

Федеральное государственное бюджетное научное учреждение
«Федеральный исследовательский центр Институт прикладной физики
им. А.В. Гапонова-Грехова Российской академии наук» (ИПФ РАН)

На правах рукописи



Бодров Сергей Борисович

**Нелинейно-оптическая генерация и диагностические
применения импульсного терагерцового излучения**

1.3.19. Лазерная физика

Диссертация на соискание учёной степени
доктора физико-математических наук

Научный консультант:
доктор физико-математических наук, профессор
Бакунов Михаил Иванович

Нижний Новгород – 2025

Оглавление

Введение	5
Глава 1. Теория генерации терагерцового излучения при оптическом выпрямлении лазерных импульсов в слое электрооптического материала	30
1.1. Модель и общий формализм	31
1.2. Структура и динамика формирования генерируемых полей	38
1.2.1. Случай широкого пучка накачки	38
1.2.2. Случай сфокусированной накачки	42
1.3. Формулы Френеля для вынужденного электромагнитного поля	46
1.4. Сверхсветовой режим генерации	52
1.4.1. Сильно сверхсветовой режим генерации в кристалле LiNbO ₃ при накачке на длине волны 800 нм	52
1.4.2. Слабо сверхсветовой режим генерации в кристалле GaAs при накачке на длине волны 1560 нм	57
1.5. Досветовой режим генерации	64
1.5.1. Синхронизированная генерация в кристалле ZnTe при накачке на длине волны 800 нм	64
1.5.2. Сильно досветовой режим генерации в кристалле GaP при накачке на длине волны 800 нм	71
1.6. Выводы по главе 1	79
Глава 2. Генерация терагерцового излучения скошенными лазерными импульсами	82
2.1. Теоретическое исследование	84
2.1.1. Стационарный режим генерации в однородной среде	84
2.1.2. Динамика формирования терагерцового поля	95
2.1.3. Обобщенный анализ стандартной схемы генерации в призме из LiNbO ₃	107
2.1.4. Масштабирование генерации в схеме с пластиной LiNbO ₃ и двумя диэлектрическими призмами	119
2.1.5. Анализ схемы со скашиванием импульса накачки при помощи дифракционной решетки на границе кристалла	126

2.2. Экспериментальное исследование	137
2.2.1. Оптико-терагерцовая конверсия в призме из LiNbO_3	138
2.2.2. Оптико-терагерцовая конверсия в пластине LiNbO_3 с согласующими призмами	145
2.3. Выводы по главе 2	149
Глава 3. Оптико-терагерцовые преобразователи на основе черенковского синхронизма	153
3.1. Теория черенковского излучения терагерцовых волн лазерными импульсами в плоском диэлектрическом волноводе с нелинейной сердцевиной	153
3.2. Экспериментальные исследования оптико-терагерцовой конверсии в сэндвич-структурах со слоем LiNbO_3	169
3.3. Оптико-терагерцовая конверсия в кристалле DKDP с сильным терагерцовым поглощением	196
3.4. Выводы по главе 3	207
Глава 4. Наведенные нелинейно-оптические эффекты в присутствии сильных терагерцовых полей	210
4.1. Генерация второй оптической гармоники при совместном распространении фемтосекундного лазерного и пикосекундного терагерцового импульсов в центрально-симметричной среде	211
4.2. Обнаружение скрытых неоднородностей в прозрачных материалах по наведенной генерации второй оптической гармоники	226
4.3. Диагностика свойств непрозрачных материалов по наведенной генерации отраженной второй оптической гармоники	234
4.4. Терагерцовый эффект Керра в жидкостях	253
4.5. Наведенная терагерцовым полем оптическая люминесценция в графене и возможности ее применения для визуализации терагерцового пучка	270
4.6. Выводы по главе 4	280
Глава 5. Диагностика электронной плотности в плазменном филаменте по рассеянию терагерцовых импульсов	284
5.1. Описание метода	284

5.2. Экспериментальная демонстрация в воздухе при нормальных условиях	289
5.3. Влияние внешнего поля и пониженного давления на распад плазмы в филаменте	297
5.4. Выводы по главе 5	303
Заключение	305
Список литературы	310
Список публикаций по диссертации	334

Введение

Актуальность и степень разработанности темы

Активное освоение в последние 20-30 лет терагерцового диапазона частот (0.3-10 ТГц, или в длинах волн от 30 мкм до 1 мм) связано прежде всего с бурным развитием лазерных технологий и разработкой на их основе разнообразных типов терагерцовых источников, среди которых можно выделить оптико-терагерцовые преобразователи фемтосекундного лазерного излучения [1]. Особенность таких источников состоит в способности генерировать ультракороткие (длительностью вплоть до одного периода) терагерцовые импульсы с шириной спектра, превышающей центральную частоту (при определенных условиях возможна также генерация и многопериодических импульсов с узким спектром). Столь короткие терагерцовые импульсы являются уникальным инструментом для исследования процессов пикосекундной длительности, и благодаря их когерентности с возбуждающими оптическими импульсами, могут быть использованы для изучения разнообразных физических явлений методом оптической (или терагерцовой) накачки – терагерцовое (или оптическое) зондирование [2], [3], а также для проведения терагерцовой спектроскопии во временной области с применением техники оптического стробирования [4], [5].

Основной принцип работы широкополосных оптико-терагерцовых преобразователей основан на возбуждении в веществе фемтосекундными лазерными импульсами всплесков нелинейной поляризации и/или тока суб-пикосекундной длительности, которые излучают затем короткие электромагнитные импульсы терагерцового диапазона частот. Наиболее популярными методами возбуждения таких всплесков являются оптическое выпрямление лазерных импульсов в электрооптических кристаллах [6], [7], возбуждение фототока в фото-проводящих антеннах [8], [9], оптический пробой газов (воздуха) двухцветными лазерными импульсами (т.е. импульсами, содержащими излучение основной и второй гармоники лазера) [10], [11]. Также активно исследуются и другие методы, в частности, оптический пробой жидкости [12], [13] возбуждение спиновых токов [14], [15], эмиссия из твердотельной плазмы [16], [17], [18] и др. Среди упомянутых методов можно выделить метод оптического выпрямления, основным достоинством которого является возможность генерации высокоэнергетических терагерцовых импульсов (суб-мДж или даже мДж уровня энергии [19]), при фокусировке которых возможно создание терагерцовых полей с

напряженностью поля около десятка МВ/см [20], [21]. Столь высокоинтенсивные импульсы могут быть использованы в таких современных направлениях как ускорение, управление и компрессия электронных сгустков [22], сверхбыстрая манипуляции намагниченности в материалах [23], нелинейная терагерцовая спектроскопия [24] и др. Однако эффективность оптико-терагерцового преобразования в различных схемах оптико-терагерцовой конверсии с применением электрооптических материалов всё еще остается на довольно низком уровне, типично в диапазоне 0.01 - 1% [1], при этом не всегда даже столь невысокая эффективность может быть достигнута в дешевых и доступных кристаллах. В связи с этим поиск и разработка новых схем оптико-терагерцового преобразования, а также оптимизация уже созданных, является актуальной задачей и в настоящее время. Решению именно такой задачи и посвящена значительная часть данной диссертации.

Можно выделить несколько подходов к генерации терагерцового излучения в электрооптических кристаллах. Классический и наиболее простым вариантом является генерации терагерцового излучения в слое кристалла, в котором выполняется условие коллинеарного синхронизма, т.е. равенство фазовой скорости генерируемой терагерцовой волны и скорости источника – нелинейной поляризации, формируемой в области огибающей лазерного импульса и распространяющейся с групповой скорости этого импульса. Помимо данного условия, для наиболее эффективной оптико-терагерцовой конверсии необходимо, чтобы кристалл-генератор обладал большим коэффициентом нелинейности, слабым поглощением в терагерцовом и оптическом диапазонах, в том числе минимальным многофотонным поглощением. Последнее обусловлено линейной зависимостью эффективности оптико-терагерцовой конверсии от интенсивности лазерного импульса ввиду квадратичного по полю механизма оптического выпрямления. Несмотря на широкий выбор кристаллов, каждый из них обладает теми или иными недостатками, что существенно ограничивает эффективность преобразования. Например, в кристалле ZnTe выполняется условие синхронизма для фемтосекундного излучения титан-сапфирового лазера (для длины оптического излучения около 800 нм синхронизм выполняется на частоте терагерцовых волн около 2 ТГц), однако из-за сравнительно небольшой нелинейности (~ 60 пм/В) и большого коэффициента многофотонного поглощения типичная эффективность оптико-терагерцовой конверсии составляет всего 0.01%-0.001% [25]. Тем не менее, при использовании широко-

апертурного кристалла ZnTe и лазерных импульсов накачки с энергией 48 мДж были продемонстрированы терагерцовые импульсы с энергией около 1.5 мкДж (с эффективностью около 0.003%) [26]. В кристаллах GaP и GaAs близкая к синхронизму генерация может быть получена при накачке излучением иттербиевого (на длине волны ~1030 нм) [27] или волоконного (на длине волны ~1560 нм) [28] фемтосекундных лазеров, соответственно. Однако, как и для ZnTe, эффективность конверсии в данных кристаллах составляет около 0.001% [27]. Типичная длительность терагерцовых импульсов, генерируемых в кристаллах ZnTe, GaAs, GaP составляет несколько осцилляций при центральной частоте 1-1.5 ТГц, что дает ширину спектра до 3-4 ТГц.

Существенное увеличение эффективности схемы коллинеарного синхронизма было достигнуто в результате применения органических кристаллах (DAST, DSTMS, OH1, BNA и др.), обладающих большой квадратичной нелинейностью (~ 100-300 пм/В) [29]. При мДж энергии оптической накачки, в данных кристаллах были достигнуты высокие (на уровне несколько процентов) эффективности оптико-терагерцовой конверсии [30], а также продемонстрированы терагерцовые импульсы с энергией около сотни мкДж и пиковыми полями (в сфокусированном пучке) порядка десятка МВ/см [20], [21], [31]. Центральная частота генерируемых в органических кристаллах терагерцовых импульсов обычно больше, чем в упомянутых выше неорганических кристаллах, и находится около 2 ТГц, а сам спектр простирается до 10 и более ТГц [32]. Несмотря на рекордные значения эффективности и энергии терагерцовых импульсов, органические кристаллы пока еще не находят широкого применения ввиду ряда причин. Выращивание таких кристаллов технологически сложная процедура, что обуславливает их высокую стоимость. Наиболее эффективные органические кристаллы (DAST, DSTMS, OH1) требуют в качестве накачки интенсивное излучение инфракрасного диапазона, менее доступное на рынке фемтосекундной лазерной техники (источниками такого излучения могут служить хром-форстеритовые лазерные системы или параметрические преобразователи для более доступных, например, титан-сапфировых лазерных систем). Ввиду довольно большого линейного поглощения тепловая стойкость органических кристаллов незначительная [33], что ограничивает их применение на лазерах с высокой (более 100 Гц) частотой следования импульсов. Небольшая ширина запрещенной зоны (как у полупроводниковых электрооптических кристаллах GaAs, ZnTe, GaP)

ограничивает интенсивность лазерной накачки вследствие многофотонного поглощения [34].

Чтобы минимизировать нежелательный эффект многофотонного поглощения можно использовать кристаллы с большой шириной запрещенной зоны, такие как LiNbO_3 , LiTaO_3 , КТР, DKDP, кристаллический кварц и др. Некоторые из таких кристаллов, например сегнетоэлектрики LiNbO_3 , LiTaO_3 , КТР, также обладают и большой квадратичной нелинейностью (~ 150 пм/В). Однако в данных сегнетоэлектриках скорость лазерного импульса значительно (примерно в 2 раза) превышает скорость терагерцового излучения (на частотах ниже основного фононного резонанса), что не позволяет их использовать в классической схеме генерации на основе коллинеарного синхронизма. Однако синхронизованную генерацию можно реализовать в неколлинеарной геометрии. Для этого в работе [35] Яношем Хеблингом было предложено использовать «скошенные» лазерные импульсы. В таких импульсах фронт интенсивности наклонен (скошен) под определенным углом α относительно фазовых фронтов. Импульс распространяется с групповой скоростью V_g в направлении, перпендикулярном фазовым фронтам, при этом проекция этой скорости на направление, перпендикулярное фронту интенсивности, составляет $V_g \cos \alpha$. Изменяя угол скоса α , можно добиться того, чтобы эта проекция совпала с фазовой скоростью терагерцовой волны (на произвольной частоте). Таким образом, можно достичь фазового согласования с квазиплоской терагерцовой волной, распространяющейся перпендикулярно фронту интенсивности. Для создания скошенных лазерных импульсов можно использовать дифракционную решетку (или призму) [36], а также эшелон – профилированное зеркало, состоящее из множества маленьких ступенек [37].

В классической экспериментальной схеме с применением скошенных лазерных импульсов, кристалл LiNbO_3 используется в виде призмы (прямоугольной или треугольной формы). Угол призмы выбирается равным углу скоса фронта интенсивности лазерного импульса, и для LiNbO_3 составляет около 63° (для лазерной накачки на длине волны 0.8-1 мкм). Оптическая накачка вводится через катет призмы, а сгенерированное терагерцовое излучение выводится через гипотенузу (по нормали). Необходимый угол скоса достигается за счет дифракции лазерного импульса на оптической решетке, с последующим отображением в кристалл с помощью зеркального или линзового телескопа [38]. Период решетки и уменьшение телескопа подбираются так, чтобы плоскости

изображения решетки и фронта интенсивности импульса совпадали и были параллельны выходной грани призмы. Именно в такой схеме при накачке излучением титан-сапфирового лазера в 2003 году была проведена первая экспериментальная демонстрация генерации терагерцового излучения скошенными лазерными импульсами [39]. После оптимизации и дополнительных исследований при большей энергии накачки [40], [41], показавших высокую эффективность схемы, использование скошенных лазерных импульсов приобрело большую популярность [42]. В настоящее время типичная эффективность оптико-терагерцовой конверсии при накачке с длительностью импульсов ~ 100 фс составляет около 0.1%-0.3% , но может увеличена до $\sim 1\%$ путем использования более длинных импульсов (~ 700 фс) и более длинноволнового излучения (~ 1 мкм) [43]. Типичная центральная частота генерируемого терагерцового излучения составляет около 0.5-1 ТГц, что несколько меньше, чем в кристаллах ZnTe и GaAs (из-за сильного терагерцового поглощения в LiNbO₃), но при этом длительность импульсов обычно составляет всего одну-две осцилляции поля, что может быть важно в различных прикладных задачах, таких как ускорение электронов, манипуляция спиновыми состояниями и др. При большой (~ 100 мДж) энергии накачки были получены терагерцовые импульсы с уровнем энергии от десятка до несколько сотен мкДж [44] [45], а при накачке с энергией в импульсе 1.2 Дж в широкоапертурном кристалле LiNbO₃, охлажденном до криогенной температуры, достигнута рекордная энергия 13.9 мДж [19].

Несмотря на популярность и рекордные энергетические характеристики, данная схема обладает рядом недостатков. В частности, из-за сильной угловой дисперсии, возникающей при дифракции оптического излучения на решетке [36], высокая интенсивность накачки формируется только в небольшой области, где расположена плоскость изображения решетки. В результате только тонкий слой кристалла LiNbO₃ (толщиной ≤ 1 мм для лазерного импульса накачки ≤ 200 фс), вносит основной вклад в генерацию терагерцового излучения, а значительная часть объема кристалла, находящаяся перед плоскостью изображения дифракционной решетки, не участвует в генерации терагерцового излучения, фактически играя роль согласующей призмы для ввода пучка накачки в рабочую область кристалла. Такая низкая эффективность использования кристалла особенно существенна при высокоэнергичной оптической накачке, когда необходимы призмы с большой апертурой [19]. Для решения этой проблемы были предложены и продемонстрированы гибридные схемы на основе

использования плоскопараллельной пластины LiNbO_3 с эшелонированной структурой на входной поверхности [46], а также с отражательной решеткой на задней поверхности [47].

В настоящей диссертационной работе предлагается и экспериментально тестируется более простая схема, в которой пластина LiNbO_3 зажата между двумя призмами, выполняющие разные роли. Одна призма (из оптически прозрачного диэлектрика) используется для ввода накачки в пластину LiNbO_3 (в альтернативном варианте диэлектрическая призма может быть опущена, что позволит пучку накачки падать наклонно на пластину кристалла). Вторая призма, сделанная из материала с малым терагерцовым поглощением, выводит генерируемое терагерцовое излучение из пластины LiNbO_3 . При использовании оптической накачки тераваттного уровня мощности (для увеличения энергии терагерцового излучения), предлагаемая схема может быть масштабирована путем использования коммерчески доступных пластин LiNbO_3 большого (~ 10 см) диаметра.

Еще один и наиболее простой способ достичь условия фазового синхронизма в кристаллах, где групповая скорость оптического импульса превышает фазовую скорость терагерцового излучения, – это использовать механизм излучения Черенкова [48]. Для формирования черенковского излучения необходимо, чтобы оптический пучок был сфокусирован до размеров, сравнимых с длиной волны терагерцового излучения или меньше. При этом движущаяся нелинейная поляризация излучает подобно тому, как релятивистский диполь испускает излучение Черенкова. Именно на основе данного способа в кристалле LiTaO_3 была впервые продемонстрирована генерация терагерцовых импульсов за счет механизма оптического выпрямления [6]. В некоторых последующих работах черенковская схема была использована для исследования генерации фонон-поляритонов в таких кристаллах как LiTaO_3 , LiNbO_3 [49]. Однако широкого распространения для терагерцовой генерации не получила. Это обусловлено рядом недостатков. При черенковском излучении в плоском слое кристалла, генерируемое излучение падает под большим углом на выходную границу, что уменьшает эффективность вывода излучения, а даже может привести к полному внутреннему отражению. Кроме того, из-за довольно большого пути распространения от точки генерации до выходной границы кристалла терагерцовые волны испытывают значительное затухание. Отмеченные эффекты особенно существенны в таких перспективных для генерации кристаллах, как LiNbO_3 и LiTaO_3 . В плоском слое данных

кристаллах генерируемое черенковское излучение испытывает полное внутреннее отражение, что требует специальных структур для вывода излучения, а сильное поглощение (при комнатной температуре $\sim 20\text{-}40\text{ см}^{-1}$ [50]) ограничивает рабочую область кристалла длиной всего несколько сот микрометров.

Для преодоления эффекта полного внутреннего отражения в работе [51] было предложено использовать кристалл LiNbO_3 в виде призмы, а оптическое излучение накачки фокусировать цилиндрической линзой. Фокусировка цилиндрической линзой создает в кристалле движущуюся линию, которая излучает черенковский клин, а не конус, как в случае фокусировки в пятно. Черенковский клин выводится через боковую поверхность с минимальными потерями на отражение. Как результат, в работе [51] была достигнута эффективности конверсии около 2×10^{-5} , что сопоставимо с эффективностью конверсии в кристалле ZnTe . Для преодоления сильного терагерцового поглощения в кристалле LiNbO_3 в работе [52] было предложено использовать призму из материала с низким терагерцовым поглощением, например высокоомного кремния, помещённую на боковую поверхность кристалла LiNbO_3 , для вывода черенковского излучения (в более ранних работах кремниевая призма использовалась для вывода из LiNbO_3 терагерцового излучения, сгенерированного методом параметрического взаимодействия двух близких по частоте оптических волн [53]). В такой геометрии поверхностной эмиссии [54] лазерная накачка распространяется параллельно и близко к интерфейсу LiNbO_3 -кремний, что приводит к заметному уменьшению терагерцового поглощения [52].

В диссертации предлагаются и экспериментально тестируются усовершенствованные оптико-терагерцовые преобразователи, основанные на эффекте поверхностной эмиссии черенковского излучения. Такие преобразователи состоят из тонкого (толщиной 30-50 мкм) слоя электрооптического материала (LiNbO_3) и кремниевой выводящей призмы, прижатой или приклеенной к одной стороне электрооптического слоя (возможно также наличие аналогичной призмы или подложки на противоположной стороне слоя). Можно выделить ряд преимуществ данного преобразователя. Во-первых, нелинейный слой является волноведущим для оптической накачки, что предотвращает дифракционное уширение лазерного импульса в направлении перпендикулярном боковой поверхности структуры, тем самым увеличивая эффективную длину взаимодействия накачки и генерируемого излучения. Во-вторых,

малая для терагерцового излучения толщина слоя минимизирует его поглощение. Это потенциально позволяет использовать более широкий класс электрооптических кристаллов, не ограничиваясь возможно сильным поглощением в терагерцовой области частот. В-третьих, в случае фокусировки в линию энергия терагерцового импульса может быть легко масштабирована путем увеличения длины линии и использования лазерных импульсов с более высокой энергией. В-четвертых, терагерцовое излучение, испускаемое линейным источником, формирует в оболочке черенковский клин, т. е. пучок с почти плоским фазовым фронтом, что более удобно для практических приложений по сравнению с черенковским конусом, создаваемым лазерным импульсом, сфокусированным обычной линзой в пятно. Стоит заметить, что при фокусировке обычной линзой данные структуры также являются работоспособными [55]. В-пятых, благодаря универсальности неколлинеарного синхронизма, черенковская схема генерации может быть использована для широкого класса кристаллов и длины волны оптической накачки.

Упомянутые выше максимальные значения эффективности в различных схемах терагерцовой генерации, могут быть ограничены такими нелинейными эффектами как многофотонное поглощение, фотогенерация носителей, фазовая самомодуляция, самофокусировка, обратное воздействие терагерцового излучения [56], [57], доминирование которых зависит от условий эксперимента. Некоторые теоретические предсказания были подтверждены экспериментальными измерениями, в частности продемонстрировано влияние многофотонного поглощения на насыщение эффективности генерации в кристалле ZnTe [26], а также зафиксировано красное смещение спектра накачки из-за обратного воздействия терагерцового излучения при генерации в кристалле LiNbO₃ лазерными импульсами со скошенным фронтом интенсивности [43], [57].

В экспериментальных исследованиях, проведенных в диссертации, также уделяется внимание и обсуждается природа возникновения насыщения эффективности. В частности, в классической схеме генерации скошенными лазерными импульсами рассматривается влияние на насыщение длины и температуры кристалла, а также длительности лазерного импульса накачки. Кроме того, обсуждается влияние эффекта самовоздействия лазерной накачки. В схемах генерации с применением сэндвич-структур

исследуется влияние многофотонного поглощения, а также изменение спектра оптического излучения за счет обратного воздействия терагерцового излучения.

Стоит отметить, что эффект многофотонного поглощения накачки, приводящий к генерации носителей, может быть полезным для генерации терагерцового излучения. Сразу после рождения электроны испытывают ускорение электрическим полем, формируемым в области лазерного импульса за счет оптического выпрямления. Возникающий при ускорении этих электронов всплеск тока может генерировать электромагнитные поля дополнительно к полю нелинейной поляризации. Так, в работе [58] было показано, что при черенковском механизме излучения данный эффект может приводить к уширению спектра генерации в кристалле GaP при накачке фемтосекундным излучением на длине волны 1.7 мкм. В диссертации проводится экспериментальная проверка теоретических предсказаний с использованием кристалла LiNbO₃.

