities near the resonance

$$F(t) = \exp(-i\Omega t) \int_{-\infty}^{+\infty} \exp \left[ -2 \ln(2) \left( \frac{\omega'}{\Delta\omega} \right)^2 \right] \exp \left( i \frac{K}{2} \omega'^2 \right) \exp \{ -i\omega' [t - t_r(\Omega)] \} d\omega',$$

«Free-motion-induced» attochirp:

$$K_{\text{fm}} = 1/(2\omega_l U_p)$$

minimum attopulse duration:

$$\tau = 2\sqrt{\ln(2)/(U_p \omega_l)}$$

$$\Delta\omega = 2\sqrt{2 \ln(2) U_p \omega_l}$$

$$\tau \propto \sqrt{\omega_l / I},$$

decreases with the laser frequency

( $I$  is the laser intensity)

- ▲ 1800 nm,  $2 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>
- 1800 nm,  $2.5 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>
- 1400 nm,  $2.5 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>
- ◆ 1800 nm + 900 nm,  $2.5 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>

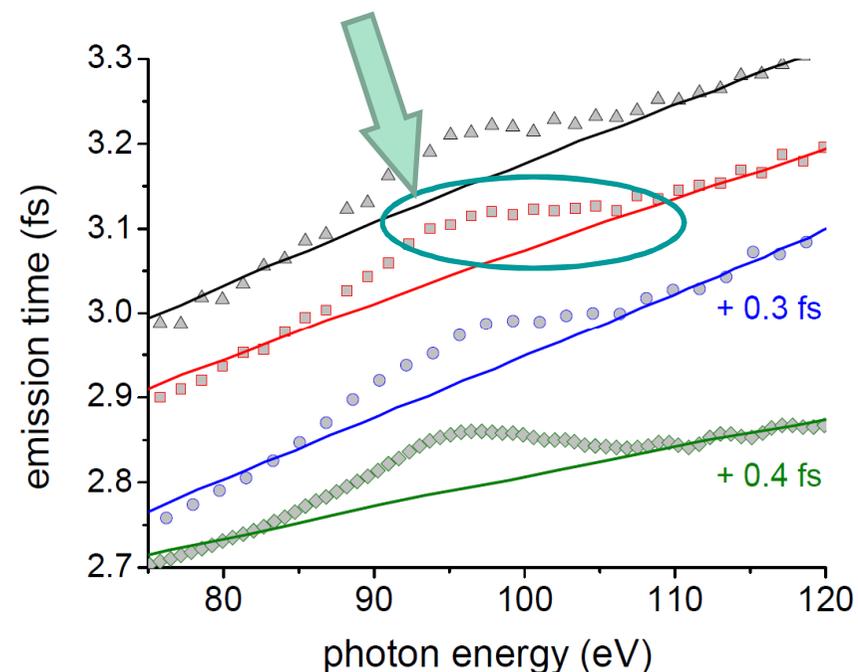
«Resonance-induced» attochirp  
above the center of the resonance:

