

Генерация гармоник высокого порядка вблизи низкочастотного края плато при нелинейном распространении фемтосекундного лазерного излучения ближнего ИК диапазона с длиной волны 1.24 мкм в плотной струе аргона

Б. В. Румянцев¹⁾, А. В. Пушкин, Ф. В. Потёмкин

Физический факультет, МГУ имени М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 25 июня 2023 г.

После переработки 23 июля 2023 г.

Принята к публикации 24 июля 2023 г.

Реализована генерация гармоник высокого порядка (15–25) в вакуумной ультрафиолетовой области спектра (83–50 нм) при воздействии сфокусированного ($NA = 0.033$) фемтосекундного лазерного излучения ближнего ИК диапазона ($\lambda = 1.24$ мкм) на плотную газовую струю при вакуумной интенсивности $\sim 7.5 \cdot 10^{14}$ Вт/см². Экспериментально показано, что использование такой фокусировки с высокой числовой апертурой требует использования высоких (до 10 бар) давлений для оптимизации фазового согласования. При этом использование плотной газовой струи приводит к заметному проявлению нелинейных эффектов распространения генерирующего излучения, влияющих на процесс генерации путем изменения условий фазового согласования. Кроме того, показано, что пре-чирпирование генерирующего импульса позволяет скомпенсировать чирп, возникающий вследствие фазовой самомодуляции, и увеличить эффективность генерации гармоник вследствие нелинейной компрессии генерирующего импульса. Данный подход позволил сгенерировать излучение 17-й гармоники (73 нм) с энергией в импульсе на уровне 2 пДж и соответствующей эффективностью генерации $5.4 \cdot 10^{-9}$, что, согласно проведенным оценкам, позволяет использовать такое излучение для одноимпульсной безмасочной фотолитографии в экстремальном ультрафиолетовом диапазоне.

DOI: 10.31857/S1234567823160085, EDN: ivaosk

Введение. Генерация гармоник высокого порядка (ГГВП) в поле интенсивного (10^{14} – 10^{15} Вт/см²) фемтосекундного лазерного излучения в настоящее время является объектом активных научных исследований в области лазерной физики и нелинейной оптики. В основе процесса ГГВП лежат фундаментальные аспекты взаимодействия лазерного излучения с веществом в режиме плазмообразования, находящиеся на стыке лазерной физики, нелинейной оптики, квантовой теории и атомной физики, что обуславливает фундаментальную значимость данной области физики. Не менее важна и прикладная значимость явления ГГВП: на сегодняшний день источники на основе данного эффекта являются единственным настольным инструментом для получения когерентного излучения в области вакуумного ультрафиолетового [1] и мягкого рентгеновского диапазонов [2] и генерации аттосекундных (10^{-18} с) импульсов [3].

Основным способом управления временной формой, состоянием поляризации и эффективно-

стью ГГВП является изменение временной формы поля генерирующего импульса, что, в частности, осуществляется путем двухцветного лазерного воздействия. Так, добавление второй гармоники к основному импульсу позволяет нарушить симметрию воздействующего лазерного поля и приводит к генерации четных гармоник наравне с нечетными [4]. Кроме того, использование двухцветных полей с различными состояниями поляризации позволяет генерировать эллиптически поляризованное излучение гармоник [5]. Отдельный интерес представляет добавление к основному генерирующему излучению мощного ТГц-импульса в качестве сильного квазипостоянного поля [6]. Так, в рамках теоретических работ показано, что это позволяет расширить спектр генерируемых гармоник [7] с одновременной генерацией гармоник четного порядка за счет нарушения симметрии взаимодействия ТГц-полем [8], что также было продемонстрировано экспериментально [9].

Наиболее распространенными источниками генерирующего излучения на сегодняшний день являются

¹⁾e-mail: rumjancev.bv15@physics.msu.ru

ся лазерные системы на кристалле Ti:Sapphire (длина волны ~ 0.8 мкм), а также на кристаллах, легированных ионами Yb (длина волны ~ 1 мкм) [10], что обусловлено широкой коммерческой доступностью таких систем и возможностью работы в режиме высокой (до уровня МГц [11]) частоты повторения, которая позволяет скомпенсировать малую пиковую мощность генерируемого излучения гармоник за счет повышения его средней мощности. Для перехода в более длинноволновый диапазон, что необходимо для расширения спектра гармоник [12], обычно применяют нелинейно-оптические схемы, основанные на параметрическом преобразовании частоты источника излучения в ближнем инфракрасном (ИК) диапазоне [13]. Такие схемы отличаются необходимостью тонкой юстировки для подбора нужной длины волны, а также дополнительным уменьшением результирующей эффективности генерации излучения гармоник за счет наличия дополнительного каскада нелинейно-оптического преобразования длины волны генерирующего излучения.

Альтернативным подходом к повышению длины волны генерирующего излучения является использование лазерных систем, напрямую генерирующих длинноволновое излучение ближнего и среднего ИК диапазонов. К числу таких источников можно отнести лазерные системы на кристалле Cr:Forsterite (длина волны 1.24 мкм) и Fe:ZnSe (длина волны 4.5 мкм) [14], которые к настоящему моменту уже использовались для генерации гармоник низкого порядка [15–18] и являются перспективными источниками для получения более коротковолнового излучения в рамках процесса ГГВП. В связи с этим в рамках данной работы впервые реализована генерация гармоник высокого порядка излучением лазерной системы на кристалле Cr:Forsterite.

ГГВП с использованием длинноволнового излучения приводит к необходимости тщательной оптимизации процесса генерации, поскольку отклик одиночного атома на приложенное лазерное поле в рамках процесса ГГВП падает с ростом длины волны как λ^{-x} , где $x = 5-6$ [12]. Одним из способов компенсации данного эффекта выступает увеличение плотности газовой среды, что позволяет повысить количество атомов среды, участвующих во взаимодействии. При этом повышение плотности газовой среды приводит к увеличению влияния нелинейных эффектов распространения генерирующего излучения. Поэтому экспериментальная реализация ГГВП с использованием длинноволнового излучения требует исследования влияния нелинейных эффектов распространения на процесс генерации.