Несмотря на большое количество экспериментальных результатов по оптической ректификации лазерных импульсов в различных кристаллах, строгая электродинамическая теория этого явления до последнего времени была недостаточно развита даже в пределе низких интенсивностей накачки (при которых вышеупомянутые нелинейные эффекты высшего порядка не существенны). Теоретические исследования коллинеарных режимов вблизи фазового синхронизма обычно ограничиваются простой одномерной (1D) моделью или приближением плоской волны (см., например, [59]). Однако такая модель не позволяет правильно учесть влияние фокусировки оптической накачки. При острой фокусировке лазерного пучка необходимо учитывать черенковский механизм генерации. Теория Черенковского излучения терагерцовых волн, генерируемых оптическими импульсами в виде фонон-поляритонов в бесконечных кристаллах, была разработана в работах [49], [60]. Переходные процессы на входной и выходной границах кристалла не рассматривались. Кроме того, в работе [60] были проигнорированы важные эффекты, такие как дисперсия и поглощение среды. В работе [49] была учтена дисперсия, но не были рассмотрены энергетические характеристики Черенковского излучения, такие как полная излученная энергия (на единицу длины лазерного пути) и спектрально-угловое энергетическое распределение. Еще одним важным недостатком многих существующих теоретических подходов является способ учета границ кристалла в расчетах. На входной поверхности кристалла часто предполагалось некорректное граничное условие зануления терагерцового поля (см., например, работы [59], [61]). На выходной границе,

генерируемые внутри кристалла и высвечивающиеся терагерцовые волны не были строго согласованы. В работе [62] был предложен общий формализм, включающий три ключевых эффекта: конечную ширину лазерного пучка, дисперсию среды и прохождение излучения через границу кристалла, однако в ней недостаточно подробно обсуждалась роль этих эффектов на динамику генерации терагерцового излучения.

Теория генерации терагерцового излучения скошенными оптическими импульсами также была развита недостаточно. Так, в работах [41], [63] были использованы простые двумерные модели, основанные на свертке распределения оптической интенсивности с известным аналитическим решением для черенковского излучения от движущегося линейного источника. В другой, одномерной эвристической модели [40], [64] терагерцовое поле представляется в виде суммы плоских волн, приходящих на выходную границу кристалла из различных участков кристалла. Численные расчеты в работе [65] основаны на более полной, но также одномерной модели. Трехмерные расчеты [66] не учитывают ни наличие границ кристалла, ни такие важные эффекты, как дисперсия и поглощение терагерцовых волн. Сложные численные расчеты, с учетом нелинейных эффектов, не позволяют детально разобраться в сути электродинамических эффектов, происходящих при генерации скошенным фронтом интенсивности [56], [57].

В диссертации развивается последовательная аналитическая теория генерации терагерцового излучения фемтосекундными лазерными импульсами в электрооптических кристаллах как обычными лазерными импульсами, так и импульсами со скошенным фронтом интенсивности. Учитывается конечный поперечный размер пучка накачки (в рамках двумерной модели), толщина кристалла, фонон-поляритонная дисперсия материала, а также точные граничные условия на входной и выходной границах кристалла. Теория рассматривается в приближении заданного источника, что на практике реализуется при отсутствии многофотонного поглощения накачки, самофокусировки, и других типов нелинейного самовоздействия. Однако при таком подходе удастся выявить особенности различных режимов генерации терагерцового излучения и предсказать оптимальные характеристики кристалла и лазерного импульса на этапе линейного роста эффективности с увеличением интенсивности накачки.

Помимо разработки эффективных источников излучения, немаловажной задачей в освоении терагерцового диапазона частот является поиск новых направлений его применения. Одно из таких направлений может быть связано с диагностикой

быстропротекающих процессов, например, рекомбинационного распада плазменного филамента, формируемого в газе достаточно мощным лазерным излучением. Эффект филаментационного распространения интенсивных лазерных импульсов является следствием конкуренции двух процессов: самофокусировки лазерного пучка за счет керровской нелинейности и дефокусировки на фотоионизированной плазме. Данный эффект был впервые продемонстрирован Брауном в 1995 году [67] и привлекает значительный интерес и в настоящее время благодаря таким возможным приложениям как молниевая защита [68], дистанционное зондирование атмосферы [69], создание волноводного канала для микроволнового излучения [70], генерация терагерцового излучения [71], ускорение частиц полем кильватерной волны [72] и др. Для указанных приложений важными являются параметры формируемого плазменного канала, такие как концентрация плазмы, температура, геометрические размеры, а также динамика распада электронной плотности. Согласно теоретическим расчетам, в результате филаментации может формироваться протяженный (длиной от десятка до сотен сантиметров) плазменный канал с начальной плотностью плазмы $10^{15} - 10^{17} \text{ см}^{-3}$ и диаметром от несколько десятков до сотен микрометров в зависимости от параметров лазерных импульсов [73]. Измерение плотности плазмы в таком канале, а также динамики ее распада является не тривиальной задачей, поскольку для оптического излучения данный объект является малоконтрастным. Тем не менее в ряде работ были проведены как прямые, так и относительные измерения концентрации плазмы различными методами. На субнаносекундном временном масштабе продемонстрирована возможность прямого измерения концентрации плазмы методами поперечной интерферометрии [74], [75], а также поперечной [76] и продольной [77] оптической дифрактометрией. Малый временной масштаб измерений связан с ограниченной чувствительностью данных методов, которые трудно применимы для измерений плотности плазмы менее 10^{16} см^{-1} на поперечном масштабе филаменты (около 100 мкм). На интервалах порядка десятков наносекунд был предложен и успешно реализован относительный метод измерения электронной плотности по проводимости плазмы [76], [78], [79], [80]. В этом подходе плотность плазмы определялась по изменению электрического тока через плазму в продольном внешнем электрическом поле [79] или по падению потенциала в поперечном внешнем электрическом поле [80].

В диссертационной работе предлагается и практически применяется альтернативный метод, основанный на измерении рассеянной на филаменте энергии зондирующего терагерцового излучения. В частности, демонстрируется возможность измерения динамики плотности плазмы в воздухе на наносекундном временном масштабе, что находится как раз в промежуточном временном диапазоне труднодоступности упомянутых выше методов оптической интерферометрии (или дифрактометрии) и проводимости.

Одним из наиболее известным эффектом нелинейной оптики является генерация второй гармоники (ВГ). Такая генерация возможна только в материалах, обладающих ненулевым тензором квадратичной восприимчивости $\chi^{(2)}$, а значит запрещена в средах, обладающих центром инверсии. Однако приложение постоянного электрического поля нарушает эту инверсию снимает запрет на генерацию ВГ [81]. В этом случае генерируемое поле ВГ уже связано с нелинейной восприимчивостью третьего порядка $\chi^{(3)}$. Генерация ВГ во внешнем электрическом поле может применяться для измерения тензора $\chi^{(3)}$ [82], обнаружения сверхбыстрых электрических сигналов [83], визуализации электрических полей [84], характеристики интерфейсов полупроводник-диэлектрик в планарных структурах [85], исследования работы органических электронных устройств [86] и визуализации потенциала клеточной мембраны [87]. Перспективной модификацией метода является использование вместо статического поля, электромагнитного поля терагерцового импульса [88], [89]. Неотъемлемым преимуществом использования коротких (длительностью в пс) терагерцовых импульсов является возможность приложения электрических полей, более сильных, чем порог пробоя материала в постоянном электрическом [89]. Это особенно важно ввиду упомянутых выше возможностей генерации терагерцовых импульсов с полями более МВ/см [1]. Столь сильные поля могут быть использованы, например, для создания сред с искусственной квадратичной нелинейностью, позволяющих, в частности эффективно преобразовывать частоту лазерного излучения. Кроме того, зачастую можно довольно легко изменять направление поля терагерцового импульса, что может быть важно для управления поляризационными свойствами ВГ и исследования анизотропии нелинейного отклика среды.

Теория генерации ВГ в средах с квадратичной нелинейностью хорошо разработана [90], [91], [92] и может быть успешно применена для описания генерации ВГ в

центрально-симметричных средах с приложенным постоянным полем E , как в квадратичной среде эффективной квадратичной нелинейностью $\chi_{\text{eff}}^{(2)} \propto \chi^{(3)}E$. Однако в случае применения терагерцового импульса, область $\chi_{\text{eff}}^{(2)}$ является движущейся, и, в связи с этим, могут возникать особенности в генерации ВГ. Некоторые теоретические расчеты генерации ВГ в поле терагерцового импульса в терминах длин когерентности приводились ранее лишь в работе [93].

В диссертации развивается строгая теория генерации второй гармоники фемтосекундного лазерного излучения в поле терагерцового импульса при их совместном распространении в изотропной прозрачной среде с учетом разных скоростей оптических и терагерцовых волн. Из-за различия в скоростях и времени относительной задержки, импульсы могут перекрываются как на границе среды, так и в объеме. Как показывается в теории и демонстрируется в эксперименте, при некоторых условиях, перекрытие в объеме не будет приводить к излучению ВГ, тогда как перекрытие вблизи границы позволяет ВГ излучиться в свободное пространство. На основе данного эффекта в диссертации предлагается новая методика нелинейной оптической визуализации, позволяющей детектировать неоднородности $\chi^{(3)}$ даже в случаях, когда линейные оптические свойства образца однородны или имеют низкий контраст. Данная методика также может быть применена для улучшения измерений $\chi^{(3)}$ материалов, покрытых оболочкой, например, жидкости, помещенной в кювету (путем исключения сигналов ВГ от стенок кюветы).

Также в диссертации на основе метода генерации ВГ в поле терагерцового импульса исследуются нелинейные свойства сред, непрозрачных или частично прозрачных для оптического и терагерцового излучения, в частности это теллуридные и халькогенидные стекла, а также кристаллический кремний. Для диагностики таких материалов детектирование ВГ производится в геометрии отражения.

Стоит отметить, что из-за нарушения симметрии вблизи границы среды, генерация ВГ с поверхности возможна также и без внешнего поля. Исследования такой поверхностной ВГ особо важны для диагностики кремния [94] ввиду важности поверхностных свойств данного материала в микроэлектронике. Так, характеристика встроенного поля и области пространственного заряда в кремнии крайне важна для работы многих кремниевых микроэлектронных устройств (например, МОП-транзисторов и конденсаторов). Наиболее часто для этих целей используются вольт-фарадные

измерения [95]. Однако такие измерения требуют создания электродной структуры, которая может влиять на свойства границы раздела, вызывать дополнительный перенос и захват подвижных носителей через границу кремния, приводить к пробое тонких диэлектрических плёнок (<10 нм), используемых в современных МОП-структурах [96]. В отличие от этого, генерация ВГ предлагает дополнительные преимущества для неразрушающей бесконтактной диагностики [97]. Для этой цели могут использоваться измерения зависимости генерации ВГ от времени воздействия оптического излучения (эффект связан с захватом оптически индуцированных носителей заряда на границе раздела и диэлектрике, покрывающем кремний, например в оксиде кремния) [97], [98], а также от приложенного внешнего постоянного поля [85], [99]. Однако такие методы могут сопровождаться существенным перераспределением заряда, приводящим к изменению состояния исследуемой поверхности. Использование же коротких терагерцовых импульсов позволяет избежать этих нежелательных эффектов. Так, в диссертации экспериментально демонстрируется возможность измерения встроенного электрического поля в высокоомном кремнии путем измерения зависимости сигнала ВГ от величины терагерцового поля.

Еще одним известным нелинейным эффектом является квадратичный эффект Керра – изменение показателя преломления среды, пропорциональное квадрату внешнего электрического поля. В частности, этот эффект может приводить к индуцированному двулучепреломлению изначально изотропных сред (например жидкости) из-за различного изменения показателя преломления среды вдоль и поперек к внешнему электрическому полю. Различают эффект Керра в постоянном поле [100], [101], [102] и оптический эффект Керра (ОЭК) [103], [104] когда изменение показателя преломления наводится достаточно сильным постоянным (или низкочастотным) электрическим полем и электромагнитным полем квазинепрерывного оптического излучения, соответственно. Нелинейные коэффициенты, соответствующие этим типам эффекта Керра, измерены для многих различных средах, включая газы, жидкости, растворы, кристаллы, стекла и др. Также выделяют еще сверхбыстрый (фемтосекундный) оптический эффект Керра, когда фемтосекундные лазерные импульсы используются как для возбуждения нелинейного отклика среды, так и для его зондирования [105], [106], [107]. Это позволяет исследовать динамику нелинейного отклика среды (обычно исследуется динамика наведенной анизотропии показателя преломления). Так, было обнаружено, что в жидкостях, помимо

мгновенного электронного нелинейного отклика присутствуют также и довольно быстрые релаксационных ядерные отклики, связанные с различными молекулярными движениями, такими как вибрация, либрация, ориентационная диффузия [106], [107]. Аналогично фемтосекундному ОЭК в работе [108] было предложено использовать мощные короткие терагерцовые импульсы для возбуждения анизотропии, а зондирование этой анизотропии осуществлять с помощью фемтосекундных импульсов. С помощью такого терагерцового эффекта Керра были измерены быстрые и медленные (с характерным временем несколько пс) нелинейные отклики некоторых органических жидкостей с малым терагерцовым поглощением (CS_2 , CH_2I_2 , C_6H_6 , CCl_4 и CHCl_3). В последующих работах терагерцовый эффект Керра исследовался в газах [109], твердых телах [110], а также в других неполярных и полярных жидкостях [111], [112]. В частности, в работе [111] было проведено прямое сравнение откликов терагерцового и фемтосекундного оптического эффектов Керра для некоторых полярных жидкостей (диметилсульфоксид, хлороформ и ацетонитрил). Было показано, что постоянный молекулярный дипольный момент существенно влияет на ориентационное движение при терагерцовом возбуждении и приводит как к увеличению, так и уменьшению наведенной оптической анизотропии по сравнению с фемтосекундным ОЭК. Иными словами, относительно медленное поле терагерцового импульса сильнее взаимодействует с постоянным дипольным моментом, что может быть использовано для извлечения дополнительной информации о динамике молекул полярных жидкостей, включая воду [112].

В диссертации проводится исследование терагерцового эффекта Керра как в неполярных, так и полярных жидкостях, включая ацетон, который не был ранее исследован. В отличие от других работ, в диссертации на основе экспериментальных данных рассчитываются не относительные, а абсолютные нелинейные коэффициенты Керра, а также проводится их сравнение с коэффициентами Керра при ОЭК и эффектом Керра в постоянном поле.

Под действием электрического поля большой напряженности в веществе могут возникать пороговые по напряженности поля эффекты, например электролюминесценция. Впервые (в 1923 г.) в постоянном поле данный эффект наблюдал О.В. Лосев в кристаллах карбида кремния, а позднее (в 1936 г.) – Дестрио в микрокристаллах сернистого цинка (при этом использовалось переменное электрическое

поле). Позднее электролюминесценцию в постоянном (или переменном) поле наблюдали и исследовали в различных материалах и структурах, в том числе в *p-n* переходах полупроводников, на основе которых созданы светодиоды. Люминесценцию, индуцированным полем интенсивного терагерцового излучения наблюдали в полупроводниках [113], квантовых точках [114], [115], парах щелочных металлах [116]. В работе [117] люминесценцию в диапазоне 350-600 нм наблюдали из однослойного графена на подложке боросиликатного стекла при воздействии терагерцового импульса с напряженностью поля 100-250 кВ/см. Для объяснения экспериментальных результатов была предложена аналитическая теория, в которой образование в графене электрон-дырочных пар, необходимых для последующей рекомбинационной люминесценции, объяснялось эффектом Ландау-Зинера. В диссертационной работе проводится более детальное исследование эффекта люминесценции в графене в широком спектральном диапазоне люминесценции, при этом используется образец графена на другой подложке, а именно на подложке полиэтилентерефталата (ПЭТ). Кроме того, на основе данного эффекта исследуется возможность визуализации терагерцового пучка, а также тестируется возможность детектирования локально-усиленного (на остриях или микро-структурах) электрического поля терагерцового импульса.

Цель и задачи диссертационной работы

Целью диссертационной работы является разработка и экспериментальное апробирование высокоэффективных схем генерации терагерцового излучения на основе оптического выпрямления фемтосекундных лазерных импульсов в электрооптических кристаллах, а также методов применения терагерцовых полей высокой (более 100 кВ/см) напряженности для исследования нелинейных свойств и структуры сред.

Для достижения поставленной цели решались следующие задачи:

- разработка последовательной теории генерации терагерцового излучения при оптическом выпрямлении фемтосекундных лазерных импульсов в электрооптических кристаллах, учитывающей наличие границ кристалла, конечность поперечного размера лазерного пучка и дисперсию кристалла, в том числе для лазерных импульсов со скошенным (по отношению к фазовым фронтам) фронтом интенсивности;

- разработка и экспериментальное исследование оптико-терагерцовых преобразователей черенковского типа, состоящих из тонкого слоя электрооптического

материала и согласующих призм;

- развитие метода генерации терагерцового излучения скошенными лазерными импульсами в призме из ниобата лития путем перехода к схеме с заменой призмы на слой ниобата лития, размещенный между двумя согласующими диэлектрическими призмами;

- теоретическое и экспериментальное исследование нелинейно-оптических эффектов, наведенных сильными терагерцовыми полями в жидкостях, полупроводниках, диэлектриках и графене;

- разработка метода диагностики динамики электронной концентрации в лазерно-плазменных филаментах по рассеянию терагерцовых импульсов.

Научная новизна работы

Научная новизна работы состоит в следующем.

1. Впервые разработана последовательная электродинамическая теория генерации терагерцового излучения при оптическом выпрямлении лазерных импульсов в электрооптических кристаллах, учитывающая наличие границ кристалла, конечность поперечного размера лазерного пучка и дисперсию кристалла как в отсутствие, так и при наличии скоса фронта интенсивности у лазерных импульсов накачки.
2. Введены коэффициенты отражения и прохождения для падающего на границу электрооптического кристалла «вынужденного» электромагнитного поля, формируемого в области лазерного импульса при его оптическом выпрямлении.
3. Предложена и экспериментально апробирована новая схема генерации терагерцового излучения, основанная на оптическом выпрямлении скошенных лазерных импульсов в слое электрооптического материала, помещенного между двумя согласующими призмами для ввода оптической накачки и вывода генерируемого излучения.
4. Разработан новый класс высокоэффективных оптико-терагерцовых преобразователей на основе черенковского синхронизма, в которых тонкий слой нелинейного кристалла играет роль волновода для лазерной накачки, а генерируемое терагерцовое черенковское излучение выводится из слоя через кремниевый согласующий элемент.
5. Впервые экспериментально продемонстрирована генерация широкополосного терагерцового излучения в сильно поглощающем кристалле DKDP с эффективностью, сравнимой с распространенной схемой оптического выпрямления импульсов титан-сапфирового лазера в кристалле ZnTe.

6. Впервые проведено сопоставление значений нелинейных коэффициентов Керра полярных и неполярных жидкостей на терагерцовых частотах с их значениями в постоянном и оптическом полях.
7. Предсказано и экспериментально подтверждено отсутствие генерации второй гармоники фемтосекундного оптического излучения в присутствии пикосекундного терагерцового импульса в объеме центрально симметричной среды в распространённом случае, когда длина когерентности между основной частотой и второй оптической гармоникой мала по сравнению с длиной разбегания оптического и терагерцового импульсов.
8. Предложен новый метод диагностики неоднородностей (границ раздела) в прозрачных материалах путем регистрации второй оптической гармоники фемтосекундного лазерного импульса, генерируемой на неоднородностях в присутствии терагерцового импульса.
9. Впервые экспериментально показано, что для теллуридных и халькогенидных стекол нелинейные коэффициенты, ответственные за генерацию второй оптической гармоники в присутствии терагерцового поля и за эффект самовоздействия в оптическом диапазоне, имеют близкие значения.
10. Впервые экспериментально продемонстрирована возможность измерения встроенного электрического поля в приповерхностном слое полупроводника, в частности слаболегированного (111) Si, с помощью эффекта поверхностной генерации второй оптической гармоники в присутствии поля терагерцового импульса.
11. Продемонстрирована возможность визуализации терагерцового пучка и усиленного на металлическом острие ближнего терагерцового поля путем измерения оптической люминесценции, наведенной терагерцовым полем в графене.
12. Предложен и экспериментально реализован новый метод диагностики временной динамики концентрации электронов в газовой лазерно-плазменной филаменте, основанный на измерении энергии рассеянного на филаменте зондирующего терагерцового импульса.

Теоретическая и практическая и значимость работы

В диссертации получен ряд результатов, имеющих общетеоретическое значение для нелинейной оптики. К этим результатам относится аналитическое описание генерации

терагерцового излучения при оптической ректификации ультракоротких лазерных импульсов, в том числе со скошенным фронтом интенсивности, в кристаллах с квадратичной нелинейностью, формализм модифицированных формул Френеля и обобщенного закона Снелля применительно к описанию трансформации вынужденного электромагнитного поля (ближнего поля выпрямленного лазерного импульса) на границе нелинейного кристалла, а также теория генерации второй оптической гармоники при нелинейном взаимодействии фемтосекундного оптического и пикосекундного терагерцового импульсов в среде с кубичной нелинейностью.

Результаты по теоретическому исследованию генерации терагерцового излучения сильно сфокусированными лазерными импульсами титан-сапфирового лазера в кристалле GaP могут быть использованы для повышения пространственного разрешения ближнепольной безапертурной терагерцовой микроскопии.

Предложенная схема генерации терагерцового излучения скошенными лазерными импульсами в слое кристалла LiNbO_3 , расположенного между согласующими призмами, может быть масштабирована для лазерных систем тераваттного уровня мощности, что позволит создать сверх-яркие терагерцовые источники.

На основе разработанных черенковских оптико-терагерцовых преобразователей с накачкой фемтосекундными лазерами с высокой частотой повторения и субмиллиджоульной энергией импульса (например, лазерами на основе кристаллов иттербия) могут быть созданы терагерцовые источники высокой (на уровне мВт) средней мощности.

Метод измерения плотности плазменных филамент по рассеянию терагерцовых импульсов может быть использован для диагностики лазерно-плазменных разрядов с масштабами от десятка до сотен микрометров, а также для решения задач по управлению молниевыми разрядами с помощью лазерных импульсов.

Результаты по генерации второй оптической гармоники в изотропных материалах в присутствии поля терагерцового импульса могут быть использованы для развития нового метода дефектоскопии.

Результаты по наведенной терагерцовым полем оптической люминесценции в графене могут быть использованы для разработки нового типа терагерцовых детекторов.

Выносимые на защиту основные положения

1. При генерации терагерцовой волны фемтосекундным лазерным импульсом в электрооптическом кристалле в условиях коллинеарного синхронизма динамика формирования волны состоит из двух стадий. На первой стадии растет амплитуда волнового пакета без существенного изменения его формы. На второй – растет длина пакета без существенного изменения амплитуды. Переход ко второй стадии происходит на длине, равной минимальной длине когерентности для частот генерируемого терагерцового спектра. Вторая стадия реализуется на длине, определяемой разницей оптического и терагерцового индексов группового запаздывания и коэффициентом поглощения терагерцовых волн. При неколлинеарной генерации терагерцовой волны скошенным лазерным импульсом формирование волнового пакета ограничивается длиной поперечного выбегания терагерцовой волны из области лазерного пучка.