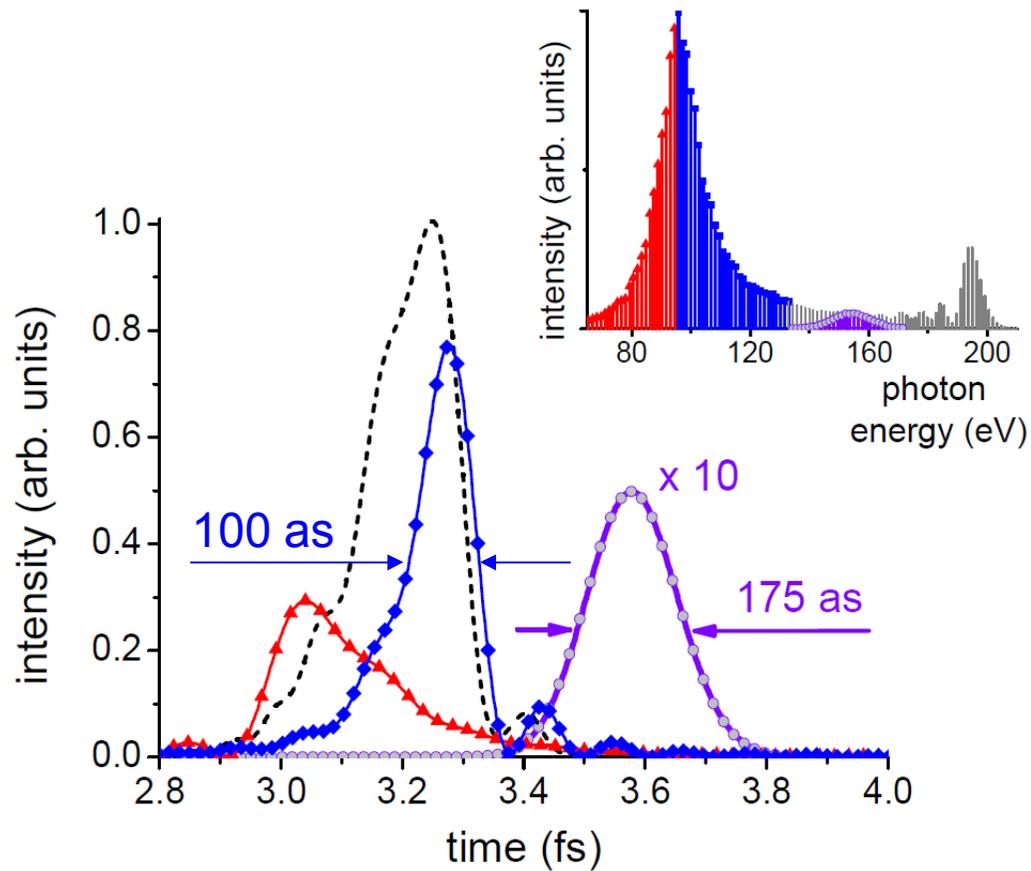
$$K_{\text{res}} = -\Gamma^{-2}$$

Compensate each other for:

$$\Gamma = \sqrt{2U_p \omega_l}$$

region of similar emission times –  
spectrally limited attopulse!