Влияние нелинейных эффектов на процесс ГГВП рассматривалось в рамках как теоретических, так и экспериментальных работ. Так, в работе [19] приведена численная $3D + 1$ модель ГГВП с учетом распространения генерирующего излучения и гармоник в условиях влияния керровской нелинейности и генерации плазмы. Приведенная модель, микроскопический отклик в которой рассчитывается на основе QRS (*quantitative rescattering*) подхода, корректно описывает экспериментальные спектры гармоник, а также позволяет восстановить спектр, соответствующий микроскопическому отклику атомарной или молекулярной среды. Схожая модель представлена в работе [20], где для расчета микроскопического отклика используется подход на основе теории функционала плотности. В теоретико-экспериментальной работе [21] показано, что генерация гармоник в режиме самоканализирования и соответствующего ограничения интенсивности генерирующего лазерного излучения на длине волны 1.8 мкм, приводя к ограничению частоты отсечки, в то же время позволяет повысить эффективность генерации за счет увеличения длины эффективной области взаимодействия и сформировать коллимированный пучок излучения гармоник в диапазоне 50–550 эВ. В работе [22] зарегистрировано изменение спектра генерирующего излучения ближнего ИК диапазона в результате распространения на относительно длинной (30 см) трассе при генерации гармоник.

В отличие от перечисленных работ, в рамках данной статьи акцент сделан на экспериментальном исследовании влияния нелинейных эффектов распространения на процесс фазового согласования при генерации гармоник высокого порядка в плотной газовой струе, а также возможности использования данных эффектов для повышения эффективности генерации.

Экспериментальная установка. Схема экспериментальной установки представлена на рис. 1. В качестве генерирующего лазерного излучения использовалось излучение фемтосекундной лазерной системы на кристалле Cr:Forsterite (длина волны 1.24 мкм, длительность импульса 110 фс (FWHM), энергия до 3.5 мДж, частота следования импульсов 10 Гц). Для изменения энергии генерирующего излучения использовалась полуволновая пластинка в совокупности с поляризатором, которые были установлены до компрессора лазерной системы. Излучение, проходя через тонкое окно из SiO₂, попадало в камеру регистрации, где оно фокусировалось линзой с фокусным расстоянием 100 мм в режиме фокусировки с $NA = 0.033$ в импульсную струю аргона,

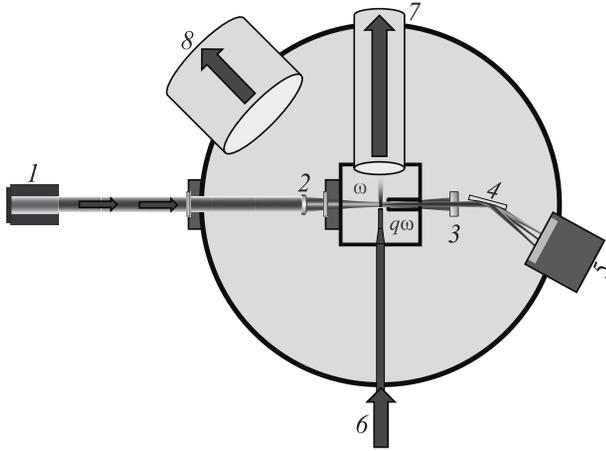


Рис. 1. (Цветной онлайн) Схема экспериментальной установки. Цифрами обозначены: 1 – Лазерная система на кристалле Cr:Forsterite (центральная длина волны 1.24 мкм, длительность импульса 110 фс (FWHM), энергия импульса до 3.5 мДж, частота следования импульсов 10 Гц). 2 – Линза с фокусным расстоянием 100 мм. 3 – Al-фильтр. 4 – Вогнутая дифракционная решетка 300 штрихов/мм. 5 – Камера для регистрации излучения гармоник. 6 – Подача аргона. 7 – Откачка подаваемого газа из камеры генерации. 8 – Откачка подаваемого газа из камеры регистрации

расположенную в камере генерации. Использование подобной фокусировки с относительно высокой числовой апертурой обеспечило примерное совпадение длины среды генерации ($L \approx 500$ мкм) с конфокальным параметром ($2z_R \approx 700$ мкм) генерирующего излучения, что позволило оптимизировать эффективность генерации [16], но, в то же время, обеспечило ненулевой вклад геометрической фазы в рамках фазового согласования. Достижимая вакуумная интенсивность в перетяжке составляла $\sim 7.5 \cdot 10^{14}$ Вт/см² при максимальной используемой энергии генерирующего импульса 400 мкДж. После камеры генерации был установлен Al-фильтр, блокирующий генерирующее излучение и пропускающий излучение гармоник в диапазоне энергий фотонов ~ 15 –70 эВ. Пропущенное излучение гармоник попадало на вогнутую дифракционную решетку. Для регистрации дифрагировавшего излучения гармоник использовалась камера Dhuana XF95. Разрешающая способность данной системы с учетом линейной дисперсии в фокусе решетки и размера пикселя камеры выше, чем $\lambda/\delta\lambda = 2000$. Калибровка длины волны генерируемого излучения гармоник осуществлялась по спектру пропускания Al-фильтра, калибровка энергии регистрируемого излучения проводилась в соответствии с квантовой эффективностью камеры и спектром пропускания фильтра.

Результаты и обсуждение. С использованием приведенной экспериментальной установки были сгенерированы и зарегистрированы 15-я (83 нм), 17-я (73 нм), 19-я (65 нм), 21-я (59 нм), 23-я (54 нм) и 25-я (50 нм) гармоники (рис. 2с). Зависимости спектра гармоник от давления, подаваемого на газовую струю, и энергии генерирующего импульса представлены на рис. 2а, б.

Как свидетельствует рис. 2а, б, спектр генерируемого излучения существенным образом зависит от давления, подаваемого на газовую струю, и энергии генерирующего импульса. Максимальный энергетический выход гармоник был достигнут при давлении 5.5 бар и энергии импульса 400 мкДж. Спектр зарегистрированного излучения при данных параметрах представлен на рис. 2с. Номер гармоник совпадает с энергией фотонов в единицах эВ, поскольку длина волны генерирующего излучения (1.24 мкм) соответствует энергии фотона 1 эВ.