2. При выходе из электрооптического кристалла лазерного импульса движущееся вместе с ним ближнее низкочастотное (выпрямленное) электромагнитное поле испытывает на границе трансформацию, которая по аналогии со свободно распространяющимся излучением может быть описана модифицированными формулами Френеля и законом Снелля, с включением в них оптического индекса группового запаздывания. В случае наклонного падения ближнего поля на границу возможны режимы трансформации с отсутствием отраженной волны, прошедшей волны или обеих волн сразу.

3. В отличие от общепринятой схемы генерации терагерцового излучения скошенными лазерными импульсами, где плоскость изображения дифракционной решетки и фронт интенсивности лазерного импульса выбираются параллельными друг другу и выходной грани призмы из электрооптического кристалла, высокая эффективность оптико-терагерцовой конверсии и хорошее качество терагерцового пучка могут достигаться и в условиях, когда фронт интенсивности не параллелен изображению решетки и грани кристалла. Такая конфигурация позволяет заменить призму плоским слоем кристалла с прикрепленной к нему диэлектрической призмой для вывода терагерцового излучения, что создает возможность масштабирования генерируемой терагерцовой энергии путем использования коммерчески доступных широкоапертурных пластин LiNbO_3 и высокоэнергетической лазерной накачки. При накачке слоя LiNbO_3 с кремниевой выводящей призмой импульсами титан-сапфирового лазера мДж уровня

энергии эффективность оптико-терагерцовой конверсии может достигать 0,1%, что сравнимо с общепринятой схемой на основе LiNbO_3 в виде призмы.

4. Структура в виде слоя кристалла LiNbO_3 толщиной 30-50 мкм и длиной ~ 1 см, прикрепленного к кремниевой призме, может служить эффективным преобразователем фемтосекундных лазерных импульсов субмиллиджоульной энергии в черенковское излучение терагерцового диапазона. Эффективность преобразования может достигать 0,4% при накачке структуры излучением титан-сапфирового лазера с длиной волны 800 нм и энергией импульса в десятки мкДж и возрастать до $\sim 1\%$ при увеличении длины волны накачки до 2 мкм. При использовании структуры шириной 5 см и накачки на длине волны 800 нм с энергией импульса 600 мкДж энергия генерируемых терагерцовых импульсов может достигать 1,2 мкДж, а напряженность сфокусированного терагерцового поля ~ 500 кВ/см.

5. При нелинейном взаимодействии фемтосекундного оптического и пикосекундного терагерцового импульсов в среде с кубичной нелинейностью генерация второй оптической гармоники локализована на границах среды, если выполнено типичное для большинства материалов условие, что длина когерентности между основной оптической частотой и ее второй гармоникой мала по сравнению с длиной разбегания оптического и терагерцового импульсов. В противном случае генерация может происходить и в объеме среды. Эффект локализации генерации второй гармоники на границах может быть использован для определения глубины залегания оптически малоcontrastных границ раздела сред и коэффициента кубичной нелинейности этих сред.

6. Оптическая люминесценция, наведенная в графене терагерцовым излучением с напряженностью электрического поля более 100 кВ/см, может быть использована для визуализации поперечного распределения поля в терагерцовом пучке.

7. Эффективным и доступным методом диагностики электронной концентрации в газовой лазерно-плазменной филаменте может служить регистрация рассеянного на филаменте зондирующего импульсного терагерцового излучения. Метод позволяет измерять значения концентрации ниже $\sim 10^{17}$ см⁻³ и проследивать динамику концентрации на временах в несколько наносекунд.

Апробация результатов работы и публикации

Работа выполнена в отделе сверхбыстрых процессов (330) Федерального государственного бюджетного научного учреждения «Федеральный исследовательский центр Институт прикладной физики им. А.В. Гапонова-Грехова Российской академии наук» (ИПФ РАН).

По теме диссертации опубликовано 28 статей [A1–A28] в рецензируемых высокорейтинговых научных журналах, рекомендованных ВАК и включенных в Белый список, а также несколько десятков тезисов в международных и всероссийских конференциях, таких как Conference on Lasers and Electro-Optics & Quantum Electronics and Laser Science Conference (CLEO/QELS), International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW), International Conference Laser Optics, Conference on Lasers and Electro-Optics/Europe (CLEO/Europe), Advanced Laser Technologies (ALT) и др.

Часть результатов по генерации терагерцового излучения с помощью оптико-терагерцовых преобразователей на основе черенковского синхронизма отмечены (в соавторстве) медалью Российской Академии Наук с премией для молодых ученых за работу "Разработка эффективных методов генерации и детектирования короткоимпульсного терагерцового излучения и их практическое приложение" (2013 г.). Также по результатам экспериментальных исследований в таких преобразователях получен патент № 2836612 «Оптико-терагерцовый преобразователь с полуконическими элементами вывода терагерцового излучения».

Достоверность результатов работы

Достоверность полученных результатов обеспечивается применением апробированных экспериментальных, теоретических и численных методов, согласованием результатов диссертационной работы в частных случаях с имеющимися теоретическими и экспериментальными данными других научных групп, а также апробацией результатов на международных и всероссийских конференциях и публикациями в высокорейтинговых международных рецензируемых журналах.

Методология и методы исследования

При проведении теоретических исследований генерации терагерцового излучения лазерными импульсами в электрооптических кристаллах аналитические выражения для

полей и энергии генерируемого излучения находились из уравнений Максвелла с заданным источником в виде нелинейной поляризации, пропорциональной огибающей интенсивности лазерного импульса. Для решения уравнений Максвелла использовался метод преобразования Фурье с применением точных граничных условий на входной и выходной гранях кристалла. В ряде случаев использовался метод медленно меняющихся амплитуд для Фурье-образов терагерцовых полей.

В экспериментах по генерации и практическому применению терагерцового излучения использовались титан-сапфировые фемтосекундные лазерные системы миллиджоульного уровня энергии с длиной волны 800 нм, такие как Spitfire (Spectra Physics), Astrella (Coherent) и система, собранная в ИПФ РАН. Также использовался параметрический преобразователь к системе Spitfire (Spectra Physics), позволяющий преобразовывать длину волны фемтосекундных лазерных импульсов с 800 нм до 1-2 мкм.

В измерениях применялась апробированная экспериментальная методология терагерцовой спектроскопии во временной области, согласно которой лазерный импульс разделялся на две части: одна часть использовалась в качестве импульса накачки для терагерцовой генерации, другая – в качестве зондирующего импульса для детектирования терагерцового поля методом электрооптического стробирования [4] с применением различных детектирующих кристаллов (ZnTe, GaP). Для варьирования времени задержки между зондирующим оптическим и терагерцовым импульсами использовалась линия задержки, управляемая компьютером. Величина терагерцового поля рассчитывалась из электрооптического сигнала по известным величинам электрооптических коэффициентов детектирующих кристаллов [118], [119]. Спектр поля рассчитывался из зависимости электрооптического сигнала от времени задержки методом быстрого преобразования Фурье.

Энергия терагерцового излучения измерялась с помощью калиброванных детекторов: болометра, ячейки Голя, пиродетектора. Калибровка детекторов осуществлялась по калиброванным (от производителя) измерителям энергии оптического или СВЧ излучения. Энергия оптического излучения варьировалась с помощью поляризационного ослабителя (полуволновой пластины и поляризатора), а в некоторых экспериментах с помощью нейтральных светофильтров.

При исследовании наведенных терагерцовым полем эффектов генерации второй оптической гармоники в центрально-симметричных средах и оптической люминесценции

в графене, а также терагерцового эффекта Керра интенсивное терагерцовое излучение генерировалось при накачке призмы из LiNbO_3 скошенными лазерными импульсами, создаваемыми с помощью дифракционной решетки и оптической системы переноса изображения решетки в призму. Терагерцовое излучение остро фокусировалось на исследуемые образцы с помощью системы внеосевых параболических зеркал. При исследовании генерации второй оптической гармоники основной оптический и терагерцовый импульсы падали на образец коллинеарно, а излучение второй гармоники измерялось с помощью фотоэлектронного умножителя (ФЭУ). Фоновое излучение и основная гармоника блокировались специальными фильтрами. При исследовании терагерцового эффекта Керра наведенная терагерцовым полем анизотропия показателя преломления измерялась с помощью зондирующего оптического импульса методом скрещенных поляризаторов. Наведенная терагерцовым полем оптическая люминесценция измерялась с помощью высокочувствительной охлаждаемой CCD камеры, экранированной от окружающего и лазерного света.

При исследовании динамики плотности плазмы в филаменте зондирующее терагерцовое излучение генерировалось в кристалле ZnTe , а энергия рассеянного излучения регистрировалась с помощью охлаждаемого жидким гелием болометра.

Личный вклад автора

Все приведенные в диссертации результаты получены либо лично автором, либо при его непосредственном участии. Вклад автора в ряд результатов, таких как создание и тестирование новых схем оптико-терагерцовых преобразователей, разработка опто-терагерцового метода диагностики оптически малоконтрастных границ раздела сред, а также визуализация терагерцового пучка по эффекту оптической люминесценции в графене, является определяющим.

Структура и объем диссертации

Диссертация состоит из оглавления, введения, пяти глав, заключения, списка литературы и списка публикаций по диссертации. Общий объем диссертации составляет 336 страниц, включая 107 рисунков, 3 таблицы, список литературы из 226 наименований на 24 страницах и список публикаций по диссертации из 28 наименований на 3 страницах.

Благодарности

Работа выполнена при частичной поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации (проект FSWR-2020-0035).

Автор выражает благодарность своему научному консультанту зав. кафедрой ННГУ им. Н.И. Лобачевского Бакунову Михаилу Ивановичу – за ценные советы, мудрые наставления, а также неоценимую помощь в подготовке текста диссертации, зав. лабораторий 330 ИПФ РАН Степанову Андрею Николаевичу – за переданный уникальный экспериментальный опыт, своим родителям, жене и детям – за предоставленную временную возможность на подготовку диссертации.

Глава 1. Теория генерации терагерцового излучения при оптическом выпрямлении лазерных импульсов в слое электрооптического материала

В данной главе развивается аналитическая теория генерации терагерцового излучения при оптическом выпрямлении фемтосекундных лазерных импульсов в слое электрооптического материала. В теории учитывается дисперсия и поглощение терагерцового излучения, а также точные граничные условия на входной и выходной границах нелинейного слоя. Рассмотрение проводится в рамках двумерной модели, которая позволяет учесть конечный поперечный размер лазерного пучка, но в тоже время избежать громоздких расчетов, свойственных трехмерному случаю. Предполагается, что оптический импульс при распространении в слое не изменяется, что на практике реализуется для лазерной накачки с относительно небольшой интенсивностью (несколько единиц или десятков ГВт/см² в зависимости от типа кристалла), а также для довольно тонких кристаллов (толщиной меньше сантиметра), типично используемых в эксперименте.

В отличие от большинства теоретических работ, где для расчета генерации терагерцового излучения используется метод медленно меняющихся амплитуд (для фурье-компонент терагерцового поля, см. например [120]), точный учет граничных условий в развиваемой теории позволяет более адекватно описать динамику генерируемого излучения, особенно в случае сильного рассогласования скоростей оптического и терагерцового импульсов. Кроме того, такой подход позволяет правильно описать высвечивание на выходной границе среды вынужденных терагерцовых импульсов, локализованных в области оптической накачки.

Рассматриваются два возможных режима генерации терагерцового излучения, когда групповая скорость оптического импульса превышает максимальную фазовую скорость терагерцового излучения (сверхсветовой режим генерации), и когда меньше её (досветовой режим генерации). Для указанных режимов генерации вводятся характерные длины, а также приводятся аналитические выражения для амплитуд полей, которые позволяют адекватно описать динамику формирования терагерцового поля и предсказать толщины кристаллов достаточных для эффективного оптико-терагерцового преобразования.

Помимо общей аналитической теории, в главе проводятся расчеты структур полей и эффективности конверсии для типичных экспериментальных ситуаций, которые соответствуют сверхсветовому и досветовому режимам генерации. Это оптическое выпрямление фемтосекундных импульсов титан-сапфирового лазера (на длине волны 800 нм) в кристаллах ZnTe, LiNbO₃ и GaP, а также фемтосекундных импульсов волоконного лазера (на длине волны 1560 нм) в кристалле GaAs. Исследуется влияние длительности и поперечного размера лазерного импульса, а также длины кристалла на характеристики терагерцового излучения. В случае острой фокусировки накачки в кристалл GaP, рассматривается возможность создания сильно локализованного источника терагерцового излучения.

Основные результаты главы опубликованы в работах [A1, A2, A6].

1.1. Модель и общий формализм

Рассмотрим пластину электрооптического материала толщиной L и выберем систему координат, как показано на Рисунке 1.1. Предположим, что на входную поверхность $z = 0$ падает по нормали фемтосекундный лазерный импульс, сфокусированный в x -направлении цилиндрической линзой. Ширина пучка ℓ_{\perp} в этом направлении может изменяться в широком диапазоне, что соответствует типичной экспериментальной ситуации. В y -направлении ширина пучка считается намного больше, чем терагерцовая длина волны. Это позволяет аппроксимировать падающий импульс двумерным, а генерируемые поля, независимыми от координаты y .

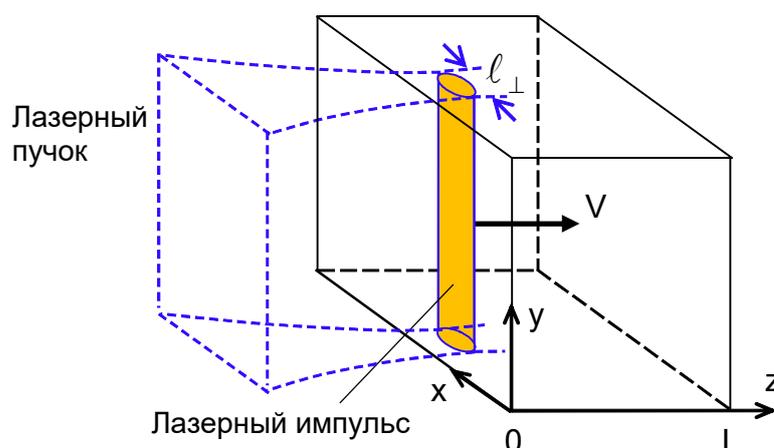


Рисунок 1.1. Геометрия задачи: оптический импульс, сфокусированный в линию (с помощью цилиндрической линзы), падает на пластину электрооптического материала и распространяется в ней с групповой скоростью V .

Лазерный импульс распространяется в пластине материала со скоростью $V = c/n_g$, где n_g – групповой индекс запаздывания, c – скорость света в вакууме. Будем пренебрегать дисперсионным и дифракционным расплыванием лазерного импульса, что накладывает некоторые ограничения на его минимальные длительность и поперечный размер. Однако, для широкого круга реальных экспериментальных ситуаций данное приближение довольно хорошо работает. Кроме того, не будем учитывать истощение и искажение импульса из-за линейного поглощения (обычно слабого в таких кристаллах, как ZnTe, GaAs и LiNbO₃ при использовании оптической накачки с энергией кванта меньше ширины запрещенной зоны) и нелинейных процессов, таких как двухфотонное поглощение, генерация второй гармоники, эффекты самовоздействия (фазовая самомодуляция, самофокусировка), обратное воздействие генерируемого терагерцового излучения и др. Также будем пренебрегать немгновенностью нелинейного отклика (дисперсия нелинейности может быть учтена в рамках рассматриваемой модели, однако эта дисперсия сказывается в основном на спектрально-амплитудные характеристики терагерцового излучения и слабо влияет на динамику генерации, которой здесь уделено основное внимание). В таком приближении, нелинейную поляризацию, индуцированную в материале за счет оптического выпрямления, можно записать в виде

$$\mathbf{P}^{\text{NL}} = \mathbf{p}F(\xi)G(x)\Pi(z), \quad (1.1)$$

где функция $\Pi(z) = 1$ внутри слоя $0 < z < L$ и $\Pi(z) = 0$ вне слоя. Функция $G(x)$ описывает поперечный профиль оптического пучка, $F(\xi)$ – огибающую оптической интенсивности, а $\xi = t - z/V$ – бегущее время. Для определенности, в окончательных выражениях будем использовать следующие функции:

$$G(x) = e^{-x^2/\ell_{\perp}^2}, \quad F(\xi) = e^{-\xi^2/\tau^2}, \quad (1.2)$$

где τ – длительность импульса, связанная с длительностью по полувысоте интенсивности (FWHM) $\tau_{\text{FWHM}} = 2\sqrt{\ln 2} \tau$ (аналогично $\ell_{\text{FWHM}} = 2\sqrt{\ln 2} \ell_{\perp}$). Ориентация амплитудного вектора \mathbf{p} определяется поляризацией оптического излучения и ориентацией кристаллографических осей электрооптического кристалла. Будем учитывать все три компоненты: p_x, p_y и p_z .

Чтобы найти терагерцовое излучение, создаваемое движущейся нелинейной поляризацией (1.1), используем уравнения Максвелла:

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}, \quad (1.3a)$$

$$\nabla \times \mathbf{B} = \frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} + \frac{4\pi}{c} \frac{\partial \mathbf{P}^{NL}}{\partial t}. \quad (1.36)$$

Эти уравнения должны быть дополнены материальным уравнением (связывающим вектора \mathbf{D} и \mathbf{E}), которые удобно записать в частотной области.

Перед тем, как перейти к решению системы (1.3), обсудим два возможных режима возбуждения терагерцовых волн: сверхсветовой и досветовой. Эти два режима возникают из-за разного соотношения между фазовой скоростью терагерцовых волн и групповой скоростью оптического импульса в различных материалах. Фазовые скорости терагерцовых волн можно определить, используя диэлектрическую проницаемость, которая в приближении одного-фононного резонанса имеет следующий вид:

$$\varepsilon = \varepsilon_\infty + \frac{(\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty)\omega_{\text{TO}}^2}{\omega_{\text{TO}}^2 - \omega^2 + i\gamma\omega}, \quad (1.4)$$

где ε_0 и ε_∞ – низкочастотная и высокочастотная диэлектрические проницаемости, соответственно, ω_{TO} – частота фононного резонанса, а γ – коэффициент затухания. Дисперсионная кривая терагерцовых волн имеет две ветви, как показано на Рисунке 1.2. В дальнейшем, будем рассматривать только низкочастотную ветвь ($\omega < \omega_{\text{TO}}$), которая обычно используется в экспериментах по генерации терагерцовых волн. Возбуждение ветви более высоких частот, выше частоты продольного оптического резонанса ($\omega > \omega_{\text{LO}}$), требует обычно очень коротких оптических импульсов (несколько десятков фемтосекунд) и будет кратко обсуждаться в п. 1.4.1.

В сверхсветовом режиме (см. Рисунок 1.2(a)) групповая скорость оптического импульса (а значит, и импульса нелинейной поляризации \mathbf{P}^{NL}) превышает фазовую скорость самых быстрых (низкочастотных) терагерцовых волн, распространяющихся вдоль оси z , то есть $V > c/\sqrt{\varepsilon_0}$, а значит условие коллинеарного синхронизма не может быть выполнено (при $\omega < \omega_{\text{TO}}$). Однако фазовое согласование возможно для континуума терагерцовых волн, распространяющихся под конечными углами θ относительно оси z (см. вставку на Рисунке 1.2(a)). В этом случае сгенерированное терагерцовое излучение имеет широкий спектр ($0 < \omega < \omega_{\text{TO}}$), при этом каждая парциальная волна формирует свой черенковский клин с углом α (см. вставку на Рисунке 1.2(a)). Максимальный угол черенковского клина α_{max} определяется выражением $\sin\alpha_{\text{max}} = c/(\sqrt{\varepsilon_0}V) = n_g/\sqrt{\varepsilon_0}$. Если скорость оптического импульса уменьшается и приближается к $c/\sqrt{\varepsilon_0}$, то угол раскрытия черенковского конуса увеличивается, пока не достигнет $\pi/2$. Важно, что

черенковское возбуждение происходит только в том случае, если оптический пучок сфокусирован в размер меньше, чем терагерцовая длина волны; широкий лазерный импульс может генерировать только ближние поле.

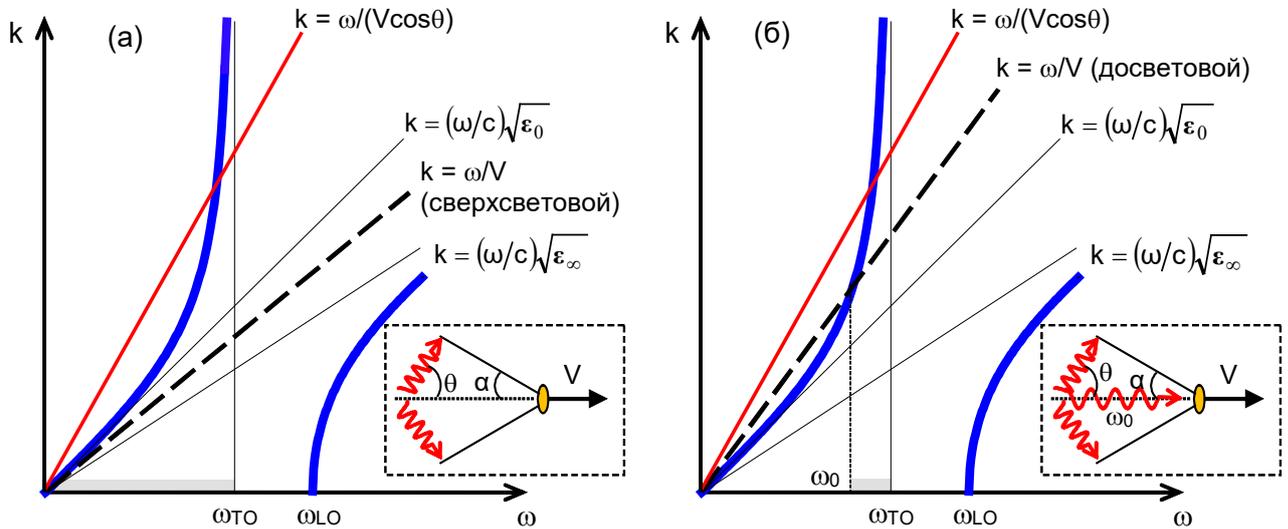


Рисунок 1.2. Кинематические диаграммы (зависимость волнового числа k от частоты ω), которые иллюстрирует разницу между (а) сверхсветовым и (б) досветовым режимами. Жирные синие кривые показывают дисперсионную зависимость (1.4) для терагерцовых волн. На рисунке (а) пересечение дисперсионной кривой с линией $k = \omega/(V \cos \theta)$ даёт частоту парциальной синхронизованной плоской волны, распространяющейся под углом θ к оси z . На рисунке (б) пересечение дисперсионной кривой с линией $k = \omega/V$ даёт частоту ω_0 , при которой достигается фазовый синхронизм между движущимся источником и волной, распространяющейся вдоль оси z . Серым цветом на оси частот показана область, где возможна генерация черенковского излучения. Во вставках показана геометрия распространения парциальных волн.

В досветовом режиме, когда $V < c/\sqrt{\epsilon_0}$, возможен коллинеарный синхронизм ($\theta = 0$) для некоторой частоты ω_0 (см. Рисунок 1.2(б)). Сильно сфокусированный оптический импульс может дополнительно генерировать волны в частотном диапазоне $\omega_0 < \omega < \omega_{TO}$, распространяющиеся под углами $0 < \theta < \pi/2$ (аналогично сверхсветовому режиму).