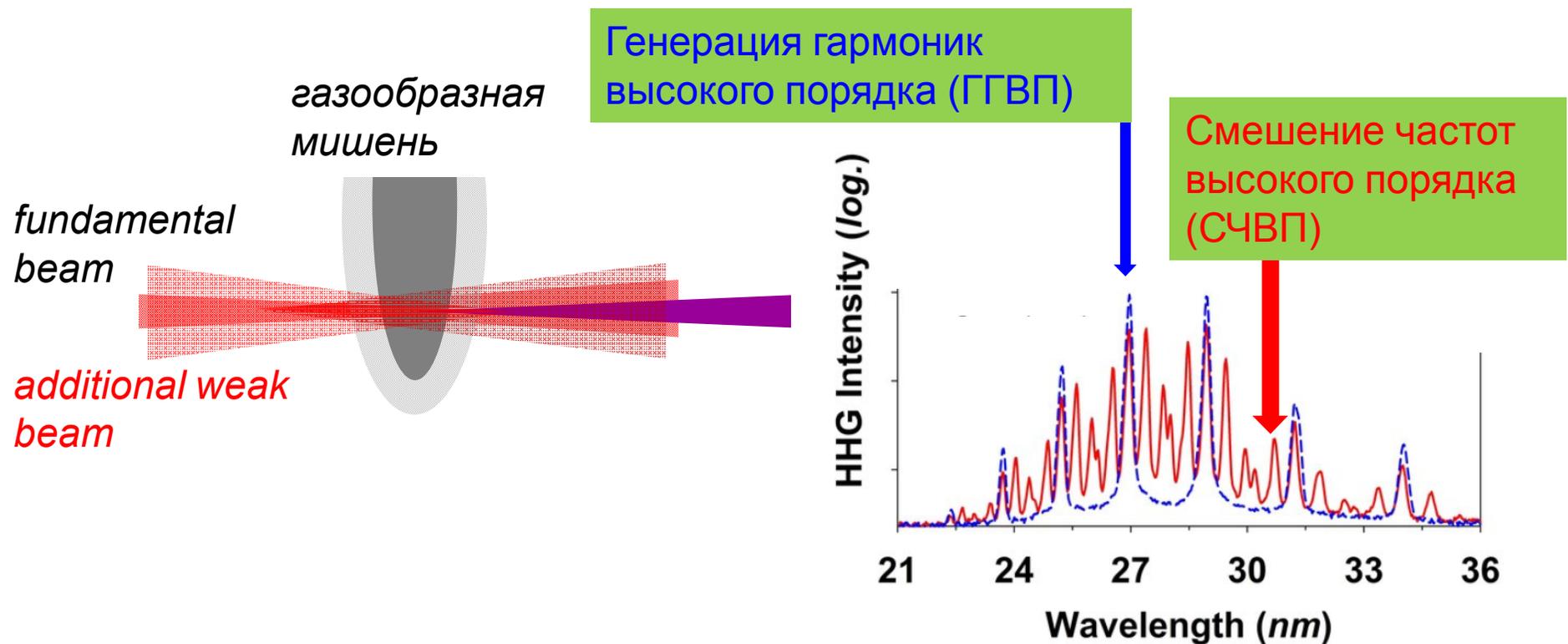


Attosecond pulses from resonantly-enhanced harmonics below the center of the resonance (red), above the center of the resonance (blue), all resonantly-enhanced harmonics (black) and the group of off-resonant harmonics chosen to minimize the attopulse duration (violet)

# Другие нелинейно-оптические процессы

высокого порядка:

смещение частот и параметрическая генерация



Генерация гармоник высокого порядка (ГГВП):

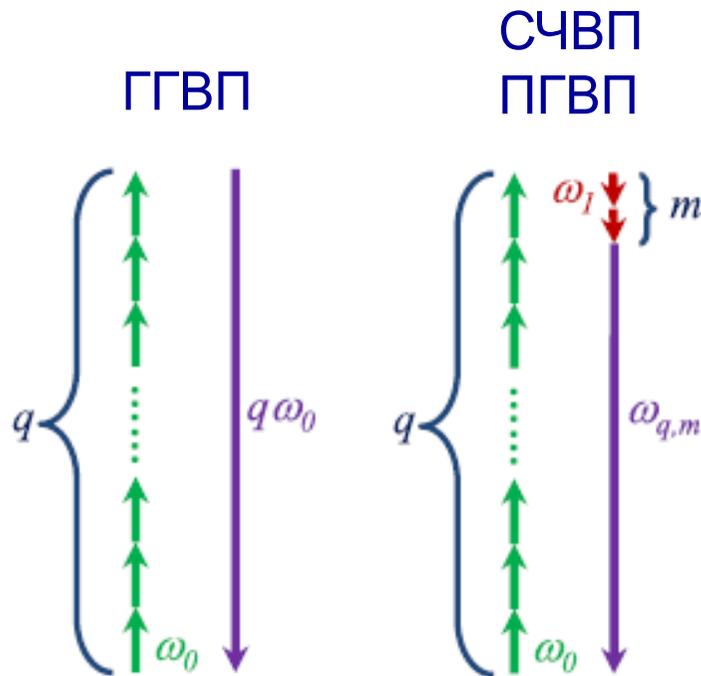
$$\omega_q = q \omega_0$$

$q$  -- нечетное

Смешение частот высокого порядка (СЧВП) и параметрическая генерация высокого порядка (ПГВП):