Синяя кривая на рис. 2с демонстрирует спектр, зарегистрированный при таком расстоянии между решеткой и плоскостью регистрации, при котором в фокусе находится одна из крайних гармоник – 17-я. При этом в зарегистрированном спектре разрешены 15-я, 17-я, 19-я и 21-я гармоники. С увеличением номера гармоники спектральные компоненты сливаются вследствие уменьшения разрешающей способности системы регистрации и, как видно для 23-й и 25-й гармоник, могут полностью перекрываться, давая в спектре интерференционный паттерн. Уменьшение разрешающей способности системы регистрации при увеличении номера гармоники объясняется особенностями схемы регистрации, связанными с регистрацией плоской матрицей дифрагировавшего излучения гармоник, фокусирующегося на окружности Роуанда (см. вставку на рис. 2d), что является следствием уменьшения эффективной линейной дисперсии решетки вне фокальной плоскости.

При увеличении расстояния между решеткой и плоскостью регистрации (рис. 2е) фокус смещается в сторону гармоник более высокого порядка, что, как свидетельствует красная кривая на рис. 2с, позволяет повысить спектральное разрешение для 23-й и 25-й гармоник, однако при этом ухудшается разрешение для 15-й и 17-й гармоник. Дополнительно к этому, учет отличия формы плоскости регистрации от поверхности фокусировки решетки, координата вдоль которой приближенно может быть описана как $y(x) = y_0 + a \cdot x^2$, где x – координата вдоль плоскости регистрации, позволил линеаризовать шкалу энергий фотонов и получить эквидистантное распределение гармоник.

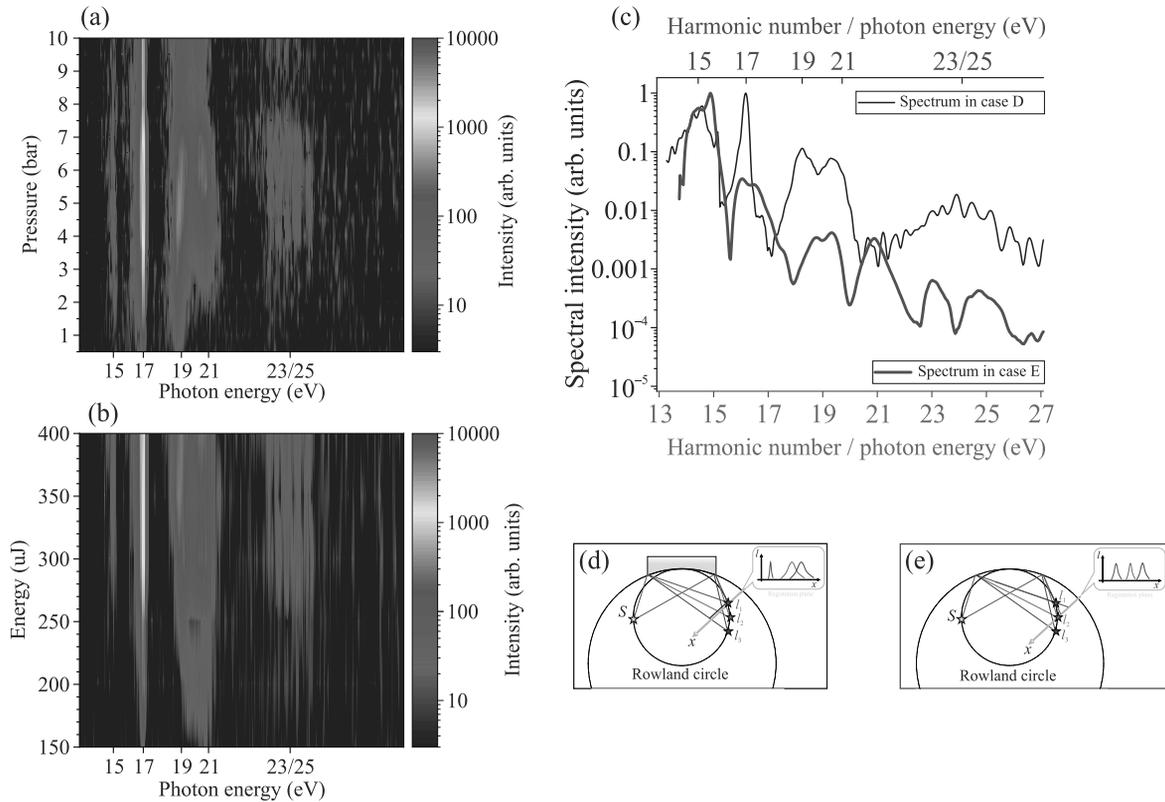


Рис. 2. (Цветной онлайн) (а) – Зависимость зарегистрированного спектра гармоник от давления аргона при энергии генерирующего импульса 400 мкДж. (б) – Зависимость зарегистрированного спектра гармоник от энергии генерирующего импульса при давлении 5.5 бар. (с) – Спектр гармоник, зарегистрированный при энергии генерирующего импульса 400 мкДж и давлении 5.5 бар при двух расстояниях между решеткой и плоскостью регистрации, соответствующие схемы изображены на вставках (d) и (e). Вставки (d) и (e) демонстрируют схему регистрации дифрагировавшего излучения гармоник при использовании вогнутой дифракционной решетки совместно с плоской регистрирующей матрицей камеры. S – точечный источник, в качестве которого в эксперименте выступает перетяжка генерирующего излучения на газовой мишени, $I_{1,2,3}$ – точка фокуса гармоник 1, 2, 3 соответственно. Регистрация плоской матрицей излучения, фокусирующегося на окружности Роуленда, при таком расстоянии между решеткой и плоскостью регистрации, когда в фокусе оказывается одна из крайних гармоник (вставка (d)), приводит к наложению спектральных компонент, фокус которых расположен не на плоскости регистрации. Увеличение расстояния между решеткой и плоскостью регистрации позволяет избежать наложения спектральных компонент за счет смещения фокуса в сторону больших энергий фотонов (вставка (e))

Отсутствие в спектре гармоник более высокого порядка (вплоть до ~ 350 эВ при достигаемой вакуумной интенсивности $\sim 7.5 \cdot 10^{14}$ Вт/см²) может объясняться двумя факторами. Первый фактор заключается в том, что гармоники более высоких порядков попадают на матрицу в условиях расходящегося волнового фронта после фокуса, вследствие чего интенсивность этих гармоник находится вне динамического диапазона регистрации. Второй фактор заключается в использовании сравнительно длинного импульса (110 фс, 27 циклов поля) для генерации, что может нарушать условия фазового согласования для гармоник более высокого порядка за счет формирования плазмы передним фронтом импульса.