Приведенное выше обсуждение относится к стационарному режиму, когда оптический импульс распространяется в бесконечном однородном материале. В реальных

условиях лазерный импульс возбуждает все разрешенные дисперсионной кривой волны при входе в кристалл. Это переходное излучение может существенно повлиять на общее терагерцовое поле. Эти аспекты будут рассмотрены далее.

Для решения системы уравнений (1.3) применим преобразование Фурье по переменным t и x к этим уравнениям и используем материальное соотношение между фурье-образами векторов напряженности и индукции электрического поля: $\tilde{\mathbf{D}}(z, g, \omega) = \varepsilon(z, \omega)\tilde{\mathbf{E}}(z, g, \omega)$, где ω и g – фурье-переменные, соответствующие t и x ; символ $\tilde{}$ будет обозначать величины в Фурье-пространстве), комплексная диэлектрическая функция $\varepsilon(z, \omega)$ равна $\varepsilon_c(\omega)$ внутри кристалла ($0 < z < L$) и единице в вакууме.

Уравнения (1.3), записанные в фурье-пространстве и спроецированные на выбранную систему координат, разделяются на две независимые группы: для s -поляризованных волн (компоненты поля \tilde{E}_y , \tilde{B}_x и \tilde{B}_z) и p -поляризованных волн (компоненты поля \tilde{B}_y , \tilde{E}_x и \tilde{E}_z).

Для s -поляризованных волн, исключая \tilde{B}_x и \tilde{B}_z с помощью соотношений

$$\tilde{B}_x = \frac{c}{i\omega} \frac{\partial \tilde{E}_y}{\partial z}, \quad \tilde{B}_z = \frac{cg}{\omega} \tilde{E}_y, \quad (1.5)$$

получаем уравнение для \tilde{E}_y

$$\frac{\partial^2 \tilde{E}_y}{\partial z^2} + \kappa^2 \tilde{E}_y = -\frac{4\pi\omega^2 p_y}{c^2} \tilde{F}(\omega) \tilde{G}(g) \Pi(z) e^{-i\omega z/V}. \quad (1.6)$$

Для p -поляризованных волн, исключая \tilde{E}_x и \tilde{E}_z с помощью системы

$$\tilde{E}_x = \frac{ic}{\omega\varepsilon} \frac{\partial \tilde{B}_y}{\partial z} - \frac{4\pi p_x}{\varepsilon} \tilde{F} \tilde{G} \Pi(z) e^{-i\omega z/V}, \quad (1.7a)$$

$$\tilde{E}_z = -\frac{cg}{\omega\varepsilon} \tilde{B}_y - \frac{4\pi p_z}{\varepsilon} \tilde{F} \tilde{G} \Pi(z) e^{-i\omega z/V}, \quad (1.7b)$$

получаем уравнение для \tilde{B}_y :

$$\begin{aligned} & \varepsilon \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{1}{\varepsilon} \frac{\partial \tilde{B}_y}{\partial z} \right) + \kappa^2 \tilde{B}_y \\ & = -\frac{4\pi i\omega}{c} \tilde{F}(\omega) \tilde{G}(g) \left\{ p_x \varepsilon \frac{\partial}{\partial z} \left[\frac{1}{\varepsilon} \Pi(z) e^{-i\omega z/V} \right] + p_z i g \Pi(z) e^{-i\omega z/V} \right\}. \end{aligned} \quad (1.8)$$

В уравнениях (1.6) и (1.8) введен продольный волновой вектор $\kappa(z, g, \omega)$, определяемый как

$$\kappa^2 = (\omega/c)^2 \varepsilon(z, \omega) - g^2 \quad (1.9)$$

и Фурье-образы $\tilde{F}(\omega) = (\tau/2\sqrt{\pi})e^{-\omega^2\tau^2/4}$ и $\tilde{G}(g) = (\ell_{\perp}/2\sqrt{\pi})e^{-g^2\ell_{\perp}^2/4}$ огибающей $F(\xi)$ и профиля пучка $G(x)$, соответственно.

Будем решать уравнения (1.6) и (1.8) в однородных областях ($z < 0$, $0 < z < L$ и $z > L$), сшивая решения с помощью граничных условий непрерывности \tilde{E}_y и \tilde{B}_x для s -поляризованных волн и \tilde{B}_y и \tilde{E}_x для p -поляризованных волн. Для s -поляризованных волн получаем следующие выражения для фурье-образа электрического поля

$$\tilde{E}_y = \begin{cases} C_1 e^{i\kappa_v z}, & z < 0 \\ C_2 e^{-i\kappa_c z} + C_3 e^{i\kappa_c z} - A e^{-i\omega z/V}, & 0 < z < L, \\ C_4 e^{-i\kappa_v(z-L)}, & z > L \end{cases} \quad (1.10)$$

где

$$A = 4\pi p_y \tilde{F} \tilde{G} / (c^2 \kappa_c^2 / \omega^2 - n_g^2), \quad (1.11a)$$

$$C_1 = C_2 + C_3 - A, \quad (1.11б)$$

$$C_4 = C_2 e^{-i\kappa_c L} + C_3 e^{i\kappa_c L} - A e^{-i\omega L/V}, \quad (1.11в)$$

$$C_{2,3} = A [(\kappa_c \pm \kappa_v)(\kappa_v + \omega/V) e^{\pm i\kappa_c L} + (\kappa_c \mp \kappa_v)(\kappa_v - \omega/V) e^{-i\omega L/V}] / \Delta_s, \quad (1.11г)$$

$$\Delta_s = (\kappa_c + \kappa_v)^2 e^{i\kappa_c L} - (\kappa_c - \kappa_v)^2 e^{-i\kappa_c L}. \quad (1.11д)$$

Коэффициент κ_v соответствует κ при $\varepsilon = 1$, а κ_c - κ при $\varepsilon = \varepsilon_c$ (см. уравнение (1.9)). Для p -поляризованных волн:

$$\tilde{B}_y = \begin{cases} D_1 e^{i\kappa_v z}, & z < 0 \\ D_2 e^{-i\kappa_c z} + D_3 e^{i\kappa_c z} - R e^{-i\omega z/V}, & 0 < z < L \\ D_4 e^{-i\kappa_v(z-L)}, & z > L, \end{cases} \quad (1.12)$$

где

$$R = 4\pi(p_x n_g - p_z c g / \omega) \tilde{F} \tilde{G} / (c^2 \kappa_c^2 / \omega^2 - n_g^2), \quad (1.13a)$$

$$D_1 = D_2 + D_3 - R, \quad (1.13б)$$

$$D_4 = D_2 e^{-i\kappa_c L} + D_3 e^{i\kappa_c L} - R e^{-i\omega L/V}, \quad (1.13в)$$

$$D_{2,3} = \{(\kappa_c \pm \varepsilon_c \kappa_v)[R(\varepsilon_c \kappa_v + \omega/V) + Q] e^{\pm i\kappa_c L} + (\kappa_c \mp \varepsilon_c \kappa_v)[R(\varepsilon_c \kappa_v - \omega/V) - Q] e^{-i\omega L/V}\} / \Delta_p, \quad (1.13г)$$

$$Q = 4\pi\omega p_x \tilde{F} \tilde{G} / c, \quad (1.13д)$$

$$\Delta_p = (\kappa_c + \varepsilon_c \kappa_v)^2 e^{i\kappa_c L} - (\kappa_c - \varepsilon_c \kappa_v)^2 e^{-i\kappa_c L}. \quad (1.13е)$$

В используемом приближении мгновенного нелинейного отклика, в выражениях (1.11а), (1.13а) и (1.13д) компоненты амплитудного вектора p_x , p_y и p_z являются константами. Однако эти выражения легко могут быть обобщены на случай немгновенного

нелинейного отклика: достаточно просто учесть зависимость каждой компоненты этого вектора от частоты ω .

Имея решения в фурье-пространстве (1.10)-(1.13), можно преобразовать их в область t, x с помощью обратного преобразования

$$E_y(z, x, t) = \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \int_{-\infty}^{\infty} dg e^{i\omega t - igx} \tilde{E}_y(z, g, \omega) \quad (1.14)$$

и аналогичных формул для остальных компонент поля. Дальнейшие численные расчёты полей излучения для конкретных материалов в пп. 1.4 и 1.5 будут основаны на этой формуле.

Для нахождения энергии (на единицу длины линейного источника), излучаемой из пластины в направлении распространения лазерного импульса, проинтегрируем z -компоненту вектора Пойнтинга $S_z = -(c/4\pi)E_y B_x$ и $S_z = (c/4\pi)E_x B_y$ для s - и p -поляризации, соответственно, взятых при $z > L$ по бесконечным интервалам $-\infty < x < +\infty$ и $-\infty < t < +\infty$. Это даёт полные энергии $W_{s,p}$, излучаемые в направлении $+z$ для s - и p -поляризации, соответственно, в виде

$$W_{s,p} = \int_{-\pi/2}^{\pi/2} d\theta \int_0^{\infty} d\omega w_{s,p}(\theta, \omega), \quad (1.15)$$

где спектрально-угловая плотность энергии равна:

$$w_{s,p}(\theta, \omega) = 2\pi\omega \cos^2 \theta \begin{cases} |C_4(g, \omega)|^2, & \text{для } s \text{ - волны,} \\ |D_4(g, \omega)|^2, & \text{для } p \text{ - волны,} \end{cases} \quad (1.16)$$

а угол θ измеряется в плоскости x, z относительно направления $+z$. При подстановке уравнений (1.11в) и (1.13в) для $C_4(g, \omega)$ и $D_4(g, \omega)$ в уравнение (1.16), поперечное волновое число g должно быть выражено через ω и θ с помощью соотношения $g = (\omega/c) \sin \theta$. Волны, излучаемые под фиксированным углом θ , имеют непрерывный спектр, согласно уравнениям (1.15) и (1.16), поэтому угловая плотность излучаемой энергии может быть найдена интегрированием $w_{s,p}(\theta, \omega)$ по ω : $w_{s,p}(\theta) = \int_0^{\infty} d\omega w_{s,p}(\theta, \omega)$.

Уравнения (1.15) и (1.16) описывают полную энергию терагерцового излучения, излучаемого из электрооптического слоя в направлении распространения накачки, включая терагерцовые импульсы, претерпевшие двойные и многократные отражения от границ слоя и приходящие на детектор с периодической задержкой. Однако на практике

обычно используется только первый терагерцовый импульс. Для исключения переотраженных импульсов в численных расчетах будем интегрировать вектор Пойнтинга по временному окну, которое больше длительности первого терагерцового импульса, но меньше времени полного прохода в пластине. Эти временные масштабы хорошо разделены для типичных толщин пластин $L > 100$ мкм, используемых в экспериментах. Вклад переотраженных импульсов в излучаемую энергию невелик ($\leq 10\%$ в приведенных далее в пп. 1.4 и 1.5 примерах), но может приводить к нежелательным интерференционным полосам в генерируемом спектре.

1.2. Структура и динамика формирования генерируемых полей

Для понимания процесса генерации терагерцового излучения в кристалле, временно отложим рассмотрение эффектов, связанных с наличием выходной поверхности кристалла при $z = L$, и рассмотрим предельный случай полубесконечного кристалла ($L \rightarrow \infty$). Основные различия между решениями для s - и p -поляризованных волн возникают из-за их различного прохождения из слоя в вакуум. Поскольку эти эффекты на важны на этапе генерации, сосредоточимся на рассмотрении более простого случая s -поляризации.

1.2.1. Случай широкого пучка накачки

В пределе $L \rightarrow \infty$ уравнения (1.11б) и (1.11г) для $C_{1,2,3}$ упрощаются до: $C_1 = C_2 - A$, $C_2 = A(\kappa_v + \omega/V)/(\kappa_v + \kappa_c)$, $C_3 = 0$, а фурье-образ электрического поля в кристалле принимает вид

$$\tilde{E}_y(z, g, \omega) = A \left(\frac{\kappa_v + \omega/V}{\kappa_v + \kappa_c} e^{-i\kappa_c z} - e^{-i\omega z/V} \right), \quad (1.17)$$

где A по-прежнему определяется уравнением (1.11а). Уравнение (1.17) состоит из двух компонент: свободной волны (первое слагаемое) и вынужденной волны (второе слагаемое).

В пределе плоского источника ($\ell_{\perp} \rightarrow \infty$) функция $\tilde{G}(g)$ в коэффициенте A превращается в дельта-функцию $\delta(g)$: $\tilde{G}(g) \rightarrow \delta(g)$. Подстановка уравнения (1.17) в (1.14) дает

$$E_y(z, t) = 4\pi p_y \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \frac{\tilde{F}(\omega)}{\varepsilon_c(\omega) - n_g^2} \left[\frac{1 + n_g}{1 + \sqrt{\varepsilon_c(\omega)}} e^{i\omega(t - \sqrt{\varepsilon_c(\omega)}z/c)} - e^{i\omega(t - z/V)} \right]. \quad (1.18)$$

В уравнении (1.18) свободная волна (первое слагаемое в скобках) распространяется с искажениями, вызванными дисперсией и поглощением. Вынужденная волна (второе слагаемое в скобках) распространяется без изменения формы.

В сверхсветовом режиме, когда $n_g^2 < \varepsilon_c(\omega)$, подынтегральное выражение в (1.18) не имеет особенностей. Поэтому в первом приближении можно пренебречь дисперсией и поглощением в терагерцовом диапазоне и считать $\sqrt{\varepsilon_c(\omega)}$ вещественной константой n_t . Это позволяет вычислить интеграл (1.18) аналитически:

$$E_y(z, t) = \frac{4\pi p_y}{n_t^2 - n_g^2} \left[\frac{1 + n_g}{1 + n_t} F\left(t - \frac{zn_t}{c}\right) - F\left(t - \frac{z}{V}\right) \right]. \quad (1.19)$$

Уравнение (1.19) предсказывает генерацию двух терагерцовых импульсов одинаковой (гауссовой) формы, повторяющей огибающую оптической интенсивности, но с разными амплитудами и противоположными знаками. Импульсы распространяются с разными скоростями: вынужденная волна – со скоростью лазерного импульса накачки (т.е. групповой скоростью в оптическом диапазоне), а свободная волна – со скоростью терагерцового излучения. С физической точки зрения, вынужденная волна представляет собой ближнее поле, а свободная волна – переходное излучение. Вблизи входной поверхности кристалла ($z = 0$) импульсы совпадают во времени и частично компенсируют друг друга; при распространении они разделяются, что приводит к увеличению суммарного терагерцового поля. Таким образом, удобно ввести длину разбегания (walk-off length), как расстояние внутри кристалла, на котором суммарное терагерцовое поле расходуется на два отдельных по времени импульса. Эта длина разбегания равна:

$$L_w = \frac{c}{n_t - n_g} \tau_{\text{FWHM}}. \quad (1.20)$$

Введенную длину разбегания следует отличать от так называемой длины когерентности, которая характеризует взаимодействие движущегося источника с определенной терагерцовой гармоникой [121]. Хотя понятие длины разбегания было введено ранее в работе [120], предложенное уравнение (1.20) и предшествующее обсуждение дают более точное определение длины разбегания и проясняют ее физический смысл. Интересно, что пространственное разделение двух терагерцовых импульсов характеризуется другой длиной разбегания $L_w^{\text{space}} = (c\tau_{\text{FWHM}}/2)(1 + n_t/n_g)/(n_t - n_g)$, которая может значительно отличаться от L_w , задаваемой уравнением (1.20), если $n_g \ll n_t$. Длина

разбегания L_w^{space} определяет положение оптического импульса в момент, когда два импульса становятся пространственно разделенными в конкретный момент времени.

В то время как амплитуда импульса вынужденной волны не изменяется при $z > L_w$, учет дисперсии и поглощения приводит к постепенному искажению и затуханию импульса свободной волны. Генерация двух терагерцовых импульсов была предсказана ранее в работах [59], [122], однако уравнение (1.19) более точно определяет амплитуды импульсов. В частности, в отличие от [59], [122], уравнение (1.19) предсказывает ненулевое суммарное терагерцовое поле при $z = 0$.

Для более детального анализа уравнения (1.19) полезно выделить два предельных режима для сверхсветовых материалов: сильно сверхсветовой режим, когда $n_g^2 \ll \epsilon_0$ (как в LiNbO_3 , см. п. 1.4.1), и слабо сверхсветовой режим, когда n_g^2 лишь немного меньше ϵ_0 , как в GaAs (см. п. 1.4.2). В сильно сверхсветовом режиме, согласно (1.19), импульс вынужденной волны заметно превосходит по амплитуде импульс свободной волны. Кроме того, из-за существенного различия скоростей вынужденной и свободной волн, их разделение происходит на малом расстоянии от входной поверхности $z = 0$ – меньшем, чем длина лазерного импульса ($L_w \approx c\tau_{\text{FWHM}}/n_t \ll c\tau_{\text{FWHM}}/n_g$), после чего они распространяются независимо.

В слабо сверхсветовом режиме свободный и вынужденный импульсы имеют почти одинаковые амплитуды и практически компенсируют друг друга вблизи $z = 0$; суммарное терагерцовое поле постепенно нарастает с увеличением z от нуля до полного разделения импульсов, то есть на длине разбегания L_w . В этом режиме L_w сравнительно велика ($L_w = c\tau_{\text{FWHM}}/(n_t - n_g) \gg c\tau_{\text{FWHM}}/n_g$) из-за малой разницы в скоростях импульсов. Для области $0 < z < L_w$ уравнение (1.19) можно упростить:

$$E_y \approx -\frac{4\pi p_y z}{c(n_t + n_g)} \frac{dF}{d\xi}. \quad (1.21)$$

Это означает, что суммарное терагерцовое поле пропорционально производной от огибающей интенсивности оптического импульса (с отрицательным знаком) и пройденному расстоянию z . Максимальное значение терагерцового поля составляет

$$|E_y|_{\text{max}} \approx \frac{4\sqrt{2}\pi p_y z}{c(n_t + n_g)\tau} e^{-1/2} \quad (1.22)$$

при $\xi = \pm\tau/\sqrt{2}$. Для фиксированной энергии оптического импульса, в (1.22) $p_y \propto \tau^{-1}$ и тогда $|E_y|_{\max} \propto \tau^{-2}$. Соответственно, энергия терагерцового поля $\propto \tau^{-3}$. При $z > L_w$, когда импульсы вынужденной и свободной волн полностью разделяются, их амплитуды становятся значительно больше, чем в сильно сверхсветовом режиме, из-за малости знаменателя в (1.19) при $n_g \simeq n_t$. Более того, поскольку знаменатель $\varepsilon_c(\omega) - n_g^2$ в (1.18) существенно изменяется с частотой в слабо сверхсветовом режиме, низкие частоты будут доминировать в терагерцовом спектре.

В досветовом режиме подынтегральное выражение в (1.18) имеет особенность, и поэтому дисперсией нельзя пренебречь. Численные расчеты для этого режима будут выполнены в п. 1.5.1 для кристалла ZnTe. Здесь сосредоточимся на выводе аналитической формулы для отклика вынужденной волны, который представляет предельную форму терагерцового импульса на больших расстояниях z , где отклик свободной волны полностью подавляется поглощением. Продолжая интегрирование в (1.18) в комплексную плоскость ω , можно представить отклик вынужденной волны как сумму двух членов: ближнего поля движущегося источника и излучения за источником. Последнее определяется вычетами в полюсах, задаваемых уравнением $\varepsilon_c(\omega) - n_g^2 = 0$. Используя формулу однофоновонного резонанса (1.4) для $\varepsilon_c(\omega)$, находим положения полюсов: $\omega = \pm\omega_0 + i\gamma/2$, где

$$\omega_0 = \omega_{\text{TO}} \sqrt{(n_g^2 - \varepsilon_0)/(n_g^2 - \varepsilon_\infty) - \gamma^2/(4\omega_{\text{TO}}^2)}, \quad (1.23)$$

и затем, вычисляя вклады вычетов, получаем

$$E_y(z, t) = \frac{4\pi^{3/2} p_y (\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty) \omega_{\text{TO}}^2 \tau}{\omega_0 (n_g^2 - \varepsilon_\infty)^2} e^{-(\omega_0^2 - \gamma^2/4)t^2/4} e^{-\gamma\xi/2} \sin(\omega_0\xi - \gamma\omega_0\tau^2/4). \quad (1.24)$$

Уравнение (1.24) описывает квазимонохроматический волновой пакет, распространяющийся за лазерным импульсом с той же скоростью V и затухающий с декрементом $\gamma/(2V)$ по мере удаления от импульса. Согласно (1.24), оптимальная длительность лазерного импульса, максимизирующая амплитуду терагерцового поля, задается условием $\tau\sqrt{\omega_0^2 - \gamma^2/4} = \sqrt{2}$ или $\omega_0\tau \approx \sqrt{2}$ для малого затухания. Однако оптимальная длительность импульса актуальна только когда p_y не зависит от τ , т.е. при фиксированной оптической интенсивности. Для фиксированной энергии оптического импульса в (1.24) $p_y\tau = \text{const}$ и поэтому τ влияет на амплитуду терагерцового поля

только через гауссов множитель. Таким образом, укорочение оптического импульса увеличивает генерируемое терагерцовое поле. Этот рост, однако, насыщается при $\tau < \omega_0^{-1}$ (например, при $\tau < 60$ фс для $\omega_0 = 2.5$ ТГц). Поскольку длина терагерцового волнового пакета не зависит от τ , энергия терагерцового излучения аналогично зависит от τ только через гауссов множитель и насыщается при $\tau < \omega_0^{-1}$ (см. также [120]).

Интересно сравнить уравнение (1.18) с соответствующим выражением, следующим из приближения медленно меняющейся огибающей (slowly varying envelope approximation, SVEA), см., например, [120]:

$$E_y^{\text{SVEA}}(z, t) = 2\pi p_y \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \frac{\tilde{F}(\omega)}{\sqrt{\varepsilon_c(\omega)}(\sqrt{\varepsilon_c(\omega)} - n_g)} \left[e^{i\omega(t - \sqrt{\varepsilon_c(\omega)}z/c)} - e^{i\omega(t - z/V)} \right]. \quad (1.25)$$

В сверхсветовом режиме, пренебрегая дисперсией ($\sqrt{\varepsilon_c(\omega)} \rightarrow n_t$) в (1.25), получаем

$$E_y^{\text{SVEA}}(z, t) = \frac{2\pi p_y}{n_t(n_t - n_g)} \left[F\left(t - \frac{zn_t}{c}\right) - F\left(t - \frac{z}{V}\right) \right]. \quad (1.26)$$

Сравнивая (1.26) с более точным уравнением (1.19), можно заключить, что использование SVEA приводит к значительным ошибкам в амплитудах откликов свободной и вынужденной волн, если n_t и n_g существенно различаются (как, например, в LiNbO_3). Для близких значений n_t и n_g или в досветовом режиме, как было тщательно проверено для GaAs и ZnTe (см. пп. 1.4.2 и 1.5.1), формула (1.25) работает очень хорошо.