$$\omega_{q,m} = q \omega_0 + m \omega_1$$

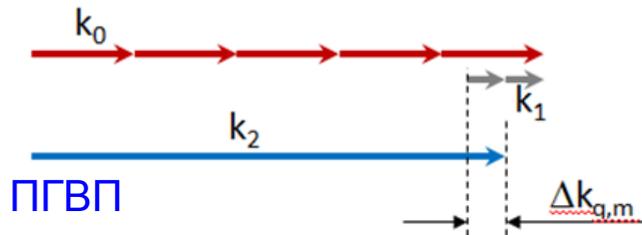
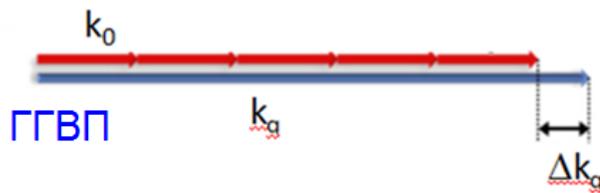
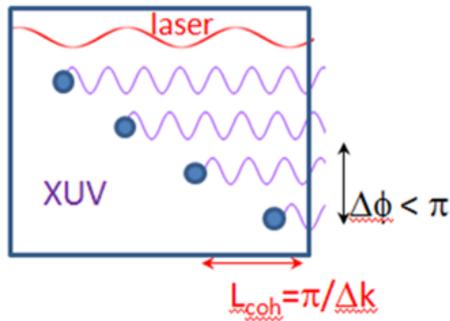
$|q| + |m|$  -- нечетное



Как и для процессов низкого порядка, один микроскопический механизм нелинейности может приводить к различным нелинейно-оптическим процессам

V. V. Strelkov, Phys. Rev. A 93, 053812 (2016)

# ГГВП и ПГВП: макроскопический отклик



Отстройка от синхронизма при:

(i) дисперсия плазмы вносит доминирующий вклад в дисперсию

(ii)  $\omega_{pl} \ll \omega_l \quad l = 0, 1, 2$

$$\Delta k_{q,m}^{\text{ГГВП}} = \frac{\omega_{pl}^2}{2c} \left( -\frac{q}{\omega_0} + \frac{1}{q\omega_0} \right)$$

$$\Delta k_{q,m}^{\text{ПГВП}} = \frac{\omega_{pl}^2}{2c} \left( -\frac{q}{\omega_0} - \frac{m}{\omega_1} + \frac{1}{q\omega_0 + m\omega_1} \right)$$

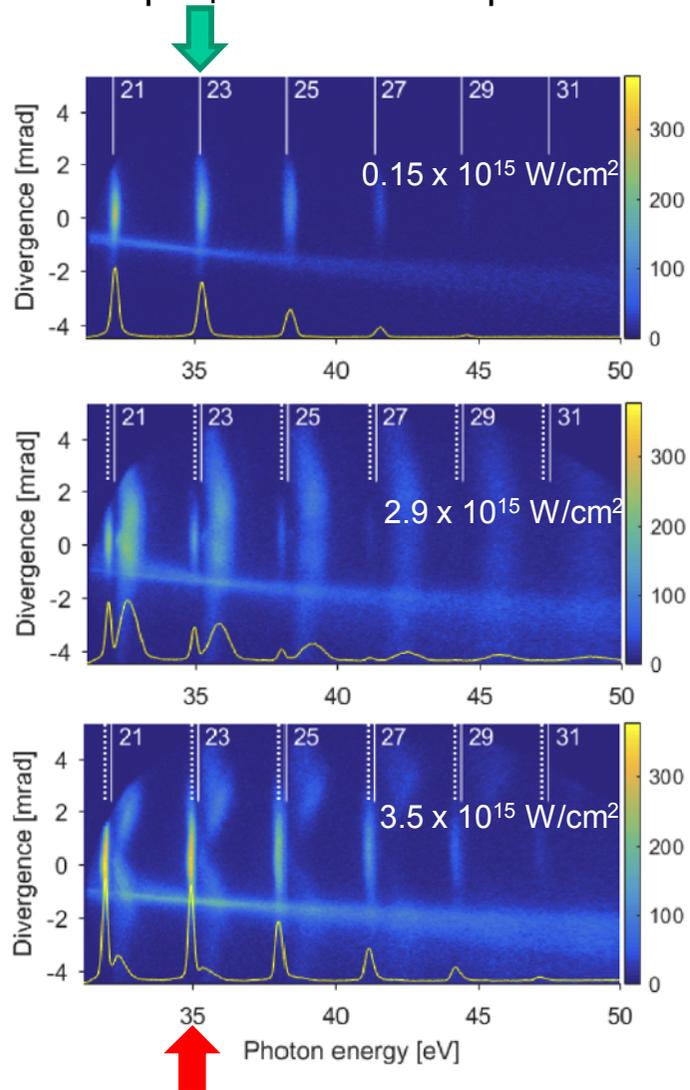
$$\Delta k_{q,m}^{\text{ПГВП}} = 0 \quad \text{при:} \quad \omega_1 = \frac{|m|}{q} \omega_0 \quad m < 0$$