Как свидетельствует рис. 2с, 17-я гармоника имеет наименьшую спектральную ширину среди зарегистрированных гармоник, из чего следует, что при регистрации ее фокус находился ближе остальных к плоскости регистрации, в связи с чем дальнейшие экспериментальные зависимости будут приведены для этой гармоники.

Одним из основных параметров, влияющих на макроскопический отклик среды при генерации гармоник, является плотность атомов газовой струи, которая определяется давлением газа, подаваемым на мишень. Влияние давления p на эффективность генерации q -й гармоники описывается следующим выражением [23]:

$$I_q \propto |p \cdot F_q(p)|^2, \quad (1)$$

где

$$F_q(p) = \int_{-L/2}^{L/2} \frac{e^{i(\Delta k(p)z' - (q-1) \cdot \text{atan}(z'/z_R))}}{(1 + (z'/z_R)^2)^{\frac{q-1}{2}}} dz' \quad (2)$$

– интеграл фазового согласования, L – длина среды, z_R – длина Рэлея (дифракционная длина), $\Delta k(p) = qk_1(p) - k_q(p)$ – скалярная расстройка волновых векторов q -й гармоники и поляризации q -го порядка. Как свидетельствует выражение (2), максимизация энергии q -й гармоники происходит при равенстве показателя комплексной экспоненты нулю, что достигается при условии:

$$\Delta k(p)z' - (q-1) \cdot \text{atan}(z'/z_R) = 0, \quad (3)$$

которое является условием фазового согласования при генерации гармоник сфокусированным гауссовым пучком. Первое слагаемое отвечает за фазовую расстройку между q -й гармоникой и волной поляризации q -го порядка, возникающую за счет материальной дисперсии среды и дисперсии плазмы, наводимой генерирующим импульсом, второе слагаемое в выражении (3) является геометрической фазой. Стоит отметить, что выполнение данного условия сразу для всех точек $z \in [-L/2; L/2]$ возможно только при условии $L \ll 2z_R$. В ином случае условие (3) неосуществимо сразу для всех точек среды, поэтому имеет смысл говорить о выполнении данного условия в среднем по длине среды L .

Подчеркнем, что описание процесса генерации гармоник на основе выражений (1)–(3) включает в себя только описание фазового согласования и не содержит описания отклика одиночного атома на воздействие сильного светового поля, а также описания нелинейных эффектов распространения. Более точное моделирование, включающее в себя описание указанных эффектов, проводилось в рамках работы [24], где проводились самосогласованные численные расчеты распространения импульса с центральной длиной волны ближнего ИК диапазона (810 нм) и длительностью 15–40 фс в аргоне и неоне с учетом отклика одиночного атома, полученного путем трехмерного моделирования нестационарного уравнения Шредингера (3D TDSE). При этом учитывалось изменение формы импульса в частично ионизированной газовой среде, влияние давления газа и вида атома.

Поскольку в диапазоне давления, на масштабах которого сохраняется агрегатное состояние среды, зависимости показателя преломления и концентрации атомов среды от давления линейны, то расстройка волновых векторов может быть записана как:

$$\Delta k(p) = p \cdot \Delta k_{1bar} = p \cdot (\Delta k_{1bar}^{\text{mat}} - \Delta k_{1bar}^{\text{plasma}}), \quad (4)$$

где Δk_{1bar} – нормированная на давление расстройка волновых векторов при давлении 1 бар, $\Delta k_{1bar}^{\text{mat}}$ – соответствующий вклад материальной дисперсии, $\Delta k_{1bar}^{\text{plasma}}$ – вклад наводимой плазмы. Эффективная генерация гармоник происходит при выполнении условия (3), которое возможно только в том случае, если $\Delta k_{1bar} = \Delta k_{1bar}^{\text{mat}} - \Delta k_{1bar}^{\text{plasma}} > 0$. Выполнение данного условия возможно только в случае, когда частоты генерирующего излучения и его гармоники лежат по разные стороны от электронного резонанса среды генерации, что свойственно для гармоник высокого порядка, в отличие от гармоник низкого порядка. Как свидетельствует выражение (3), существует оптимальное значение давления p_{max} , при котором значение интеграла (2) и, как следствие, величина интенсивности q -й гармоники будут максимальными:

$$p_{\text{max}} = \frac{(q-1) \cdot \text{atan}(z'/z_R)}{\Delta k_{1bar} z'}. \quad (5)$$

Рост степени ионизации среды за счет повышения интенсивности генерирующего импульса будет приводить к сокращению разницы между $\Delta k_{1bar}^{\text{mat}}$ и $\Delta k_{1bar}^{\text{plasma}}$, уменьшению величины Δk_{1bar} и соответствующему повышению оптимального давления p_{max} [24]. Важно отметить, что в случае генерации гармоник низкого порядка наблюдается ровно обратная ситуация [18], что связано с нахождением частот гармоники и основного излучения по одну сторону от электронного резонанса среды.