1.2.2. Случай сфокусированной накачки

Для произвольного поперечного размера лазерного пучка предельная форма генерированного терагерцового поля на больших z может быть найдена подстановкой отклика вынужденной волны (второго слагаемого) из уравнения (1.17) в (1.14). Во внутреннем интеграле по g в (1.14) следует замыкать контур интегрирования в нижней полуплоскости комплексной g -плоскости для $x > 0$ и в верхней полуплоскости для $x < 0$. Контур аналогичен использованному ранее в работах [123], [124], но без разрезом. Вклады вычетов в интеграл от полюсов, задаваемых уравнением $g^2 - (\omega/c)^2[\varepsilon_c(\omega) - n_g^2] = 0$, определяют черенковский конус (точнее, клин); вклады от полубесконечных прямых линий, наклоненных под углом 45° к осям (см. [123], [124]), дают ближнее поле движущегося источника. Таким образом, в отличие от предела плоского лазерного импульса, отклик вынужденной волны включает как ближнее поле, так и черенковский

клин. Учитывая только вклады вычетов и пренебрегая ближним полем, получаем (для простоты полагая $\gamma = 0$):

$$E_y(z, x, t) = \frac{8\pi^2 p_y}{c^2} \int_{\varepsilon_c(\omega) > n_g^2} d\omega \frac{\omega^2}{g} \tilde{F}(\omega) \tilde{G}(g) \sin(\omega\xi - g|x|), \quad (1.27)$$

где $g = (\omega/c)[\varepsilon_c(\omega) - n_g^2]^{1/2}$. Интегрирование в (1.27) проводится по интервалам положительных ω , где $\varepsilon_c(\omega) > n_g^2$. Для $\varepsilon_c(\omega)$, заданного уравнением (1.4) при $\gamma = 0$, интервалы следующие: $\omega_0 < \omega < \omega_{T0}$ в досветовом режиме ($n_g^2 > \varepsilon_0$), $0 < \omega < \omega_{T0}$ в сверхсветовом режиме с $\varepsilon_\infty < n_g^2 < \varepsilon_0$, $0 < \omega < \omega_{T0}$ и $\omega_0 < \omega < \infty$ в сверхсветовом режиме с $n_g^2 < \varepsilon_\infty$ (ω_0 задается уравнением (1.23) при $\gamma = 0$).

Интеграл (1.27) может быть асимптотически вычислен для больших ξ с использованием метода стационарной фазы:

$$E_y(z, x, t) \approx \frac{8\pi^2 p_y}{c^2} \sum_i \frac{\omega_i^2}{g_i} \sqrt{\frac{\pi}{|g_i'' x|}} \tilde{F}(\omega_i) \tilde{G}(g_i) \sin \left[\omega_i \xi - g_i |x| - \frac{\pi}{4} \text{sgn}(g_i'') \right], \quad (1.28)$$

где g_i'' обозначает вторую производную по ω , вычисленную в точке ω_i , а сумма берется по частотам ω_i , для которых выполняется уравнение

$$V \frac{dg}{d\omega} = \frac{V\xi}{|x|} = \text{ctg } \alpha. \quad (1.29)$$

Здесь α – половинный угол раствора клина с вершиной на движущемся лазерном импульсе $\xi = 0$ [125].

В досветовом режиме уравнение (1.29) имеет два корня $\omega_{1,2}$ для фиксированного конуса с углом $\alpha < \alpha_{\max}$ (Рисунок 1.3(a)). Максимальный угол α_{\max} на Рисунке 1.3(a) соответствует горизонтальной касательной к кривой $Vg'(\omega)$ ($g' = dg/d\omega$) в её минимуме при $\omega = \omega_*$. Суперпозиция двух гармонических колебаний с частотами ω_1 и ω_2 приводит к биениям в распределении поля вдоль конуса. Частота биений уменьшается с ростом α по мере сближения корней $\omega_{1,2}$ к ω_* . Используя (1.4), находим угол α_{\max} и частоту ω_* на конусе:

$$\text{ctg } \alpha_{\max} = \frac{4\omega_{T0}\omega_*(n_g^2 - \varepsilon_\infty)^{1/2}}{\sqrt{3}n_g(\omega_{T0}^2 - \omega_*^2)} \quad (1.30a)$$

$$\omega_* = \omega_{T0} \sqrt{\sqrt{1 + 3(n_g^2 - \varepsilon_0)/(n_g^2 - \varepsilon_\infty)} - 1} \quad (1.30б)$$

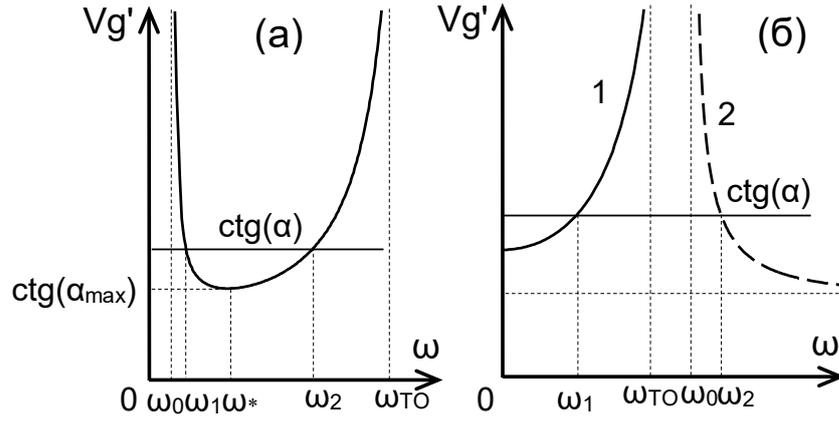


Рисунок 1.3. Графическое решение уравнения (1.29). В досветовом режиме (а) существуют два корня $\omega_{1,2}$ для $\alpha < \alpha_{\max}$; эти корни сливаются при ω_* для $\alpha = \alpha_{\max}$. В сверхсветовом режиме (б) имеется только один корень ω_1 , если $\varepsilon_{\infty} < n_g^2 < \varepsilon_0$ (кривая 1 начинается от $(\varepsilon_0/n_g^2 - 1)^{1/2}$ при $\omega = 0$). Второй корень ω_2 появляется из высокочастотной ветви дисперсионной кривой (кривая 2) при $n_g^2 < \varepsilon_{\infty}$ кривая 2 стремится к $(\varepsilon_{\infty}/n_g^2 - 1)^{1/2}$ при $\omega \rightarrow \infty$)

В сверхсветовом режиме при $\varepsilon_{\infty} < n_g^2 < \varepsilon_0$ уравнение (1.29) имеет только один корень ω_1 . В этом случае максимальный угол конуса соответствует нулевой частоте (Рисунок 1.3(б)) и равен

$$\operatorname{ctg} \alpha_{\max} = (\varepsilon_0/n_g^2 - 1)^{1/2}. \quad (1.31)$$

Если $n_g^2 < \varepsilon_{\infty}$, появляется корень ω_2 , связанный с верхней ветвью дисперсионной кривой. Максимальный угол конуса для поляритонов верхней ветви соответствует $\omega \rightarrow \infty$ и равен:

$$\operatorname{ctg} \alpha_{\max} = (\varepsilon_{\infty}/n_g^2 - 1)^{1/2}. \quad (1.32)$$

В сильно сверхсветовом режиме, когда $\varepsilon_c(\omega)$ значительно превышает n_g^2 и может быть аппроксимирована (при $\omega_{\text{ТО}}\tau_{\text{FWHM}} \gg 1$) как ε_0 , интеграл (1.27) может быть вычислен аналитически (см. также [60]):

$$E_y(z, x, t) = -\frac{2\pi^{3/2}p_y\tau\ell_{\perp}}{c\tau_{\text{eff}}(\varepsilon_0 - n_g^2)^{1/2}} \frac{d}{d\eta} F(\eta, \tau_{\text{eff}}), \quad (1.33)$$

где $F(\eta, \tau_{\text{eff}})$ - гауссова функция (1.2) с заменой ξ на $\eta = \xi - (|x|/c)(\varepsilon_0 - n_g^2)^{1/2}$ и τ на

$$\tau_{\text{eff}} = [\tau^2 + \ell_{\perp}^2(\varepsilon_0 - n_g^2)/c^2]^{1/2}. \quad (1.34)$$

Согласно (1.33), распределение поля на черенковском клине (см. (1.31)) определяется производной от огибающей интенсивности лазерного импульса с отрицательным знаком, то есть состоит из двух соседних терагерцовых импульсов противоположной полярности. Интересно, что эффективное характерное время τ_{eff} гауссовой функции $F(\eta, \tau_{\text{eff}})$ и, следовательно, длительность терагерцовых импульсов на черенковском конусе (толщина конуса), зависят как от длительности τ , так и от поперечного размера ℓ_{\perp} оптического импульса. Для $\ell_{\perp} \gg c\tau(\epsilon_0 - n_g^2)^{-1/2}$ величина τ_{eff} определяется в основном ℓ_{\perp} : распределение терагерцового поля по конусу становится более плавным с увеличением ℓ_{\perp} . Для $\ell_{\perp} \ll c\tau(\epsilon_0 - n_g^2)^{-1/2}$ величина τ_{eff} практически не зависит от степени фокусировки и определяется в основном τ . Согласно (1.33), максимальное значение терагерцового поля на черенковском конусе равно

$$|E_y|_{\text{max}} = \frac{(2\pi)^{3/2} p_y \tau \ell_{\perp}}{c\tau_{\text{eff}}^2 (\epsilon_0 - n_g^2)^{1/2}} e^{-1/2} \quad (1.35)$$

при $\eta = \pm\tau_{\text{eff}}/\sqrt{2}$. Для фиксированной энергии оптического импульса в (1.34) $p_y \ell_{\perp} \tau = \text{const}$ и $|E_y|_{\text{max}} \propto \tau_{\text{eff}}^{-2}$. Таким образом, при заданном τ уменьшение ℓ_{\perp} увеличивает $|E_y|_{\text{max}}$, однако

при $\ell_{\perp} < c\tau(\epsilon_0 - n_g^2)^{-1/2}$ дальнейшая фокусировка мало влияет на амплитуду поля. При заданном ℓ_{\perp} уменьшение τ увеличивает $|E_y|_{\text{max}}$ до тех пор, пока $\tau < \ell_{\perp}(\epsilon_0 - n_g^2)^{1/2}/c$. Если фиксировать оптическую интенсивность ($p_y = \text{const}$) и ℓ_{\perp} в (1.34), то $|E_y|_{\text{max}} \propto \tau/\tau_{\text{eff}}^2$ и появляется оптимальная длительность импульса $\tau_{\text{opt}} = \ell_{\perp}(\epsilon_0 - n_g^2)^{1/2}/c$ которая максимизирует $|E_y|_{\text{max}}$ до величины $(2/e)^{1/2} \pi^{3/2} p_y / (\epsilon_0 - n_g^2)$. Генерируемый терагерцовый спектр $\propto p_y \ell_{\perp} \tau \omega \exp(-\omega^2 \tau_{\text{eff}}^2/4)$ (см. (1.27)) имеет максимум $\propto \tau_{\text{eff}}^{-1}$ при $\omega \tau_{\text{eff}} = \sqrt{2}$, положение и величина которого зависят от параметров τ и ℓ_{\perp} лазерного импульса.

Слабое поглощение, описываемое уравнением (1.4) при $\gamma \ll \omega_{\text{TO}}$, может быть учтено в (1.33) с помощью замены

$$\tau_{\text{eff}} \rightarrow \left[\tau_{\text{eff}}^2 + \frac{2\gamma(\epsilon_0 - \epsilon_{\infty})|x|}{\omega_{\text{TO}}^2 c(\epsilon_0 - n_g^2)^{1/2}} \right]^{1/2}. \quad (1.36)$$

Согласно (1.33) и (1.36), поглощение приводит к постепенному затуханию терагерцового поля на черенковском клине и расширению распределения поля по конусу с увеличением расстояния $|x|$. В результате черенковский клин приобретает конечные размеры с полушириной

$$|x|_{max} \sim \frac{\omega_{TO}^2 \tau_{eff}^2 c (\varepsilon_0 - n_g^2)^{1/2}}{2\gamma(\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty)} \quad (1.37)$$

и длиной $\Delta z = |x|_{max} \operatorname{ctg} \alpha_{max}$.

Полученные аналитические выражения в данном и предыдущем параграфах будут использованы для анализа численных расчетов генерации терагерцового излучения в конкретных кристаллах (см. пп. 1.4 и 1.5).

1.3. Формулы Френеля для вынужденного электромагнитного поля

Согласно развитому в п. 1.2 подходу, при рассмотрении полубесконечного кристалла полное генерируемое поле можно представить в виде суперпозиции вынужденного и свободного электромагнитного полей. Вынужденное поле связано с нелинейным источником, когда как свободное поле обусловлено переходными процессами на входной границе электрооптического кристалла и распространяется независимо от нелинейного источника. При падении генерируемого излучения на выходную границу нелинейной среды, свободные поля высвечиваются в вакуум в соответствии с формулами Френеля, однако для вынужденного поля формулы Френеля не работают. В данном параграфе, чтобы показать особенности преобразования вынужденных полей при прохождении границы среды, рассмотрим одномерный случай генерации и высвечивания терагерцового импульса при оптическом выпрямлении лазерного импульса в слое кристалла (см. Рисунок 1.4). В отличие от рассмотренной ранее ситуации в п. 1.2.1, будем учитывать, то пластина окружена с обеих сторон не вакуумом, а линейным материалом с действительным показателем преломления в терагерцовом диапазоне n_0 . Будем пренебрегать дисперсией и поглощением в терагерцовом диапазоне частот, считая показатель преломления нелинейной пластины в терагерцовом диапазоне равной n_t .

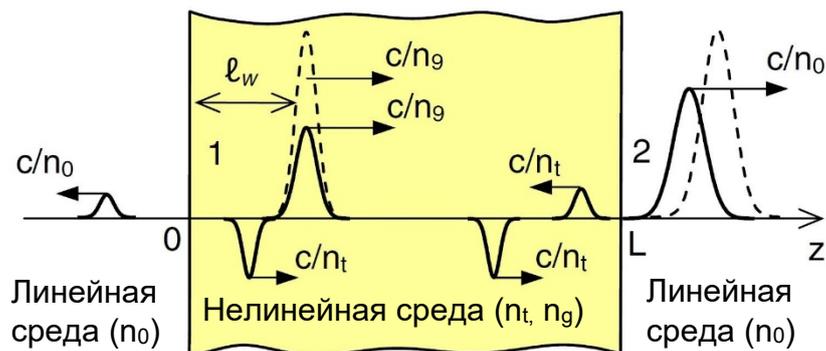


Рисунок 1.4. Генерация терагерцовых импульсов (сплошные линии) оптическим импульсом (пунктирные линии), распространяющимся через пластину электрооптического материала. Моментальные снимки 1 и 2 относятся к моментам, когда оптический импульс находится внутри пластины и после прохождения пластины, соответственно.

Воспользуемся уравнением (1.6) и запишем его решение (аналогично п. 1.2) в полубесконечном кристалле используя граничные условия непрерывности компонент полей \tilde{E}_y и $\tilde{B}_x = (ic/\omega) \partial \tilde{E}_y / \partial z$. Это дает следующее решение:

$$\tilde{E}_y = \tilde{F} \begin{cases} C_1 e^{i\omega z n_0/c}, & z < 0, \\ C_2 e^{-i\omega z n_t/c} - A e^{-i\omega z n_g/c}, & z > 0, \end{cases} \quad (1.38)$$

где $A = 4\pi p_y / (n_t^2 - n_g^2)$, $C_1 = -A(n_t - n_g)/(n_t + n_0)$, $C_2 = A(n_g + n_0)/(n_t + n_0)$.

Преобразуя (1.38) во временную область, получаем для $z < 0$

$$E_y(z, t) = -\frac{n_t - n_g}{n_t + n_0} AF \left(t + \frac{zn_0}{c} \right) \quad (1.39)$$

и для $z > 0$

$$E_y(z, t) = A \left[\frac{n_g + n_0}{n_t + n_0} F \left(t - \frac{zn_t}{c} \right) - F \left(t - \frac{zn_g}{c} \right) \right]. \quad (1.40)$$

Уравнение (1.39) предсказывает формирование обратно распространяющегося терагерцового импульса в линейном материале ($z < 0$) после входа оптического импульса в пластину (Рисунок 1.4, моментальный снимок 1). Уравнение (1.40) является обобщением (1.19) на случай наличия окружающей линейной среды с произвольной n_0 и описывает генерацию свободного и вынужденного (ближнего) полей, соответствующих первому и второму слагаемому в (1.40), соответственно. Эти процессы показаны на Рисунке 1.4 (моментальный снимок 1).

Свободный импульс может распространяться быстрее или медленнее вынужденного, в зависимости от конкретных значений n_t и n_g . Далее сосредоточимся на сверхсветовом случае, когда $n_t > n_g$, что типично для электрооптических кристаллов. В сильно сверхсветовом случае ($n_g \ll n_t$) вынужденный импульс, согласно (1.40), значительно превосходит свободный по амплитуде, поэтому конечное суммарное терагерцовое поле появляется сразу после входа оптического импульса в кристалл. Из-за большой разницы скоростей получаем длину разбегания $L_w \approx c\tau_{FWHM}/n_t \ll c\tau_{FWHM}/n_g$, т.е. импульсы разделяются на малом расстоянии (меньшем длины лазерного импульса) и далее распространяются независимо. Например, для LiNbO_3 при возбуждении импульсами титан-сапфирового лазера (длина волны ~ 800 нм) с $\tau_{FWHM} = 150$ фс, $n_g = 2,23$, $n_t = 5,1$, получаем $L_w \approx 16$ мкм. Таким образом, для типичных пластин с $L > 100$ мкм вынужденный и свободный импульсы достигают выходной границы отдельно и взаимодействуют с ней независимо (Рисунок 1.4, мгновенный снимок 2).

Уравнение (1.40) также позволяет вычислить зависящую от времени терагерцовую энергию в нелинейном слое:

$$W_s = \frac{A^2 c t a_\tau}{8(2\pi)^{1/2}} \left[\frac{n_t^2 + n_g^2}{2n_g} + n_t \left(\frac{n_g + n_0}{n_t + n_0} \right)^2 - \frac{2\sigma b_\tau n_t (n_g + n_0)}{a_\tau (n_t + n_0)} \exp\left(-\frac{t^2 c^2}{L_w^2} \frac{4 \ln 2}{n_t^2 + n_g^2}\right) \right], \quad (1.41)$$

где $a_\tau = 1 + \text{erf}(\sqrt{2}t/\tau)$, $\sigma = (n_t + n_g)/\sqrt{2(n_t^2 + n_g^2)}$, $b_\tau = 1 + \text{erf}(\sqrt{2}\sigma t/\tau)$. При $tc \gg L_w$ первое слагаемое в (1.41) даёт энергию W_A вынужденного импульса, второе слагаемое - энергию W_B свободного импульса, третье (интерференционное) слагаемое обращается в ноль.

Теперь рассмотрим падение терагерцового поля (1.40) на границу $z = L$. Записывая граничные условия, и используя тот же метод преобразования Фурье, получаем обратно распространяющееся (отраженное) терагерцовое поле в пластине ($z < L$):

$$E_y^{(r)}(z, t) = AR_F \frac{n_g + n_0}{n_t + n_0} F\left(t - \frac{Ln_t}{c} + \frac{(z-L)n_t}{c}\right) - AR_N F\left(t - \frac{Ln_g}{c} + \frac{(z-L)n_t}{c}\right), \quad (1.42)$$

и вперед распространяющееся (прошедшее) терагерцовое поле в линейном материале ($z > L$):

$$E_y^{(t)}(z, t) = AT_F \frac{n_g + n_0}{n_t + n_0} F\left(t - \frac{Ln_t}{c} - \frac{(z-L)n_0}{c}\right) - AT_N F\left(t - \frac{Ln_g}{c} - \frac{(z-L)n_0}{c}\right). \quad (1.43)$$

В уравнениях (1.42), (1.43) введены обычные коэффициенты Френеля для отражения и прохождения:

$$R_F = \frac{n_t - n_0}{n_t + n_0}, \quad T_F = \frac{2n_t}{n_t + n_0} \quad (1.44)$$

и новые коэффициенты отражения и прохождения R_N и T_N , соответственно:

$$R_N = \frac{n_g - n_0}{n_t + n_0}, \quad T_N = \frac{n_t + n_g}{n_t + n_0}. \quad (1.45)$$

Уравнения (1.44) и (1.45) показывают, что свободные импульсы, формирующиеся в линейной среде после прохождения свободного импульса выходной границы нелинейного слоя, связаны с его амплитудой обычными формулами Френеля R_F и T_F . Однако свободные импульсы, формирующиеся после падения вынужденного импульса на выходную границу, связаны с его амплитудой новыми формулами Френеля R_N и T_N .

Генерацию свободных импульсов вынужденным импульсом можно также рассматривать как переходное излучение движущегося источника внешней поляризации, который внезапно исчезает, как предложено в работах [126], [127]. Это следует из общей концепции переходного излучения [128]. Использование формул (1.45) предлагает альтернативный взгляд на данную проблему и, подобно обычным формулам Френеля, позволяет рассчитывать коэффициенты отражения и прохождения на основе решений уравнений Максвелла.

Для дальнейшего исследования аналогии между свободными и вынужденными импульсами рассмотрим коэффициенты преобразования энергии. Интегрируя вектор Пойнтинга $S_z = (c/4\pi)E_x B_y$ для отражённых и прошедших терагерцовых импульсов по бесконечному временному интервалу, получаем коэффициенты отражения и прохождения энергии для вынужденного импульса:

$$\frac{W_r}{W_A} = R_N^2 \frac{2n_t n_g}{n_t^2 + n_g^2}, \quad \frac{W_t}{W_A} = T_N^2 \frac{2n_0 n_g}{n_t^2 + n_g^2}. \quad (1.46)$$

Относительное изменение полной терагерцовой энергии определяется как

$$\frac{\Delta W}{W_A} = \frac{W_r + W_t - W_A}{W_A} = \frac{-(n_t - n_g)^2}{(n_t^2 + n_g^2)(n_t + n_0)} \left[n_0 + \frac{2n_g^2 + n_g n_t + n_t^2}{n_t - n_g} \right]. \quad (1.47)$$

В зависимости от соотношения между n_t , n_0 и n_g , изменение энергии ΔW может быть как положительным, так и отрицательным.

Несохранение энергии можно объяснить, вычислив работу W_{NL} движущегося нелинейного источника над падающим и отражённым терагерцовыми импульсами:

$$W_{NL} = - \int_{-\infty}^{\infty} dt \int_{-\infty}^L dz j_y^{NL}(E_y^{(i)} + E_y^{(r)}), \quad (1.48)$$

где $j_y^{NL} = p_y F'(\xi)$, а $E_y^{(i)}$ и $E_y^{(r)}$ задаются вторыми слагаемыми в уравнениях (1.40) и (1.42) соответственно. Вычисление (1.48) даёт $W_{NL} = \Delta W$.

На Рисунке 1.5(a) показаны зависимости этих энергий от показателя преломления n_0 . Прошедшая энергия максимальна при $n_0 = n_t$: $W_t^{\max}/W_A < 1$ при $n_g < n_t$, $W_t^{\max}/W_A > 1$ при $n_g > n_t$. Для LiNbO_3 $W_t^{\max}/W_A = 0,38$. Минимум отражения $W_r = 0$ достигается при $n_0 = n_g$. Отрицательное ΔW означает частичное поглощение энергии нелинейной поляризацией через работу (1.48). Результаты для вынужденных импульсов (Рисунок 1.5(a)) существенно отличаются от результатов для свободных импульсов, описываемых обычными уравнениями Френеля (Рисунок 1.5(б)). Для свободных импульсов максимум прохождения равен 1 и достигается при нулевом отражении.