ПГВП идет с выполнением условия фазового синхронизма даже при меняющейся глубине ионизации среды:

$$L_{coh}^{\text{ПГВП}} \gg L_{coh}^{\text{ГГВП}}$$

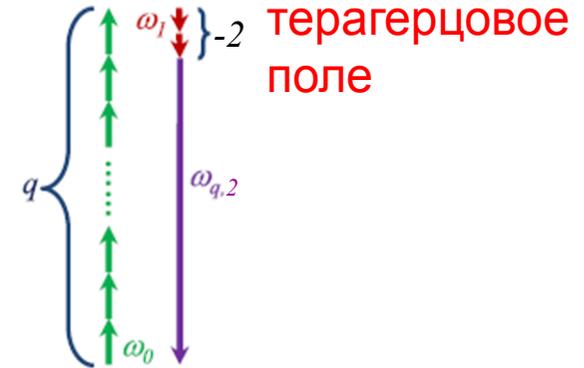
эксперимент:

генерация высоких гармоник



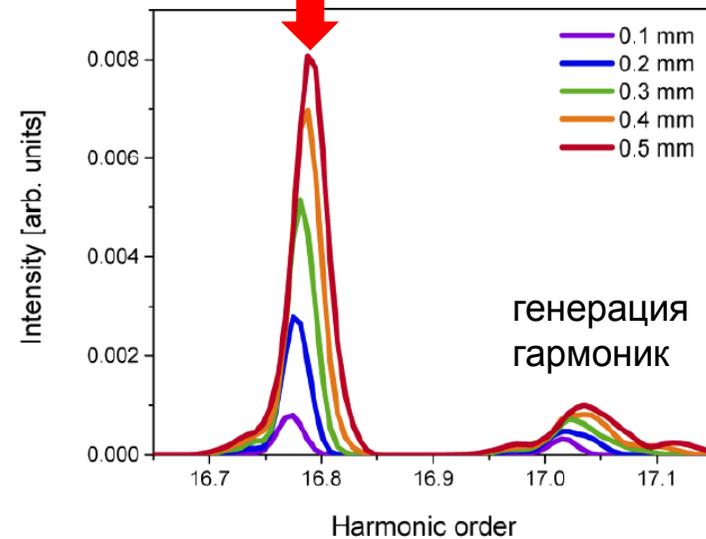
параметрическая генерация  
высокого порядка

Kr, laser:45 fs, 810 nm



расчет (уравнения распространения для полей + уравнение Шредингера для поляризации):

параметрическая генерация



O. Hort, et al., Optics Express 29, 5982 (2021)

## Закключение

Одиночный аттосекундный импульс может быть получен с использованием предельно-короткого лазерного импульса или импульса с меняющейся эллиптичностью.

Генерация резонансных гармоник высокого порядка может быть объяснена в рамках «четырёхшаговой» модели. Эффективность такой генерации может более чем на два порядка превосходить эффективность генерации нерезонансных гармоник. Резонансный вклад в фазу гармоники позволяет получить спектрально-ограниченный аттоимпульс.

Процессы смешения частот и параметрической генерации высокого порядка могут идти с выполнением условия фазового синхронизма. Наблюдался процесс параметрической генерации высокого порядка с интенсивностью, превышающей интенсивность высоких гармоник.