В области малых давлений, при которых влияние интеграла фазового синхронизма (2) мало, рост энергии гармоник с повышением давления происходит как $I_q \propto p^2$ (см. (1)). Дальнейшее увеличение давления приводит к увеличению влияния интеграла фазового синхронизма за счет увеличения вклада материальной дисперсии среды и дисперсии наводимой лазерным импульсом плазмы $\Delta k(p)$, что проявляется в отклонении от закона $I_q \propto p^2$. Последующее повышение давления приводит к компенсации геометрической фазы, соответствующему достижению условия фазового согласования (3) и максимизации энергетического выхода гармоники при оптимальном значении давления (5). Дальнейшее повышение давления приводит к нарушению условия фазового согласования (3), что приводит к уменьшению эффективности генерации гармоники. При этом в зависимости $I_q(p)$ наблюдаются осцилляции с периодом, соответствующим достижению фазы комплексной экспоненты в (2) значения $2\pi/L$. Описанное поведение наблюдалось в текущем эксперименте для

гармоник высокого порядка при относительно малых (150–250 мкДж) энергиях генерирующего импульса (рис. 3). При этом, как свидетельствуют графики на

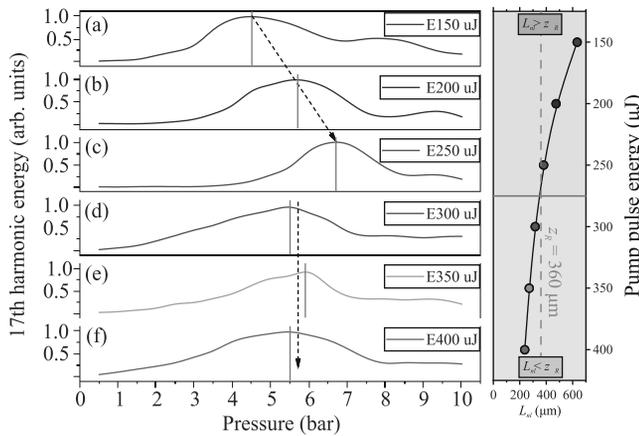


Рис. 3. (Цветной онлайн) Экспериментальная зависимость энергии 17-й гармоники от давления, подаваемого на газовую струю аргона, для энергий генерирующего импульса 150–400 мкДж (а)–(ф). Вставка справа – рассчитанная по экспериментальным данным зависимость величины нелинейной длины от энергии генерирующего импульса. Видно, что при уменьшении нелинейной длины до значений, меньших, чем длина дифракции z_R , сдвиг оптимального давления в область больших значений прекращается и фиксируется в районе 5.5–6 бар

рис. 3, повышение энергии генерирующего импульса выше 300 мкДж приводит к отклонению от закона $I_q \sim p^2$ в области малых давлений, наблюдаемого при меньших энергиях. Схожий эффект наблюдался и для гармоник низкого порядка [15], в связи с чем указанное отклонение может также объясняться возрастающей ролью нелинейных эффектов распространения при повышении энергии генерирующего импульса. Кроме того, как свидетельствует рис. 3, повышение энергии генерирующего импульса приводит в соответствии с (5) к смещению оптимального давления p_{max} в сторону больших значений лишь в области энергий вплоть до 300 мкДж. Дальнейшее повышение энергии не приводит к увеличению значения оптимального давления, оставляя его равным на уровне 5.5–6 бар, что может объясняться ограничением достигаемой интенсивности за счет, опять же, нелинейных эффектов распространения, таких как фазовая самомодуляция (ФСМ), самофокусировка и генерация плазмы, совместное действие которых может приводить к квазифиламентационному характеру распространения генерирующего импульса в области мишени и соответствующему огра-

ничению интенсивности [25] и уменьшению геометрической фазы в (3). Косвенным фактором, свидетельствующим о реализации подобного режима распространения, является тот факт, что при переходе от энергии 250 к 300 мкДж нелинейная длина (переход от $L_{nl} = 380$ мкм к $L_{nl} = 320$ мкм) становится меньше, чем дифракционная длина ($z_R = 360$ мкм) (рис. 3).

Кроме того, при использовании большей энергии лазерного излучения (300–400 мкДж) осцилляции экспериментальной зависимости $I_q(p)$ исчезают в заданном диапазоне давлений. Данное поведение может объясняться существенным увеличением периода осцилляций в области высоких (больше 5.5–6 бар) давлений, которое может происходить из-за уменьшения разницы между вкладом материальной Δk_{1bar}^{mat} и плазменной Δk_{1bar}^{plasma} дисперсий в (4) вследствие повышения степени ионизации на фоне роста эффективности лавинной ионизации.

Аппроксимация зависимостей энергии 17-й гармоники от давления (рис. 3) в соответствии с формулами (1)–(4) позволила определить среднюю по длине области генерации степень ионизации и соответствующую концентрацию электронов генерируемой плазмы (рис. 4). Как свидетельствует гра-

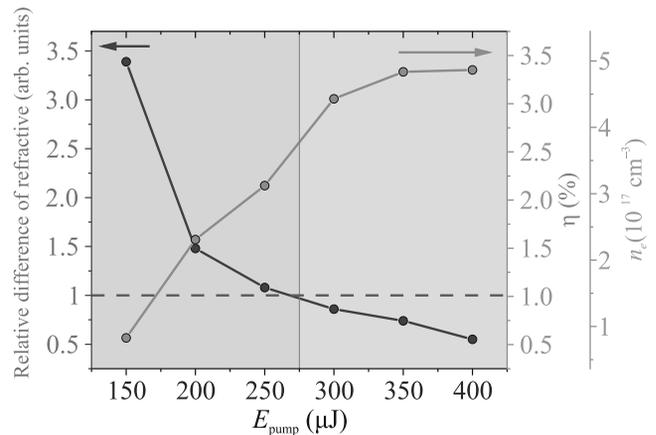


Рис. 4. (Цветной онлайн) Рассчитанная по экспериментальным данным зависимость относительной разницы эффективных добавок к показателю преломления вследствие керровской самофокусировки, плазменной дефокусировки и дифракции при давлении 6 бар от энергии генерирующего импульса (фиолетовая кривая). Рассчитанная по экспериментальным данным зависимость степени ионизации среды и концентрации электронов плазмы при давлении 6 бар от энергии генерирующего импульса (оранжевая кривая)

фик на рис. 4 увеличение энергии генерирующего импульса приводит к повышению степени иониза-

ции среды, причем в области больших энергий (300–400 мкДж) наблюдается насыщение роста степени ионизации, что может объясняться, опять же, насыщением интенсивности при квазифиламентационном распространении излучения в области мишени. Расчет баланса эффективных добавок к показателю преломления дополнительно подтверждает такую возможность. Так, в соответствии с работой [26], баланс между керровской самофокусировкой, плазменной дефокусировкой и дифракцией, являющийся необходимым условием филаментационного режима распространения, соблюдается при выполнении условия:

$$\Delta(\delta n) = n_2 I - \frac{n_e}{2n_{cr}} - \frac{(1.22\lambda)^2}{8n\pi w_0^2} = 0, \quad (6)$$