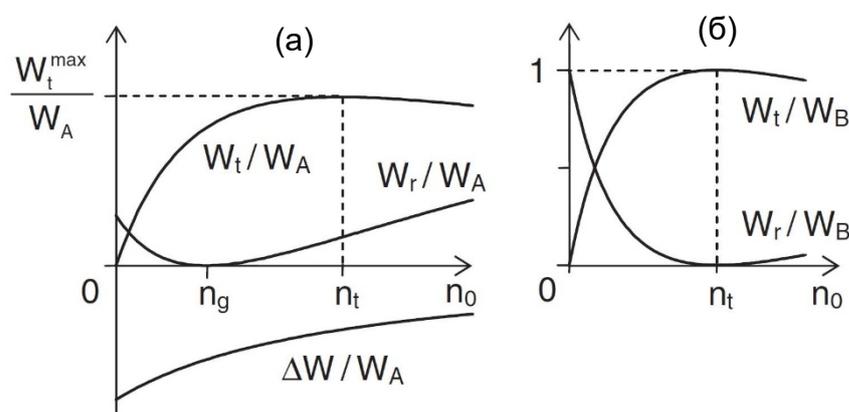


Рисунок 1.5. (а) Энергии прошедших (W_t/W_A) и отраженных (W_r/W_A) свободных импульсов, образованных при падении вынужденного импульса на границу нелинейного слоя, а также полное изменение энергии $\Delta W/W_A$ как функции n_0 . Кривые построены для случая $n_t > n_g$. (б) То же, что и (а), но для падающего свободного импульса. Изменение энергии равно нулю.

Рассматривая LiNbO_3 в вакууме ($n_0 = 1$), отношение амплитуд свободного и вынужденного импульсов в кристалле равно 0.53(см. выражение (1.40)). Коэффициенты пропускания и отражения $T_F = 1,67$, $R_F = 0,67$, $T_N = 1,20$, $R_N = 0,20$, полученные с использованием уравнений (1.44), (1.45), как видно, зависят достаточно значительно от того, является ли импульс свободным или вынужденным. В вакууме, при $z > L$, отношение амплитуд импульса, созданного вынужденным импульсом, к импульсу, созданному свободным импульсом, составляет $1,20/(1,67 \cdot 0,53) \approx 1,36$. Более того, поглощение в кристалле ослабляет свободный импульс: его амплитуда уменьшается примерно в два раза в пластине толщиной 1 мм, согласно рис. 2 в работе [127]. Это изменяет отношение до $1,36 \cdot 2 \approx 2,7$, что близко к экспериментальному значению $\sim 2,5$, согласно работе [127].

В слабо сверхсветовом случае GaAs, возбуждаемого импульсами волоконного лазера (на длине волны $\sim 1,5 - 2$ мкм), имеем $n_g = 3,55$, $n_t = 3,59$, $L_w \approx 1,1$ мм. Для пластин с $L \leq L_w$, обычно используемых в экспериментах, нет достаточного расстояния для разделения вынужденного и свободного импульсов, и полное терагерцовое поле, достигающее границы $z = L$, имеет форму (1.21). Поскольку $n_g \approx n_t$, имеем $R_N \approx R_F$ и $T_N \approx T_F$. Таким образом, отражение и прохождение полного терагерцового поля при $z = L$ подчиняются обычному закону Френеля без изменения энергии. Присутствие терагерцовой дисперсии существенно не изменяет полученных результатов. Дисперсия влияет только на свободный импульс во время его распространения в пластине и только когда $n_t \approx n_g$.

Развитый подход по расчету отражения и прохождения через границу вынужденных импульсов, может быть легко адаптирован и для наклонного падения. Здесь можно предсказать интересную особенность наклонного падения: полное исчезновение вынужденного импульса на границе. Рассмотрим вынужденный импульс, падающий под углом ϑ_i из нелинейной среды ($z < L$) в линейную ($z > L$). Используя равенство тангенциальных компонент фурье-образов волновых векторов отраженного и прошедшего полей, получаем законы отражения и преломления (ϑ_r и ϑ_t – углы, под которыми распространяются отраженный и прошедший свободные импульсы соответственно): $n_g \sin \vartheta_i = n_t \sin \vartheta_r = n_0 \sin \vartheta_t$, которые обобщают классический закон зеркального отражения и закон Снеллиуса, установленные для свободных импульсов.

Если $n_0 < n_g$ и вынужденный импульс падает под углом $\vartheta_i > \arcsin(n_0/n_g)$, то не будет распространяющейся прошедшей волны – эффект, аналогичный полному внутреннему отражению для падающих свободных импульсов. Удивительно, но не будет и отраженного распространяющегося импульса, если одновременно $n_t < n_g$ и $\vartheta_i > \arcsin(n_t/n_g)$. Таким образом, падающий вынужденный импульс полностью исчезает после достижения границы (в пренебрежении отражения оптической накачки). Его энергия поглощается работой нелинейной поляризации. Условие $n_t < n_g$ выполняется, например, в GaP при возбуждении титан-сапфировым лазером [118]. Это исчезновение не зависит от поляризации импульса, так как следует из кинематических соотношений.

1.4. Сверхсветовой режим генерации

В данном параграфе приведены численные расчеты генерации терагерцового излучения в материалах, где групповая скорость лазерного импульса превышает максимальную фазовую скорость терагерцового излучения (для низкочастотной ветки фонон-поляритонов). Рассматриваются сильно-сверхсветовой режим генерации в кристалле LiNbO₃ импульсами титан-сапфирового лазера (на длине волны около 800 нм) и слабо-сверхсветовой режим генерации в кристалле GaAs импульсами волоконного лазера (на длине волны 1560 нм). В первом случае скорость лазерного импульса примерно в 2 раза больше скорости низкочастотных терагерцовых волн, тогда как во втором случае эти скорости почти равны. В расчетах дисперсия диэлектрической проницаемости для обоих кристаллов в терагерцовой области предполагается с одним резонансом (см. формулу (1.4)). В основном рассматривается случай генерации *s*-поляризованного излучения. В некоторых случаях также рассматривается и генерации *p*-поляризованного излучения с $p_x \neq 0$, $p_z = 0$. Согласно анализу, компонента p_z нелинейной поляризации генерирует терагерцовое излучение менее эффективно по сравнению с p_x и, кроме того, создает неудобное для практического применения угловое распределение терагерцового излучения с нулевой интенсивностью в направлении оси *z*.

1.4.1. Сильно сверхсветовой режим генерации в кристалле LiNbO₃ при накачке на длине волны 800 нм

Вначале исследуем генерацию терагерцового излучения в сверхсветовом режиме на примере оптического выпрямления импульсов титан-сапфирового лазера в кристалле

LiNbO₃. Будем считать, что оптическая ось кристалла направлена вдоль оси y (см. Рисунок 1.1), а лазерный импульс поляризован вдоль оптической оси. Такая геометрия максимизирует величину нелинейной поляризации и типично используется в экспериментах. Тогда $p_y = d_{33}E_0^2$, $p_x = p_z = 0$ (где d_{33} – компонента нелинейный тензора LiNbO₃, а E_0 – амплитуда оптического поля в кристалле), а значит генерируются только s -поляризованные терагерцовые волны. Для LiNbO₃ в формуле для диэлектрической проницаемости (1.4) положим $\omega_{T0}/(2\pi) = 7,44$ ТГц, $\epsilon_0 = 26$, $\epsilon_\infty = 10$ и $\gamma/(2\pi) = 0,844$ ТГц [129], групповой показатель преломления и нелинейный коэффициент равны $n_g = 2,23$ и $d_{33} = 166$ пм/В, соответственно [40]. Поскольку $n_g^2 \ll \epsilon_0$, то LiNbO₃ можно классифицировать как сильно сверхсветовой материал.

Рисунок 1.6 показывает пространственное распределение электрического поля E_y , рассчитанное на основе точных уравнений (1.10), (1.11) и (1.14) для нескольких последовательных моментов времени и двух значений ширины пучка $\ell_\perp = 300$ мкм и 30 мкм. Длительность лазерного импульса выбрана $\tau_{FWHM} = 150$ фс ($\tau = 90$ фс), что типично для экспериментов. Энергия оптического импульса (на единицу длины в направлении оси y) фиксирована на уровне 5 мкДж/см, что соответствует пиковой интенсивности лазера $I_0 = (cn_{opt}/8\pi)E_0^2$ 1 ГВт/см² и 10 ГВт/см² для Рисунков 1.6(а) и 1.6(б), соответственно ($n_{opt} = 2,16$ – оптический показатель преломления LiNbO₃ на длине волны 800 нм).

В случае слабой фокусировки (Рисунок 1.6(а)) картина излучения внутри и вблизи кристалла практически одномерна, слабые признаки черенковского клина едва различимы. При входе в кристалл лазерный импульс создает отраженное переходное излучение (момент 1). Внутри кристалла картина эволюционирует в соответствии с приближенным уравнением (1.19) (моменты времени 1 и 2 на Рисунке 1.6(а), а также на Рисунке 1.7(а)). Два импульса (свободный и вынужденный отклики) имеют одинаковую длительность, их амплитуды отличаются в два раза и имеют противоположные знаки. Они распространяются с разными скоростями, так что свободный волновой отклик отстает. Импульсы разделяются на длине разбегания в пространстве $L_w^{space} \approx 26$ мкм. После этого импульс вынужденной волны практически не изменяется. Дисперсия и поглощение, учтенные на Рисунке 1.6(а), но не учитываемые в уравнении (1.19), приводят к постепенному расплыванию и затуханию импульса свободной волны, что видно при

сравнении моментов 2 и 3. В момент 3 также видны импульсы, отраженные от выходной поверхности кристалла и прошедшие через нее. Для излучения, прошедшего в свободное пространство, можно наблюдать формирование дальней зоны, которая может быть связана с ближней зоной через временную производную [62].

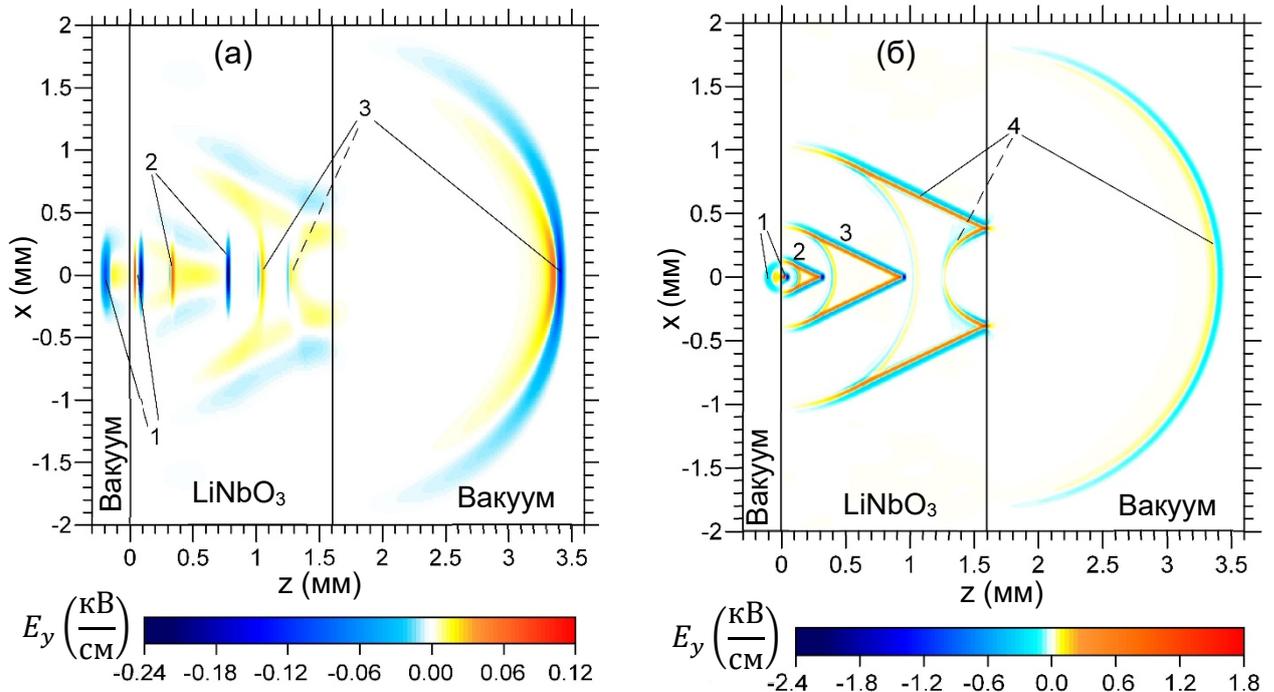


Рисунок 1.6. Моментальные снимки терагерцового поля $E_y(z, x, t)$, генерируемого в LiNbO_3 импульсом титан-сапфирового лазера, для последовательных моментов времени (пронумерованных по порядку) при $\tau_{\text{FWHM}} = 150$ фс, (а) $\ell_{\perp} = 300$ мкм, $I_0 = 1$ ГВт/см² и (б) $\ell_{\perp} = 30$ мкм, $I_0 = 10$ ГВт/см². Пунктирные указатели показывают терагерцовые поля, отраженные от выходной поверхности кристалла.

Для более детального изучения эффектов дисперсии и поглощения сравним моментальные снимки $E_y(z, t)$, используя точное решение (1.18) и приближенное решение (1.19) в одномерном случае (см. Рисунок 1.7(a)). Совпадение очень хорошее для вынужденного (отрицательного) импульса, хотя приближенное уравнение (1.19) завышает амплитуду импульса примерно на 10%. Для свободного волнового отклика (положительный импульс) совпадение удовлетворительное при $z \sim 0,1$ мм, но для больших z дисперсия и поглощение становятся значительными. Расчеты показывают, что для более длинных оптических импульсов накачки эффект дисперсии проявляется на больших z . Дополнительно, Рисунок 1.7(a) демонстрирует рост амплитуды

положительного импульса в начале процесса генерации из-за разделения вынужденного и свободного волновых откликов в пределах длины разбегания (переход от момента 1 к моменту 2).

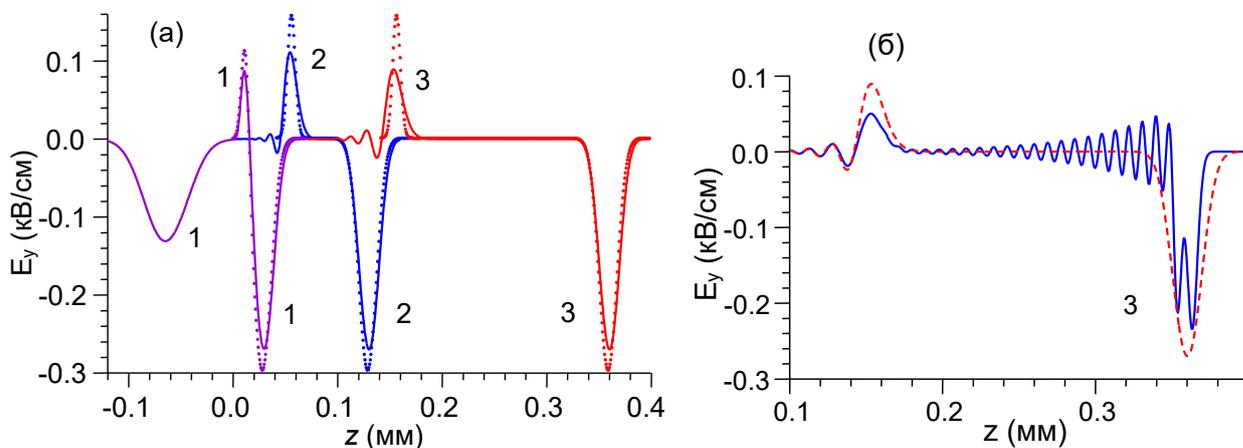


Рисунок 1.7. Моментальные снимки $E_y(z, t)$ в LiNbO_3 в различные моменты времени (1-3). Сплошные линии рассчитаны на основании точного уравнения (1.18), пунктирные линии – на основе приближенного уравнения (1.19) при $\tau_{\text{FWHM}} = 150$ фс. На рисунке (б) для момента времени 3 показано возбуждение высокочастотной ветки фонов-поляритонов при уменьшении длительности лазерного импульса с $\tau_{\text{FWHM}} = 150$ фс (пунктирная линия) до $\tau_{\text{FWHM}} = 75$ фс (сплошная линия). Пиковая интенсивность лазера фиксирована и составляет $I_0 = 1$ ГВт/см².

Рисунок 1.7(б), построенный на основе точного уравнения (1.18), демонстрирует возбуждение высокочастотной ветви фонов-поляритонов за счет коллинеарного синхронизма. Для такого возбуждения необходимы лазерные импульсы короче 100 фс. Математически, гауссов множитель $\tilde{F}(\omega)$ с $\tau_{\text{FWHM}} > 100$ фс сводит к нулю подынтегральное выражение в (1.18) на частотах выше $\omega_{\text{LO}}/(2\pi) \approx 12$ ТГц. Более короткие лазерные импульсы ($\tau_{\text{FWHM}} = 75$ фс) могут возбуждать фонов-поляритоны верхней ветви значительно эффективнее, что отчетливо наблюдается на Рисунке 1.7(б) и виде высокочастотных осцилляций, наложенных на двух-импульсную структуру, образованную фонов-поляритонами нижней ветви. Генерация таких высокочастотных терагерцовых волн наблюдалось в нескольких экспериментальных работах (см., например [130]). Интересно, что поглощение для фонов-поляритонов верхней ветви

уменьшается с увеличением частоты. Следовательно, высокочастотные фонон-поляритоны должны достигать больших амплитуд при коллинеарном синхронизме.

В случае сильной фокусировки (Рисунок 1.6(б)) картина излучения (см. моменты времени 1-3), состоит из черенковского клина с вершиной на движущемся лазерном импульсе и цилиндрической волны, распространяющейся от границы воздух-кристалл $z = 0$ в направлении $+z$ (также присутствует слабое переходное излучение в воздухе, распространяющееся в противоположном направлении, см. момент времени 1). Эти две части картины излучения могут быть отнесены, соответственно, к вынужденному и свободному волновым откликам в уравнении (1.17). Свободный волновой отклик состоит из цилиндрической и конической частей (Рисунок 1.8(а)), причем коническая часть полностью компенсирует бесконечный черенковский конус вынужденного волнового отклика (Рисунок 1.8(б)) позади точек, где конус соприкасается с цилиндрической волной (области A и B на Рисунке 1.8). Как результат, суммарное генерируемое поле вблизи входной границы кристалла почти отсутствует (см. момент времени 3 на Рисунок 1.6(б)). Из-за разницы между оптическим и терагерцовым групповыми показателями преломления, черенковский конус движется быстрее цилиндрической волны в направлении $+z$, тогда как в направлениях, перпендикулярных лучам конуса, они движутся синхронно и соприкасаются в каждый момент времени. Электрическое поле на конусе изменяется в направлении, нормальном к конусу, как первая производная огибающей лазерного импульса, то есть состоит из двух всплесков противоположной полярности (см. уравнению (1.33)). Длительность черенковского импульса задается τ_{eff} (см. выражение (1.34)), при этом для выбранных параметров имеем $\tau \ll \ell_{\perp} (\epsilon_0 - n_g^2)^{1/2} / c$ (для LiNbO_3 это неравенство можно свести к соотношению $\tau[\text{фс}] \ll 15\ell_{\perp}[\text{мкм}]$), в значит временная форма черенковского импульса определяется ℓ_{\perp} . Половинный угол раскрытия черенковского конуса α_{max} составляет около 26° , что согласуется с уравнением (1.31). Черенковский угол $\theta_{\text{ch}} = \pi/2 - \alpha_{\text{max}} \approx 64^\circ$ значительно превышает критический угол полного внутреннего отражения $\theta_{\text{tot}} \approx 11.3^\circ$ на границе кристалл-воздух. Следовательно, черенковский конус испытывает полное внутреннее отражение на выходной границе кристалла (см. момент времени 4 на Рисунке 1.6(б)). Это согласуется с предсказаниями работы [131]. Цилиндрическая волна, видимая в воздухе при $z > L$, представляет собой переходное излучение, распространяющееся из точки, где лазерный импульс пересекает границу $z = L$.

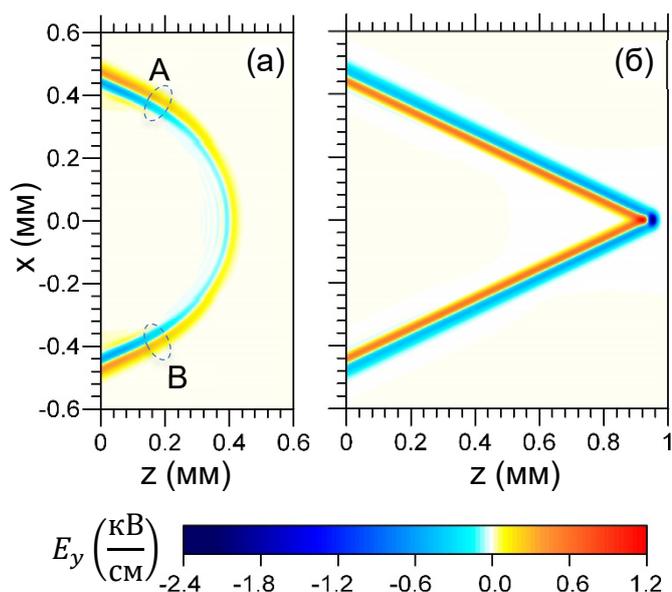


Рисунок 1.8. Свободный (а) и вынужденный (б) волновые отклики в LiNbO_3 для тех же параметров, что и на Рисунке 1.6 (момент времени 3). Области *A* и *B* показывают места соприкосновения свободного и вынужденного откликов.

Рисунок 1.6(б) подтверждает вывод, сделанный в работе [41], о том, что генерируемая терагерцовая энергия увеличивается с расстоянием, пройденным лазерным импульсом в кристалле, за счет увеличения размера черенковского конуса. Однако максимальный размер конуса ограничен уравнением (1.37) из-за поглощения в терагерцовом диапазоне. Для $\tau_{FWHM} = 150$ фс и $\ell_{\perp} = 30$ мкм размер черенковского конуса в LiNbO_3 можно оценить $\Delta z \sim 4$ мм. Сравнивая эффективности преобразования оптического излучения в терагерцовое в случаях слабой (Рисунок 1.6(а)) и сильной (Рисунок 1.6(б)) фокусировках, можно видеть, что сильная фокусировка позволяет генерировать значительно более сильные терагерцовые поля внутри кристалла. Однако для извлечения черенковского излучения из кристалла требуется принятие специальных мер (см. главу 3, а также работы [40], [41], [52]).

1.4.2. Слабо сверхсветовой режим генерации в кристалле GaAs при накачке на длине волны 1560 нм

В случае GaAs, возбуждаемого импульсами волоконного лазера на длине волны 1560 нм, по-прежнему реализуется сверхсветовой режим, но не столь выраженный, как в LiNbO_3 . Действительно, в GaAs групповой показатель преломления на данной длине

волны $n_g = 3,55$ лишь незначительно отличается от $\sqrt{\varepsilon_0} = 3,59$, где $\varepsilon_0 = 12,9$ [132]. Таким образом, этот случай можно классифицировать как слабо сверхсветовой режим.

Рассмотрим кристалл GaAs с ориентацией (110), где кристаллографическая ось [001] ориентирована под углом $\approx 55^\circ$ относительно электрического поля линейно поляризованной лазерной накачки. В этой конфигурации (оптимальной для всех кристаллов с кристаллической структурой типа цинковой обманки), нелинейная поляризация, индуцированная в кристалле за счет оптического выпрямления, максимальна и сонаправлена с электрическим полем лазерного импульса. Максимальная амплитуда нелинейной поляризации составляет $p = \sqrt{4/3}d_{14}E_0^2$ [133], где $d_{14} = 65,6$ пм/В – компонента тензора нелинейного коэффициента [40]. Далее будем в основном рассматривать случай s -поляризации, когда $p = p_y$, хотя некоторые характеристики терагерцового излучения также будут приведены и для p -поляризации, когда $p = p_x$. Для GaAs, в выражении для диэлектрической проницаемости (1.4) имеем: $\omega_{\text{TO}}/(2\pi) = 8,1$ ТГц, $\varepsilon_\infty = 11$ и $\gamma/(2\pi) = 0,07$ ТГц [28].

Рисунок 1.9 показывает пространственное распределение электрического поля E_y , для нескольких последовательных моментов времени и двух значений поперечного размера лазерного пучка: $\ell_\perp = 300$ мкм и 30 мкм. Как и ранее, энергия оптического импульса фиксирована (но теперь на уровне 50 нДж/см), поэтому пиковая интенсивность лазера I_0 отличается. Рисунках 1.9(а) и 1.9(б) составляет 10 МВт/см² и 100 МВт/см², соответственно. Длительность лазерного импульса по-прежнему равна $\tau_{\text{FWHM}} = 150$ фс.

В случае слабой фокусировки (Рисунке 1.9(а)) генерируемое терагерцовое поле эволюционирует внутри кристалла в соответствии со сценарием, описанным в п. 1.2.1 для слабо сверхсветового режима (моменты 1-4 на Рисунке 1.9(а)): свободный и вынужденный волновые отклики практически компенсируют друг друга вблизи входной поверхности $z = 0$, затем полное терагерцовое поле в целом ведет себя согласно уравнению (1.21), то есть следует производной огибающей оптической интенсивности и растет с увеличением z . Множественные осцилляции в форме сигнала (моменты 3 и 4) возникают из-за дисперсионного искажения свободного волнового отклика (см. далее рисунок 1.10).

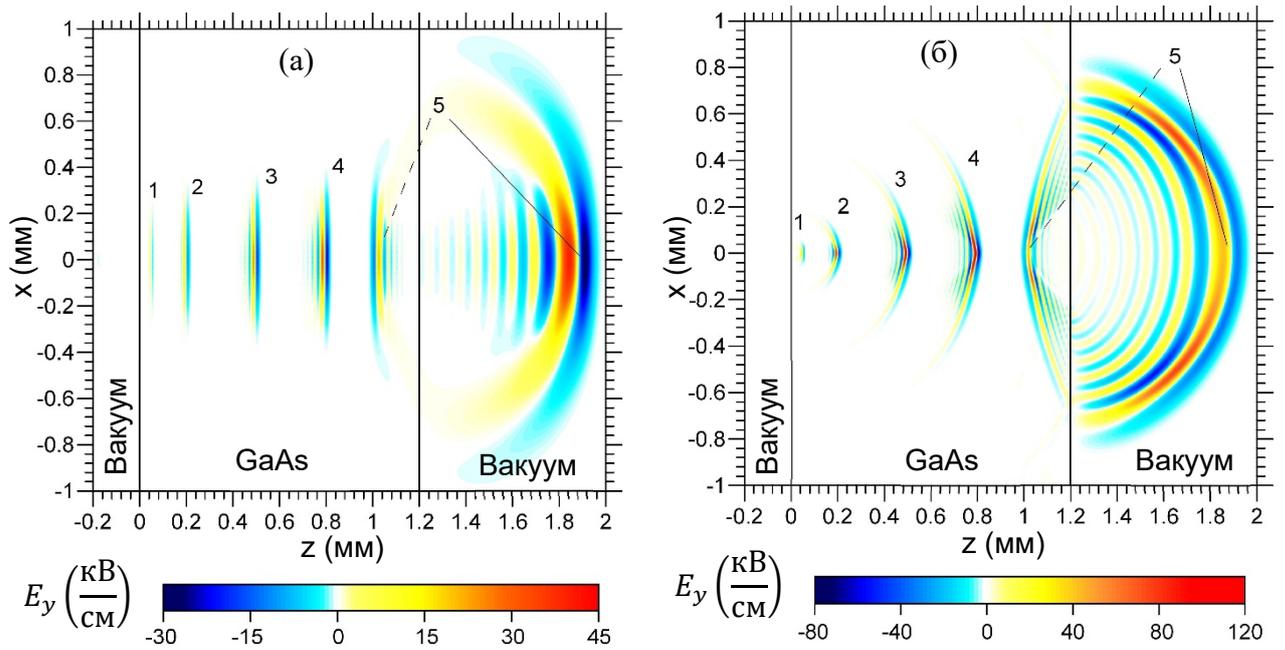


Рисунок 1.9. Моментальные снимки терагерцового поля $E_y(z, x, t)$, генерируемого в GaAs импульсом волоконного лазера (1560 нм), для последовательных моментов времени (пронумерованных по порядку) при $\tau_{FWHM} = 150$ фс, (а) $\ell_{\perp} = 300$ мкм, $I_0 = 10$ МВт/см² и (б) $\ell_{\perp} = 30$ мкм, $I_0 = 100$ МВт/см². Пунктирные указатели показывают терагерцовые поля, отраженные от выходной поверхности кристалла.

Падение генерированного терагерцового импульса на выходную поверхность кристалла создает отраженное и прошедшее терагерцовое излучение (момент 5); прошедшее в воздух электрическое поле усиливается примерно в $\sim 1,6$ раза из-за уменьшения показателя преломления. Выходное излучение содержит больше осцилляций в дальней зоне (момент 5) по сравнению со случаем LiNbO₃. Примечательно, что отраженное переходное излучение в воздухе ($z < 0$) неразлично на Рисунке 1.9(а) (момент 1) из-за его слабости по сравнению с выходным терагерцовым излучением.

Для более детальной иллюстрации динамики генерации терагерцового поля внутри кристалла, на Рисунке 1.10 построен вынужденный и свободный волновые отклики, а также полное терагерцовое поле, рассчитанные для нескольких последовательных моментов времени с использованием одномерного уравнения (1.18). Из Рисунке 1.10 видно, что бездисперсионное приближение (1.21) хорошо работает до $z \sim 1$ мм, для больших z в форме сигнала формируется существенный осцилляторный хвост из-за дисперсии. Длина разбегания L_w (см. выражение (1.20)), взятая при $n_t = \sqrt{\epsilon_0}$, оценивается

для $\tau_{FWHM} = 150$ фс как $L_w \approx L_w^{space} \sim 1,1$ мм. На этом расстоянии вынужденный и свободный волновые отклики разделяются на уровне половины амплитуды.

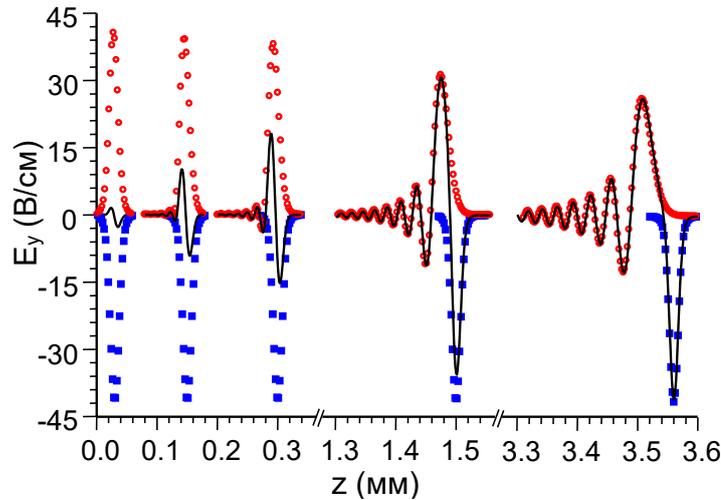


Рисунок 1.10. Свободный (полые кружочки) и вынужденный (закрашенные квадраты) волновые отклики, а также полное терагерцовое поле $E_y(z, t)$ (сплошная линия) в GaAs, построенные на основе уравнения (1.18) для последовательных моментов времени. Расчет сделан при $\tau_{FWHM} = 150$ фс, $I_0 = 10$ МВт/см².

В случае сильной фокусировки (см. Рисунок 1.9(б)) общая структура картины излучения, формирующейся за движущимся источником (моменты 1-4), аналогична LiNbO₃: передняя часть представляет собой черенковский конус вынужденного волнового отклика, за которым следует цилиндрическая волна свободного волнового отклика. Половинный угол раскрытия черенковского конуса составляет около 81°, что согласуется с уравнением (1.31). Как и в случае LiNbO₃, коническая часть свободного волнового отклика компенсирует черенковский конус позади точек, где цилиндрическая волна касается черенковского клина. Из-за близости скоростей черенковского клина и цилиндрической волны в GaAs, они не так хорошо разделены, как в LiNbO₃, на расстояниях $z \leq 1$ мм, которые обычно используются в экспериментах [28]. При этом полное терагерцовое поле, генерируемое на таких расстояниях, всего на порядок меньше, чем в LiNbO₃, даже при оптических интенсивностях, которые в сто раз ниже (см. Рисунок 1.6(б)). Это связано в основном с фактором $(\epsilon_0 - n_g^2)^{-1/2}$ в выражении (1.35) для максимума электрического поля на черенковском клине. Для GaAs это фактор на порядок больше, чем для LiNbO₃. Дополнительно, дисперсия приводит к появлению нескольких осцилляций как на черенковском конусе, так и на свободном волновом отклике; в

процессе распространения свободный волновой отклик расплывается, увеличивая количество осцилляций. Поскольку черенковский угол $\theta_{\text{ch}} = \pi/2 - \alpha_{\text{max}} \approx 9^\circ$ меньше критического угла полного внутреннего отражения $\theta_{\text{tot}} \approx 16,2^\circ$ на границе кристалл-воздух, то черенковский клин высвечивается в свободное пространство без существенного ослабления (см. момент 5 на Рисунке 1.9(б), также в этот момент времени видно излучение, отраженное в кристалл).

Для практики представляет интерес зависимость эффективности оптико-терагерцового преобразования от степени фокусировки оптического пучка и толщины кристалла. На Рисунке 1.11(а) показана эффективность в зависимости от поперечного размера накачки для двух поляризаций оптического излучения и двух толщин кристалла. Генерируемая терагерцовая энергия была рассчитана с использованием временного окна для фильтрации переотраженных терагерцовых импульсов (см. п. 1.1). Из Рисунка 1.11(а) можно сделать три вывода. Во-первых, применимость приближения плоской волны (когда эффективность рассчитывается на основании одномерной модели) зависит от толщины кристалла: с увеличением L это приближение становится неудовлетворительным при больших ℓ_{\perp} . Заметим, что в приближение плоской волны зависимость эффективности от толщины кристалла имеет максимум при $L \approx 2$ мм, который обусловлен конкуренцией двух факторов: роста полного терагерцового поля с z из-за разделения вынужденного и свободного волновых откликов и слабого постепенного затухания свободного волнового отклика с z . В то же время, для широкого пучка накачки с конечным размером (300 мкм), эффективность монотонно увеличивается с L . Это можно объяснить генерацией наклонно распространяющихся плоских волн, что видно из углового спектра $w(\theta)$, показанного во вставке Рисунка 1.11(а) (см. кривые 1 и 2). Во-вторых, для сильно сфокусированной оптической накачки ($\ell_{\perp} \leq 50$ мкм) эффективность заметно выше для p -поляризации по сравнению с s -поляризацией из-за лучшего прохождения p -поляризованных терагерцовых волн в окружающее пространство. В-третьих, рост эффективности с увеличением толщины кристалла L более выражен для сильно сфокусированных лазерных импульсов. Для таких импульсов генерируемая терагерцовая энергия растет с расстоянием из-за удлинения черенковского конуса, что наглядно демонстрируется формированием пиков в генерируемом угловом спектре $w(\theta)$ (кривые 3 и 4 во вставке к Рисунку 1.11(а)). Наличие таких пиков соответствует формированию полого терагерцового пучка в дальней зоне.

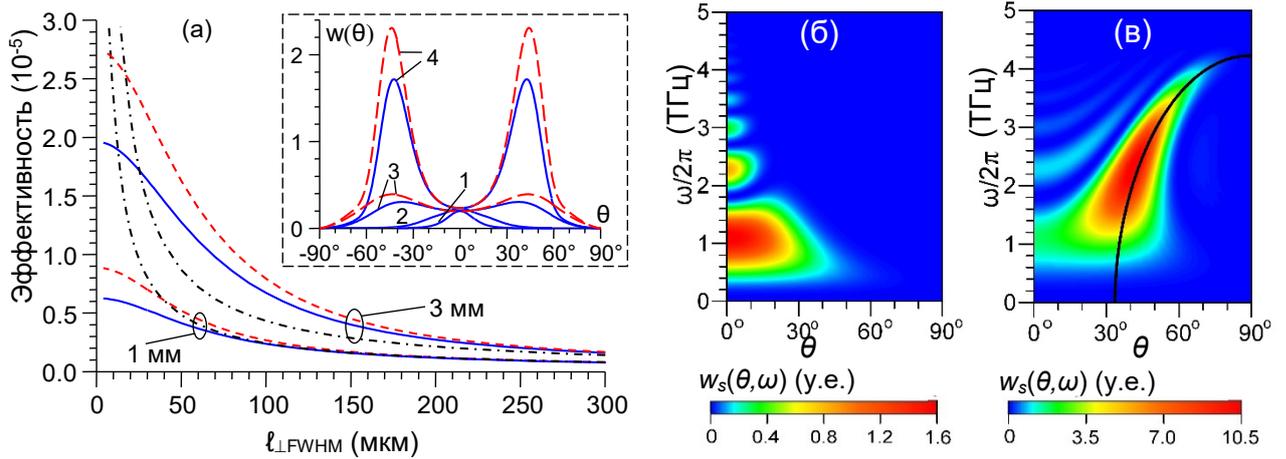


Рисунок 1.11. (а) Эффективность оптико-терагерцового преобразования в пластине GaAs в зависимости от ширины лазерного пучка $\ell_{\perp FWHM}$ для s - (сплошная линия) и p - (штриховая линия) поляризаций оптической накачки и двух толщин пластины (1 мм и 3 мм). Штрихпунктирные кривые показывают результат расчета в приближении плоской волны. Энергия лазера фиксирована и соответствует $I_0 = 10 \text{ МВт/см}^2$ при $\ell_{\perp} = 300 \text{ мкм}$, $\tau_{FWHM} = 150 \text{ фс}$. Вставка: угловая плотность терагерцовой энергии при: (1) $\ell_{\perp} = 300 \text{ мкм}$ и $L = 1 \text{ мм}$, (2) $\ell_{\perp} = 300 \text{ мкм}$ и $L = 3 \text{ мм}$, (3) $\ell_{\perp} = 30 \text{ мкм}$ и $L = 1 \text{ мм}$, (4) $\ell_{\perp} = 30 \text{ мкм}$ и $L = 3 \text{ мм}$. Для (1) и (2) кривые для s - и p - поляризаций совпадают. (б), (в) Спектрально-угловая плотность терагерцовой энергии при $L = 3 \text{ мм}$ (б) $\ell_{\perp} = 300 \text{ мкм}$, $I_0 = 10 \text{ МВт/см}^2$ и (в) $\ell_{\perp} = 30 \text{ мкм}$, $I_0 = 100 \text{ МВт/см}^2$. Сплошная линия на Рисунке (в) показывает связь между θ и ω , рассчитанную с использованием черенковского условия $\sin \alpha = n_g / \sqrt{\epsilon_c(\omega)}$ и закона Снеллиуса.

Рисунки 1.11(б) и 1.11(в) показывают спектрально-угловую плотность излучаемой энергии $w_s(\theta, \omega)$ (рассчитанную из уравнения (1.16) с $C_4(g, \omega)$, свернутым с фурье-спектром временного окна) для $L = 3 \text{ мм}$ и двух значений поперечного размера пучка: $\ell_{\perp} = 300 \text{ мкм}$ и 30 мкм . Для слабо сфокусированного лазерного импульса генерируемая терагерцовая энергия преимущественно распределена в сравнительно узком частотном интервале около 1 ТГц ($0,8 \text{ ТГц} \leq \omega/(2\pi) \leq 1,3 \text{ ТГц}$) и при малых углах $\theta \leq 15^\circ$. Для сильно сфокусированного лазерного импульса ($\ell_{\perp} = 30 \text{ мкм}$) энергия распределена в области более высоких частот $1,5 \text{ ТГц} \leq \omega/(2\pi) \leq 3 \text{ ТГц}$ и больших углов $30^\circ \leq \theta \leq 50^\circ$. Максимум спектрально-угловой плотности лежит на кривой, описываемой черенковским

условием $\sin \alpha = n_g / \sqrt{\epsilon_c(\omega)}$, где угол α связан с углом излучения в вакууме θ законом Снеллиуса (сплошная линия на Рисунке 1.11(в)). Данные рисунки демонстрируют возможность контроля спектра генерируемого терагерцового излучения за счет изменения поперечного размер лазерного пучка накачки.

Описанные выше результаты получены в предположении, что дифракционное и дисперсионное уширение лазерного импульса пренебрежимо малы. На практике эти факторы накладывают ограничения на увеличение толщины кристалла, уменьшение ширины и длительности импульса. На Рисунке 1.12 построена зависимость эффективности преобразования от толщины кристалла L с варьируемой ℓ_{\perp} , при которой длина Рэля $L_R = 2\pi n_{opt} \ell_{\perp}^2 / \lambda$ ($\lambda = 1,56$ мкм, $n_{opt} = 3,38$ - показатель преломления GaAs в оптическом диапазоне) равна L . Иными словами, для каждой L выбирается минимально возможная ℓ_{\perp} , допустимая дифракцией накачки. Пунктирный участок кривой показывает область, где L превышает длину дисперсионного уширения оптического импульса $L_{disp} = \tau^2 / k_2 \approx 6$ мм (для $\tau_{FWHM} = 150$ фс), где k_2 – коэффициент квадратичной дисперсии.

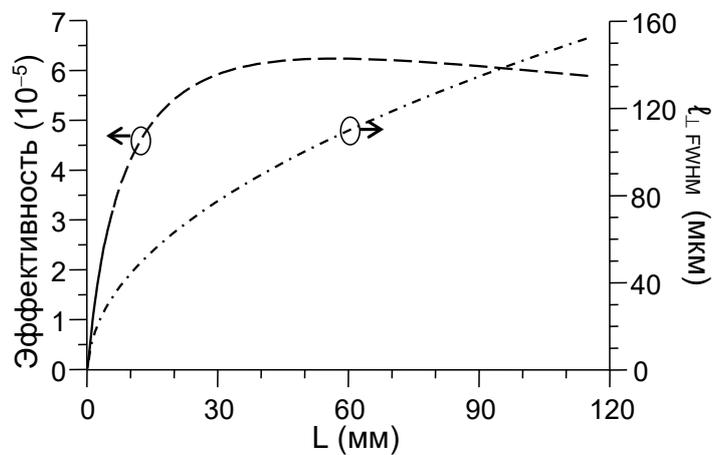


Рисунок 1.12. Эффективность оптико-терагерцового преобразования в зависимости от толщины пластины GaAs (сплошная и штриховая линии) для ширины лазерного пучка $\ell_{\perp FWHM}$ (штрих-пунктирная линия), рассчитанной из условия равенства длины Рэля величине L . Штриховая линия показана для диапазона толщин, где дисперсионное уширение оптического импульса становится значительным. Оптическая накачка имеет s -поляризацию, энергия лазера фиксирована на уровне 50 нДж/см, $\tau_{FWHM} = 150$ фс.

Из Рисунка 1.12 следует, что существует оптимальная толщина $L \sim 3$ см, при которой эффективность максимальна. Однако для таких больших толщин дисперсионное

уширение становится значительным. Следовательно, для максимизации эффективности следует выбирать максимально возможную толщину $d \sim 1$ см, допустимую с учетом дисперсии, и фокусировать пучок до минимального размера $\ell_{\perp} \sim 30 - 50$ мкм, при котором дифракционное уширение еще не критично. При этом максимальная эффективность составляет $\sim 3 \times 10^{-5}$ (при энергии лазерного импульса на единицу длины 50 нДж/см).

1.5. Досветовой режим генерации

В данном параграфе приведены расчеты генерации терагерцового излучения в материалах, где возможно выполнение условия синхронизованной генерации терагерцовых волн, т.е. равенство групповой скорости лазерного импульса и фазовой скорости терагерцового излучения на определенной частоте ω_0 (учитывается, как и ранее, низкочастотная дисперсионная ветка фонон-поляритонов). Рассматриваются слабо досветовой режим генерации в кристалле ZnTe и сильно досветовой режим в кристалле GaP при накачке (в обоих случаях) импульсами титан-сапфирового лазера (на длине волны около 800 нм). В первом режиме длительность лазерного импульса соответствует условию $\omega_0 \tau \lesssim 2$, которое позволяет коллинеарно-синхронизованной волне генерироваться довольно эффективно. Во втором режиме выполняется условие $\omega_0 \tau \gg 2$. В результате, синхронизованная волна практически не возбуждается из-за амплитудного множителя $\tilde{F}(\omega)$, ограничивающего фурье-спектр суммарного генерируемого поля (см. выражения (1.11) и (1.13)).

1.5.1. Синхронизованная генерация в кристалле ZnTe при накачке на длине волны 800 нм

Рассмотрим слабо-субсветовой режим генерации терагерцового излучения в пластине ZnTe при накачке импульсами титан-сапфирового лазера. Для данного кристалла низкочастотная диэлектрическая проницаемость $\epsilon_0 = 10$, а оптический групповой показатель преломления $n_g = 3,28$ (на длине волны 800 нм) [121]. Поскольку $\sqrt{\epsilon_0} = 3.16 < n_g$, то в данном кристалле выполняется досветовой режим генерации, в котором возможно выполнение коллинеарного синхронизма. При использовании одно-резонансной модели (1.4) с $\epsilon_{\infty} = 7,44$, $\omega_{\text{TO}}/(2\pi) = 5,32$ ТГц и $\gamma/(2\pi) = 0,005$ ТГц,

частота синхронизма, согласно выражению (1.23), составляет около $\omega_0/2\pi = 2,5$ ТГц. Тогда для длительности лазерного импульса $\tau_{FWHM} = 150$ фс (используемого далее в расчетах) имеем, $\omega_0\tau = 1,4 < 2$, а значит выполняется слабо досветовой режим генерации. Малое значение коэффициента затухания γ одно-резонансной модели используется, чтобы не затруднять наблюдение качественных особенностей динамики терагерцового поля и одновременно избежать особенностей в интегралах Фурье (1.14) и (1.18). Однако экспериментально измеренный спектр поглощения ZnTe ниже 5 ТГц демонстрирует более сложное поведение, чем описываемое однорезонансным приближением [59], [122], [134], [135]. Поэтому для более точного моделирования в части расчетов будет использована более сложная четырех-резонансная модель, у которой резонансные частоты, коэффициенты затухания и силы осцилляторов для всех четырёх членов, а также ϵ_∞ , подобраны для согласования с экспериментальными данными из работ [59], [122], [134], [135]. Данная модель существенно не изменяет дисперсию действительного показателя преломления, а значит частота синхронизованной волны также почти не изменяется.