где каждое из слагаемых представляет собой эффективную добавку к показателю преломления, обусловленную керровской самофокусировкой, плазменной дефокусировкой и дифракцией соответственно, n_2 – нелинейный показатель преломления, I – интенсивность излучения, n_e – концентрация электронов плазмы, n_{cr} – критическая концентрация электронов плазмы, λ – длина волны излучения, n – линейный показатель преломления, w_0 – радиус пучка в перетяжке. Поскольку в эксперименте достичь точного выполнения условия (6) не представляется возможным, то для количественной характеристики условия баланса (6) на основе экспериментальных данных можно использовать относительную разницу между добавками, определяемую как:

$$\Delta(\delta n)_{rel} = \frac{\Delta(\delta n)}{\min(\delta n_{kerr}, \delta n_{plasma}, \delta n_{dif})}, \quad (7)$$

где $\min(\cdot)$ – операция взятия минимального значения. Значения данной относительной разницы добавок, меньшие единицы, свидетельствуют о фактическом выполнении условия баланса (6). На основе экспериментально полученного значения концентрации электронов плазмы была построена зависимость относительной разности добавок к показателю преломления от энергии генерирующего импульса (рис. 4). Как свидетельствует данная зависимость, при переходе от энергии 250 мкДж к энергии 300 мкДж значение относительной разницы добавок становится меньше единицы, что говорит о выполнении условия баланса вкладов (6) и возможности квазифиламентационного режима распространения. При этом стоит отметить, что насыщение степени ионизации среды так же начинается в окрестности энергии 300 мкДж (рис. 4), что может дополнительно свидетельствовать о насыщении интенсивности в рамках подобного режима распространения.

Таким образом, полученные из экспериментальных зависимостей энергии 17-й гармоники от давления (рис. 3) величины концентрации электронов плазмы в совокупности с экспериментальными параметрами излучения, среды и фокусировки подтверждают возможность осуществления квазифиламентационного режима распространения генерирующего излучения, реализация которого может объяснять отклонение экспериментальных зависимостей в области больших (300–400 мкДж) энергий от теоретических.

Существенное влияние нелинейных эффектов распространения на процесс генерации гармоник в рамках данной работы обусловлено использованием плотной газовой струи в качестве мишени. Подаваемое на струю высокое давление вплоть до десяти бар необходимо для компенсации вклада геометрической фазы в условии фазового согласования (3) при использовании фокусировки с относительно высокой ($NA = 0.033$) числовой апертурой [27]. Еще одним индикатором проявления нелинейных эффектов распространения служит зарегистрированный эффект увеличения спектральной ширины гармоник при повышении давления (рис. 5), что ранее

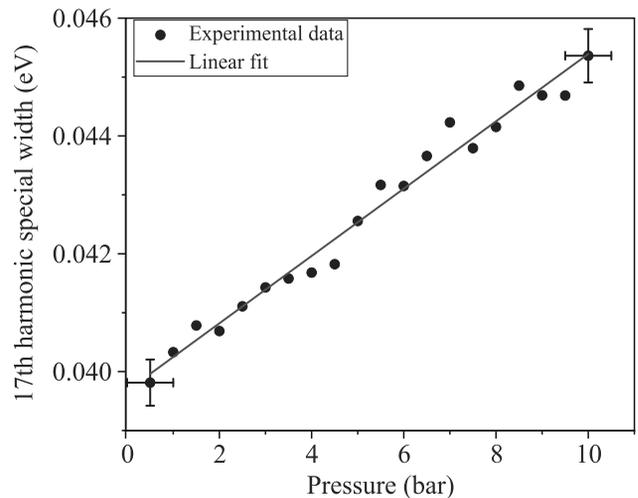


Рис. 5. (Цветной онлайн) Зависимость спектральной ширины 17-й гармоники от давления, подаваемого на газовую струю, при энергии генерирующего импульса 400 мкДж

также наблюдалось в экспериментах по генерации гармоник низкого порядка [15]. Как свидетельствует график на рис. 5, увеличение давления приводит к линейному увеличению спектральной ширины 17-й гармоники, что может быть обусловлено процессом фазовой модуляции за счет эффекта Керра [23]. Важно отметить, что в общем случае уширение спектральной ширины гармоники может возникать

вследствие ФСМ генерирующего излучения, вследствие прямой ФСМ излучения гармоники, а также вследствие кросс-модуляции излучения гармоники за счет генерирующего импульса. Однако, ввиду сильной зависимости проявления эффекта ФСМ от длины волны и интенсивности излучения [28] наиболее вероятным механизмом наблюдаемого уширения гармоники является именно ФСМ генерирующего излучения.

Проявление эффекта ФСМ, помимо повышения спектральной ширины гармоник, также приводит к формированию положительного чирпа в их фазовых спектрах, а также в фазовом спектре генерирующего импульса [28]. Путем отрицательного чирпирования генерирующего импульса появляется возможность компенсировать возникающий за счет ФСМ положительный чирп, что позволяет повысить пиковую интенсивность генерирующего импульса за счет сокращения его длительности в процессе ФСМ и, таким образом, повысить эффективность генерации. Данный эффект наблюдался в рамках проведенного исследования (рис. 6). Как свидетельствует график на

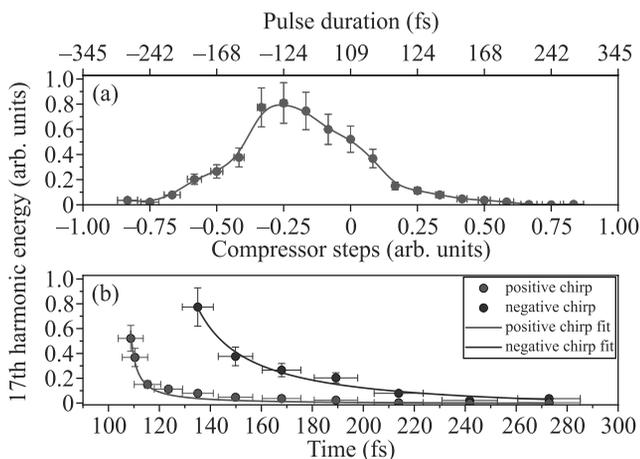


Рис. 6. (Цветной онлайн) (а) – Зависимость энергии 17-й гармоники от длительности, изменяемой за счет чирпирования генерирующего лазерного импульса. Отрицательные значения длительности соответствуют отрицательному чирпу. (б) – Аппроксимация зависимости энергии 17-й гармоники от длительности лазерного импульса при положительном (красная линия) и отрицательном (синяя линия) чирпах. Параметры аппроксимации приведены в табл. 1

рис. 6а, максимальная эффективность генерации достигается при внесении отрицательного чирпа в генерирующий импульс. При этом, как свидетельствует график на рис. 6б и табл. 1, наблюдается асимметрия приведенной зависимости энергии гармоники от чирпа относительно оптимального значения (-124 фс).

Так, в области положительного чирпа наблюдается медленная гиперболическая зависимость. При этом в области отрицательного чирпа наблюдается более быстрая гиперболическая зависимость, что говорит о более быстром изменении длительности генерирующего импульса при изменении чирпа в этой области за счет дополнительного влияния нелинейной компрессии вследствие ФСМ.

Таблица 1. Параметры аппроксимации зависимостей на рис. 6б

Модель	$c + \frac{a}{x+b}$	
График	Положительный чирп	Отрицательный чирп
a	5.83 ± 1.22	61.25 ± 17.43
R^2	0.98	0.99

Максимальная достигнутая энергия и соответствующая эффективность преобразования для разрешенных в спектре гармоник составили 3.6 пДж и $9.7 \cdot 10^{-9}$ для 15-й гармоники, а также 2 пДж и $5.4 \cdot 10^{-9}$ для 17-й гармоники. Расчет энергии гармоник осуществлялся на основе формулы:

$$E = \sum_{i,j} \frac{I(x_i, y_j) - I_0}{QE(\lambda) \cdot C} \cdot \frac{\Delta t_{\text{int}}}{\Delta t_{\text{rep.rate}}}, \quad (8)$$

где $I(x_i, y_j)$ – интенсивность пикселя с координатой (x_i, y_j) , I_0 – среднее по пикселям значение темнового шума камеры, $QE(\lambda)$ – квантовая эффективность матрицы на длине волны λ , C – коэффициент пересчета интенсивности пикселя в количество фотоэлектронов, Δt_{int} – время экспозиции, $\Delta t_{\text{rep.rate}}$ – период следования лазерных импульсов, суммирование ведется по всем пикселям матрицы в окрестности сигнала гармоник. Фокусировка излучения 17-й гармоники с энергией 2 пДж в пятно дифракционно-ограниченного радиуса (73 нм) с помощью уже доступной в экстремальном ультрафиолетовом (ЭУФ) диапазоне оптики с $NA = 0.33$ [29] позволит добиться плотности энергии 24 мДж/см² за один импульс, что сравнимо с дозой (10 – 30 мДж/см²), используемой для облучения фоторезиста в современных ЭУФ-системах фотолитографии, использующих пространственно некогерентное излучение, генерируемое в результате абляции металлической мишени, которое проецируется через маску на облучаемый объект для формирования паттерна засветки на поверхности фоторезиста [30]. В связи с этим сгенерированное излучение 17-й гармоники открывает возможности для безмасочной фотолитографии в ЭУФ-диапазоне, в рамках которой паттерн засветки на фоторезисте проецируется поточечно, причем необходимая доза для засветки фоторезиста набирается

за один импульс. Такой подход позволяет отказаться от использования набора технологически сложных масок, которые также поглощают часть энергии используемого для экспонирования излучения, что понижает энергоэффективность работы фотолитографической установки. Кроме того, генерация излучения в газовой струе является более выгодным решением по сравнению с генерацией в результате абляции металлической мишени вследствие отсутствия загрязнения оптики продуктами абляции мишени [31].

Заключение. В рамках проведенного исследования осуществлена генерация гармоник высокого порядка (15–25, 83–50 нм) при воздействии фемтосекундного излучения на длине волны 1.24 мкм лазерной системы на кристалле Cr:Forsterite на плотную газовую струю аргона при фокусировке с относительно высокой числовой апертурой $NA = 0.033$. Показано, что использование такой фокусировки требует применения высокого (до 10 бар) давления, подаваемого на газовую струю, что диктуется необходимостью уравнивания геометрической фазы для оптимизации фазового согласования и соответствующей максимизации эффективности генерации. Показано, что соответствующая высокая плотность газовой струи приводит к заметному проявлению нелинейных эффектов распространения генерирующего излучения, таких как фазовая самомодуляция, самофокусировка и генерация плазмы с концентрацией на уровне $\sim 10^{17}$ см $^{-3}$, которые в совокупности приводят к квазифиламентационному режиму распространения генерирующего излучения в области мишени и ограничению его интенсивности, что проявляется, в частности, в насыщении роста оптимального давления с ростом энергии генерирующего импульса, а также в увеличении спектральной ширины генерируемых гармоник. Установлено, что компенсация чирпа генерирующего импульса, возникающего вследствие фазовой самомодуляции, за счет отрицательного пре-чирпирования позволяет увеличить эффективность генерации гармоник за счет нелинейной компрессии генерирующего импульса в процессе фазовой самомодуляции. Использование данного подхода в рамках проведенного исследования позволило сгенерировать излучение 17-й гармоники (73 нм) с энергией в импульсе на уровне 2 пДж и соответствующей эффективностью генерации $5.4 \cdot 10^{-9}$, что, как показывают оценки, позволяет использовать такое излучение для одноимпульсной безмасочной фотолитографии в ЭУФ-диапазоне.

Работа в части исследования условий фазового согласования и влияния чирпа поддержана грантом

Российского фонда фундаментальных исследований # 19-29-12030. Исследования в части генерации излучения гармоник и оценки применимости к задачам фотолитографии поддержаны грантом Российского научного фонда # 20-19-00148. Работа выполнена с использованием оборудования, приобретенного за счет средств Программы развития Московского университета и Национального проекта “Наука и университеты”. Румянцев Б.В. является стипендиатом фонда развития теоретической физики и математики “БАЗИС”.

1. E. Appi, C.C. Papadopoulou, J.L. Mapa et al. (Collaboration), *Sci. Rep.* **10**(1), 6867 (2020).
2. J. Pupekis, P.-A. Chevreuil, N. Bigler, L. Gallmann, C.R. Phillips, and U. Keller, *Optica* **7**(2), 168 (2020).
3. M.Y. Ryabikin, M.Y. Emelin, and V.V. Strelkov, *Uspekhi Fizicheskikh Nauk* **193**(4), 382 (2023).
4. A. Andreev, S.Y. Stremoukhov, and O. Shoutova, *Laser Phys.* **30**(10), 105402 (2020).
5. B. Mahieu, S. Stremoukhov, D. Gauthier, C. Spezzani, C. Alves, B. Vodungbo, P. Zeitoun, V. Malka, G. De Ninno, and G. Lambert, *Phys. Rev. A* **97**(4), 043857 (2018).
6. Б.В. Румянцев, А.В. Пушкин, Д.З. Сулейманова, Н.А. Жидовцев, Ф.В. Потемкин, **117**(8), 571 (2023).
7. J. Zhang, X.-F. Pan, C.-L. Xia, H. Du, T.-T. Xu, and J. Guo, *Laser Phys. Lett.* **13**(7), 075302 (2016).
8. I. Babushkin, A. Demircan, U. Morgner, and A. Savel'ev, *Phys. Rev. A* **106**(1), 013115 (2022).
9. S. Li, Y. Tang, L. Ortman, B.K. Talbert, C.I. Bлага, Y.H. Lai, Z. Wang, Y. Cheng, F. Yang, A.S. Landsman, P. Agostini, L.F. DiMauro, *Nat. Commun.* **14**(1), 2603 (2023).
10. C. Heyl, C. Arnold, A. Couairon, and A. L'Huillier, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **50**(1), 013001 (2016).
11. M. Gaponenko, F. Labaye, V.J. Wittwer, C. Paradis, N. Modsching, L. Merceron, A. Diebold, F. Emaury, I.J. Graumann, C.R. Phillips, C.J. Saraceno, C. Kränkel, U. Keller, and T. Südmeyer, *Nonlinear Optics*. Optica Publishing Group, Waikoloa, Hawaii (2017), NTh3A-1.
12. V.V. Strelkov, V.T. Platonenko, A.F. Sterzhantov, and M.Y. Ryabikin, *Phys.-Uspekhi* **59**(5), 425 (2016).
13. T. Popmintchev, M.-C. Chen, D. Popmintchev et al. (Collaboration), *Science* **336**(6086), 1287 (2012).
14. E. Migal, A. Pushkin, B. Bravy, V. Gordienko, N. Minaev, A. Sirotkin, and F. Potemkin, *Opt. Lett.* **44**(10), 2550 (2019).
15. Б.В. Румянцев, К.Е. Михеев, А.В. Пушкин, Е.А. Мигаль, С.Ю. Стрёмухов, Ф.В. Потемкин, *Письма в ЖЭТФ* **115**(7), 431 (2022).

16. Б.В. Румянцев, А.В. Пушкин, К.Е. Михеев, Ф.В. Потемкин, Письма в ЖЭТФ **116**(10), 659 (2022).
17. E. Migal, S.Y. Stremoukhov, and F. Potemkin, Phys. Rev. A **101**(2), 021401 (2020).
18. E. Migal, F. Potemkin, and V. Gordienko, Laser Phys. Lett. **16**(4), 045401 (2019).
19. C. Jin, A.-T. Le, and C. Lin, Phys. Rev. A **83**(2), 023411 (2011).
20. P.-C. Li and S.-I. Chu, Phys. Rev. A **88**(5), 053415 (2013).
21. V. Cardin, B. Schmidt, N. Thiré, S. Beaulieu, V. Wanie, M. Negro, C. Vozzi, V. Tosa, and F. Légaré, Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics **51**(17), 174004 (2018).
22. B. Major, M. Kretschmar, O. Ghafur, A. Hoffmann, K. Kovacs, K. Varjú, B. Senfftleben, J. Tümmler, I. Will, T. Nagy, D. Rupp, M.J.J. Vrakking, V. Tosa, and B. Schütte, Journal of Physics: Photonics **2**(3), 034002 (2020).
23. R.W. Boyd, *Nonlinear optics*, Academic press, N.Y. (2020).
24. R. Weissenbilder, S. Carlström, L. Rego, C. Guo, C. Heyl, P. Smorenburg, E. Constant, C. Arnold, and A. L’huillier, Nat. Rev. Phys. **4**(11), 713 (2022).
25. В.П. Кандидов, С.А. Шленов, О.Г. Косарева, Квантовая электроника **39**(3), 205 (2009).
26. A. Braun, G. Korn, X. Liu, D. Du, J. Squier, and G. Mourou, Opt. Lett. **20**(1), 73 (1995).
27. J. Rothhardt, M. Krebs, S. Hädrich, S. Demmler, J. Limpert, and A. Tünnermann, New J. Phys. **16**(3), 033022 (2014).
28. R.R. Alfano, Sci. Am. **295**(6), 86 (2006).
29. H.J. Levinson, Jpn. J. Appl. Phys. **61**.SD, SD0803 (2022).
30. C. Wagner, N. Harned, P. Kuerz, M. Lowisch, H. Meiling, D. Ockwell, R. Peeters, K. van Ingen-Schenau, E. van Setten, J. Stoeldraijer, and B. Thuring, Extreme Ultraviolet (EUV) Lithography **7636**, 512 (2010).
31. M. van de Kerkhof, T. van Empel, M. Lercel, C. Smeets, F. van de Wetering, A. Nikipelov, C. Cloin, A. Yakunin, and V. Banine, Extreme Ultraviolet (EUV) Lithography X **10957**, 191 (2019).