Возьмём кристалл ZnTe с ориентацией (110), типично используемый в экспериментах. Ориентацию кристалла и поляризацию накачки выберем такие же, как и для GaAs (см. п. 1.4.2). В основном будем рассматривать генерацию *s*-поляризованного излучения нелинейной компонентой p_y . Расчеты для *p*-поляризованного излучения будут сделаны в том числе для расчета генерируемой энергии. Нелинейный коэффициент для ZnTe $d_{14} = 68$ пм/В [40].

На Рисунке 1.13 показано пространственное распределение электрического поля E_y в ZnTe, рассчитанное при тех же параметрах лазерного импульса, что для GaAs. В расчётах использовалась четырех-резонансная модель дисперсии и поглощения. В случае слабой фокусировки Рисунке 1.13(а) генерируемое терагерцовое поле в ZnTe аналогично полю для GaAs (см. Рисунок 1.9(а)). Единственное заметное отличие - появление слабых осцилляций, бегущих впереди основного импульса. Эти осцилляции, распространяющиеся быстрее оптического импульса, представляют собой фон-поляритоны, лежащие ниже точки пересечения их низкочастотной дисперсионной ветви с линией $k = \omega/V$ (см. Рисунок 1.2). Эти осцилляции являются частью свободной волны, возбуждаемой на границе $z = 0$.

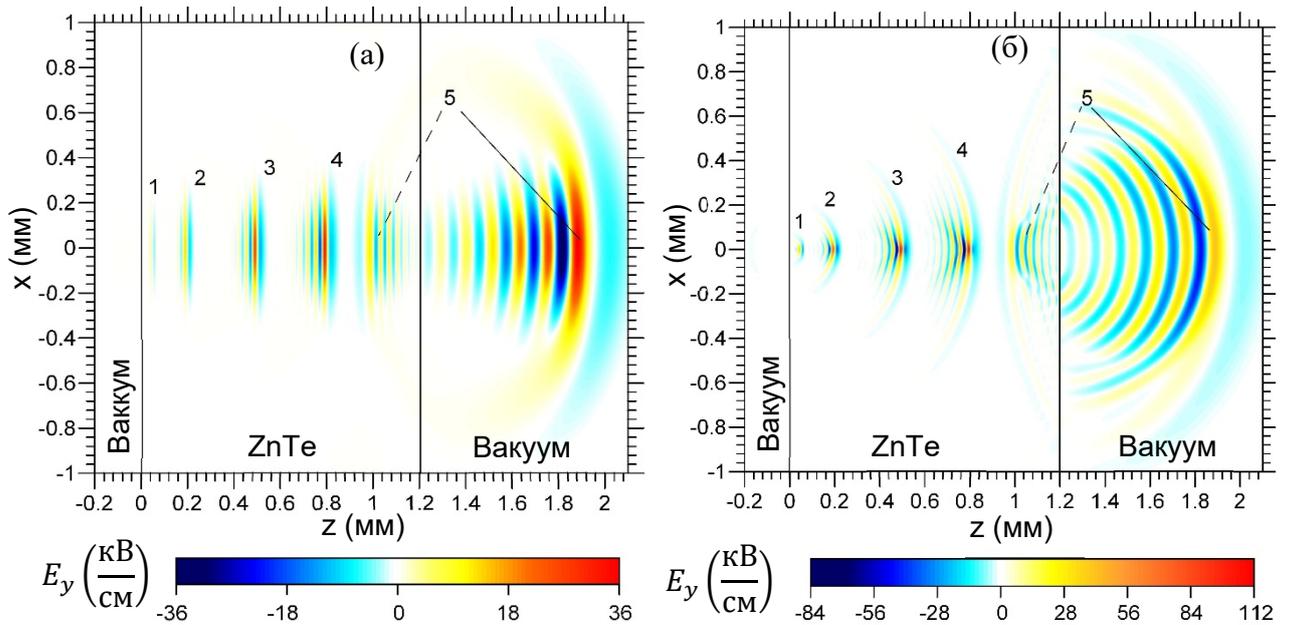


Рисунок 1.13. Моментальные снимки терагерцового поля $E_y(z, x, t)$, генерируемого в ZnTe импульсом титан-сапфирового лазера (800 нм), для последовательных моментов времени (пронумерованных по порядку) при $\tau_{\text{FWHM}} = 150$ фс, (а) $\ell_{\perp} = 300$ мкм, $I_0 = 10$ МВт/см² и (б) $\ell_{\perp} = 30$ мкм, $I_0 = 100$ МВт/см². Пунктирные указатели показывают отраженное терагерцовое поле. Расчет выполнен при четырех-резонансной модели дисперсии фонон-поляритонов с реальным поглощением.

Для детального анализа динамики поля в ZnTe рассмотрим одномерную модель, где использована одно-резонансная модель поглощения (см. Рисунок 1.14). Формирование терагерцового импульса можно разделить на два этапа. На первом этапе амплитуда импульса растёт без существенного изменения формы (моменты 1, 2, 3 на Рисунок 1.14(а)). На втором этапе импульс удлиняется без значительного изменения амплитуды (момент 4). Для определения длины, на которой происходит переход между этапами, на Рисунке 1.14(б) показаны спектры поля в нескольких точках вдоль z . При $z < 1.2$ мм основная часть спектра растёт с увеличением z , что означает рост импульса без изменения формы. После $z = 1.2$ мм часть спектра в окрестности частоты ω_b начинает уменьшаться, тогда как другие частоты продолжают расти (наиболее быстро - в окрестности частоты фазового синхронизма $\omega_0/2\pi \approx 2,5$ ТГц). Соответственно, должна изменяться и форма импульса. Длину нарастания амплитуды (buildup length) L_b можно определить как

минимальное расстояние, на котором частотная компонента $|\tilde{E}_y(\omega, z)|$ достигает максимума, что эквивалентно решению уравнения

$$\frac{\partial |\tilde{E}_z(\omega, z)|}{\partial z} = 0. \quad (1.49)$$

Решение уравнения (1.49) даёт зависимость $z(\omega)$, описывающую положения в кристалле, где различные спектральные компоненты поля достигают максимума. Используя эту зависимость, можно найти частоту ω_b , соответствующую минимальному расстоянию, и определить длину нарастания амплитуды $L_b = z(\omega_b)$. Подстановка уравнения (1.18) в (1.49) даёт

$$z(\omega) = \frac{c\pi}{\omega |\sqrt{\varepsilon_c(\omega)} - n_g|}. \quad (1.50)$$

Это уравнение описывает так называемую длину когерентности $z(\omega) = L_{\text{coh}}(\omega)$ [121]. Таким образом, при фазовом согласовании длина нарастания амплитуды есть минимум длины когерентности: $L_b = \min L_{\text{coh}}(\omega) = L_{\text{coh}}(\omega_b)$ (см. вставку на Рисунке 1.14(б)). Расчёты с более реалистичной четырёхрезонансной моделью поглощения в ZnTe не показывают существенных отличий от рассмотренной двухэтапной динамики генерации. Более сильное поглощение влияет в основном на предельную форму терагерцового поля при больших z , которая согласуется с уравнением (1.24), где γ определяется из экспериментальных данных работ [59], [122], [134], [135] по поглощению на частоте продольного фазового синхронизма ω_0 .

Динамика формирования терагерцового сигнала в ZnTe, которая была описана, ясно показывает, что сходство между генерируемыми терагерцовыми сигналами в GaAs и ZnTe, наблюдаемое на Рисунках 1.9(а) и 1.13(а), может вводить в заблуждение, поскольку сигналы генерируются по разным физическим сценариям. В случае GaAs свободный волновой отклик всегда будет отставать от генерирующего оптического импульса для достаточно длинных кристаллов, превышающих длину разбегания. При распространении терагерцовый импульс испытывает дисперсионное уширение и ослабляется из-за поглощения. Для длинных образцов он полностью исчезает. Этот импульс представляет собой переходное решение, возникающее исключительно из-за наличия границы. Напротив, в ZnTe терагерцовый сигнал никогда не отстаёт от оптического импульса, а только увеличивается по длине со временем. Для бесконечно длинного образца длина терагерцового импульса определяется поглощением. Этот

импульс представляет собой вынужденное волновое решение. Таким образом, сходство картин полей на Рисунках 1.9(а) и 1.13(а) можно объяснить относительно малой толщиной пластин кристаллов и важностью переходной эффектов при расчёте терагерцового сигнала.

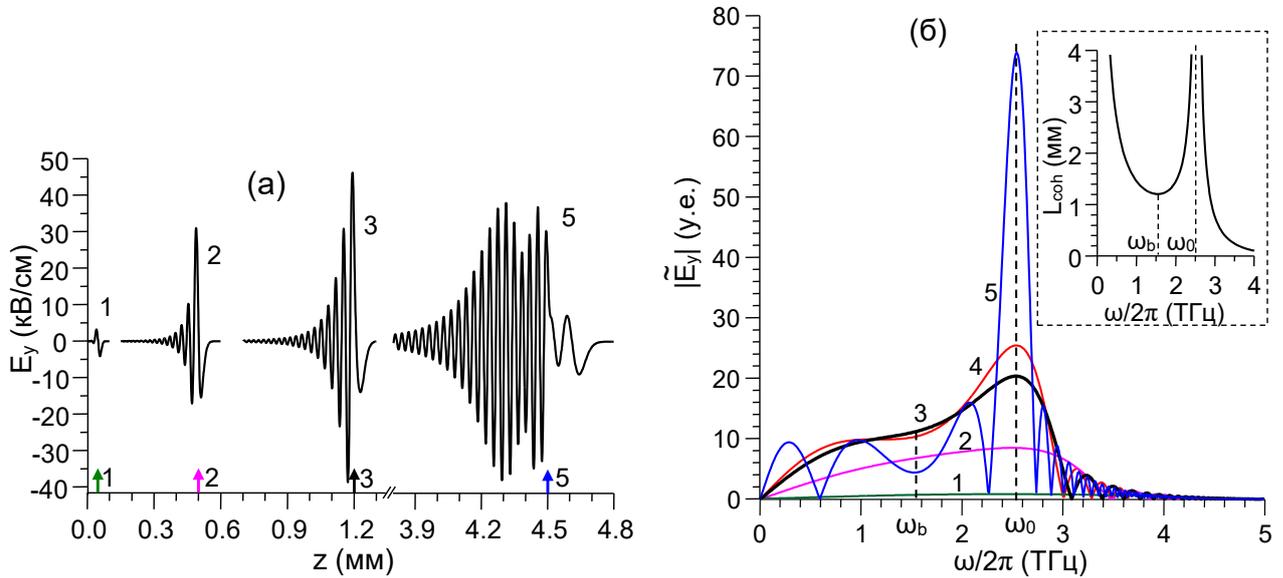


Рисунок 1.14. (а) Мгновенные снимки поля $E_y(z)$ в ZnTe для последовательных моментов времени при $\tau_{FWHM} = 150$ фс, $I_0 = 10$ МВт/см² в одномерном случае. (б) Спектры $E_y(t)$ в нескольких точках вдоль z (отмечены стрелками на Рисунке (а), кривая 4 соответствует $z = 1.5$ мм). Вставка на показывает длину когерентности в зависимости от частоты $L_{coh}(\omega)$, определяемую уравнением (1.50). Частота ω_b соответствует минимальной $L_{coh}(\omega)$, а ω_0 - частоте фазового синхронизма. Расчет при одно-резонансной модели дисперсии фонон-поляритонов с малым поглощением.

В случае сильной фокусировки (Рисунок 1.13(б)) в структуре излучения можно выделить следующие компоненты: волну в виде клина, цилиндрические волны вне клина и плоскую волну, распространяющуюся вдоль оси z внутри конуса. Для интерпретации этой картины обратимся к Рисунку 1.15, где отдельно построены свободная волна, вынужденная волна и полное терагерцовое поле на большом расстоянии $z \sim 3$ мм (в расчетах использована однорезонансная модель с малым поглощением). Вынужденная волна состоит из черенковского конуса и плоской волны (Рисунок 1.15(б)). Конус имеет угол $\alpha_{max} \approx 45^\circ$ и частоту ω_* , определяемую уравнениями (1.30б). Плоская волна возбуждается благодаря фазовому синхронизму и имеет частоту ω_0 , заданную

уравнением (1.23). Биения в распределении поля вблизи конуса, объясняются уравнением (1.28) и Рисунком 1.3. В отличие от случаев LiNbO_3 и GaAs , волновые фронты на конусе наклонены под большим углом к конусу и распространяются почти вдоль оси z (под углом $\approx 10^\circ$ к оси), как следует из уравнения (1.28). Свободный волновой отклик имеет более сложную структуру (Рисунок 1.15(а)) и формируется волнами, принадлежащими разным участкам дисперсионной кривой: быстрыми волнами с $\omega < \omega_0$, фазово-согласованной волной на частоте ω_0 и медленными волнами с $\omega_0 < \omega < \omega_{\text{TO}}$. Низкочастотные волны ($\omega < \omega_0$) имеют скорости больше c/n_g и потому опережают основной импульс, формируя цилиндрическую волну. Несмотря на сложную структуру полного терагерцового поля на Рисунке 1.15(в), направления распространения волновых фронтов почти во всех точках картины излучения незначительно отклоняются от оси z . В результате максимум терагерцового излучения из пластины наблюдается в прямом направлении (см. также вставку на Рисунке 1.16). Это радикально отличается от случая GaAs , где картина излучения внутри пластины, на первый взгляд похожая на ZnTe , формирует полюю структуру пучка вне пластины (см. Рисунок 1.9(б) и вставку на Рисунке 1.11(а)).

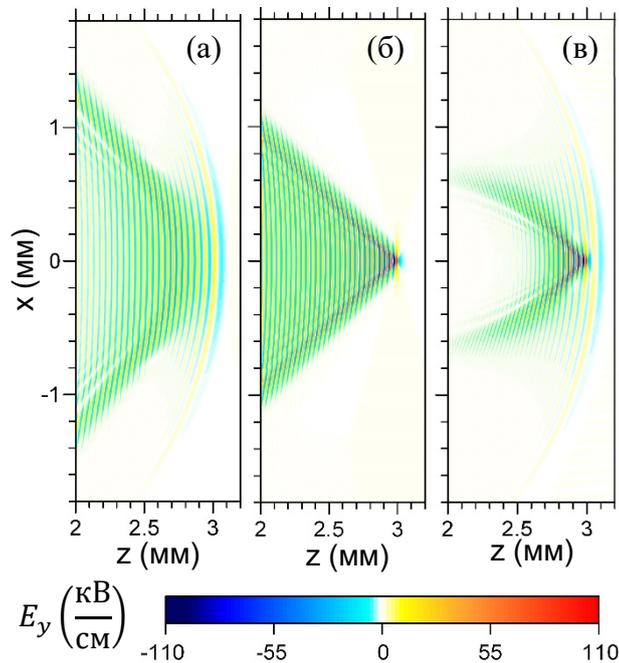


Рисунок 1.15. (а) Свободная и (б) вынужденная волновые компоненты, а также (в) полное терагерцовое поле в ZnTe для тех же параметров накачки, что и на Рисунке 1.13(б). Расчет выполнен при одно-резонансной модели дисперсии фонон-поляритонов с малым поглощением.

На Рисунке 1.16(a) показана эффективность преобразования в зависимости от $\ell_{\perp FWHM}$ для двух поляризаций оптической накачки и трёх толщин кристалла. Из данного рисунка можно сделать пять основных выводов. Во-первых, хотя эффективность возрастает с увеличением толщины кристалла, она насыщается при $L \approx 3$ мм. Расчёты для $L > 3$ мм показывают, что эффективность практически не увеличивается. Таким образом, использование кристаллов толще ~ 3 мм нецелесообразно. Во-вторых, максимум углового спектра находится при $\theta = 0$ независимо от толщины кристалла и ширины лазерного пучка (вставка на Рисунке 1.16(a)), в отличие от случая GaAs. В-третьих, максимумы угловых спектров для разных $\ell_{\perp FWHM}$ совпадают. Рост эффективности при фокусировке обусловлен расширением углового спектра. В-четвёртых, угловой спектр становится уже для более толстых кристаллов. Это можно объяснить удлинением черенковского конуса и плоской синхронизованной волны внутри него. В-пятых, по сравнению с GaAs эффективность в ZnTe при $L \approx 1$ мм примерно в 2 раза меньше, а при $L \approx 3$ мм - почти на порядок. Это связано с существенно большим терагерцовым поглощением в ZnTe по сравнению с GaAs.

Для изучения ограничений на максимальную эффективность, накладываемых дифракционным и дисперсионным уширением лазерного импульса, на Рисунке 1.16(б) построена зависимость эффективности от толщины кристалла L . Как и для GaAs (см. обсуждение в п. 1.4.2), для каждой длины L величина $\ell_{\perp FWHM}$ определяется из равенства длины Рэлея и толщины L ($2\pi n_{opt} \ell_{\perp}^2 / \lambda = L$, $n_{opt} = 2,86$). Из Рисунка 1.16(б) следует, что оптимальная толщина ZnTe составляет $L \sim 1 - 3$ мм, а соответствующие значения ширины лазерного пучка $\ell_{\perp FWHM} \sim 10 - 20$ мкм. Максимальная эффективность достигает $\sim 3 \times 10^{-5}$ что примерно на порядок меньше, чем для GaAs.

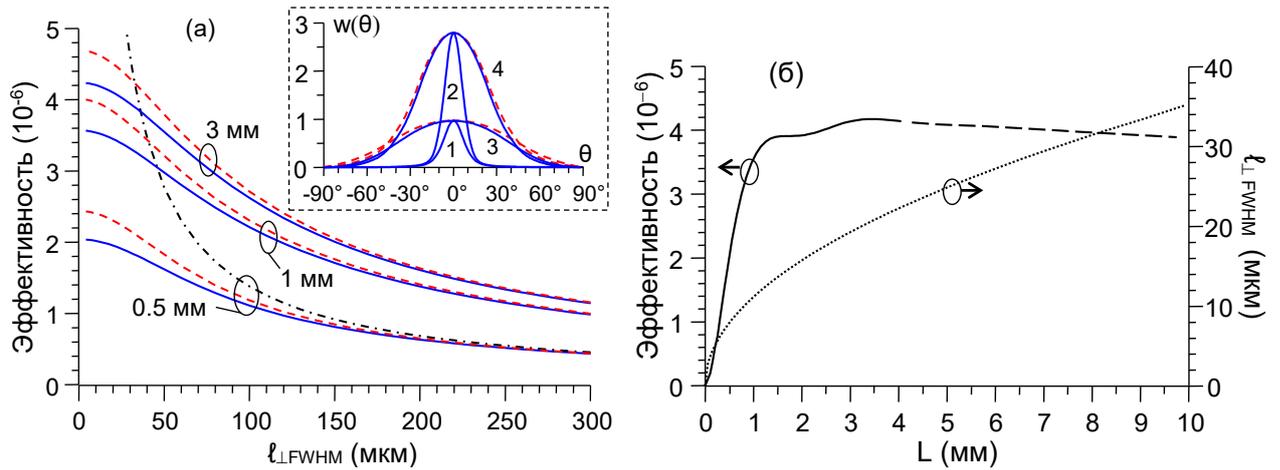


Рисунок 1.16. (а) Эффективность оптико-терагерцового преобразования в пластине ZnTe в зависимости от ширины лазерного пучка $\ell_{\perp FWHM}$ для s - (сплошная линия) и p -поляризаций (штриховая линия) оптической накачки и трех толщин пластины (0.5 мм, 1 мм и 3 мм). Штрихпунктирная кривая показывает результат расчета в приближении плоской волны. Энергия лазера фиксирована и соответствует $I_0 = 10 \text{ МВт/см}^2$ при $\ell_{\perp} = 300 \text{ мкм}$, $\tau_{FWHM} = 150 \text{ фс}$. Вставка: угловая плотность терагерцовой энергии при: (1) $\ell_{\perp} = 300 \text{ мкм}$ и $L = 1 \text{ мм}$, (2) $\ell_{\perp} = 300 \text{ мкм}$ и $L = 3 \text{ мм}$, (3) $\ell_{\perp} = 30 \text{ мкм}$ и $L = 1 \text{ мм}$, (4) $\ell_{\perp} = 30 \text{ мкм}$ и $L = 3 \text{ мм}$. Для случаев (1) и (2) кривые для s - и p -поляризаций совпадают. (б) Эффективность в зависимости от длины кристалла (сплошная и пунктирная линии) для ширины лазерного пучка $\ell_{\perp FWHM}$ (пунктирная линия), рассчитанной из условия равенства длины Рэлея величине L . Пунктирная часть кривой показывает диапазон, где существенно дисперсионное расплывание накачки. Накачка имеет s -поляризацию, энергия лазера 50 нДж/см , $\tau_{FWHM} = 150 \text{ фс}$. Расчет выполнен при четырех-резонансной модели дисперсии фонон-поляритонов с реальным поглощением.

1.5.2. Сильно досветовой режим генерации в кристалле GaP при накачке на длине волны 800 нм

Рассмотрим теперь сильно досветовой режим генерации на примере кристалла GaP при накачке излучением титан-сапфирового лазера. Дисперсию фонон-поляритонов в данном кристалле можно довольно очно описывать одно-резонансной формулой (1.4) с $\varepsilon_0 = 11,15$, $\varepsilon_{\infty} = 9,35$, and $\omega_{T0}/(2\pi) = 11 \text{ ТГц}$ [136] и $\gamma = 4,6 \text{ ТГц}$, рассчитанное из

экспериментальных данных работы [137]. Групповой показатель преломления GaP на длине волны титан-сапфирового лазера (800 нм) составляет $n_g = 3,56$. При таких параметрах частота синхронизованной волны (см. формулу (1.23)) лежит в довольно высокочастотной области и составляет $\omega_0/(2\pi) \approx 7,4$ ТГц (см. пересечение дисперсионной кривой $n(\omega) = \text{Re}(\sqrt{\varepsilon(\omega)})$ с прямой $n_g = 3,56$ на Рисунок 1.17(a)). Для эффективного возбуждения такой частоты необходимо, чтобы длительность лазерного импульса удовлетворяла условию $\omega_0\tau \lesssim 2$, т.е. $\tau_{\text{FWHM}} \lesssim 70$ фс. Это соответствует слабо досветовому режиму генерации, рассмотренному в предыдущем параграфе. В данном параграфе будем рассматривать сильно досветовой режим, при котором $\omega_0\tau \gg 2$ ($\tau_{\text{FWHM}} \gg 70$ фс). В этом режиме синхронизованная волна практически не возбуждается (см. далее).

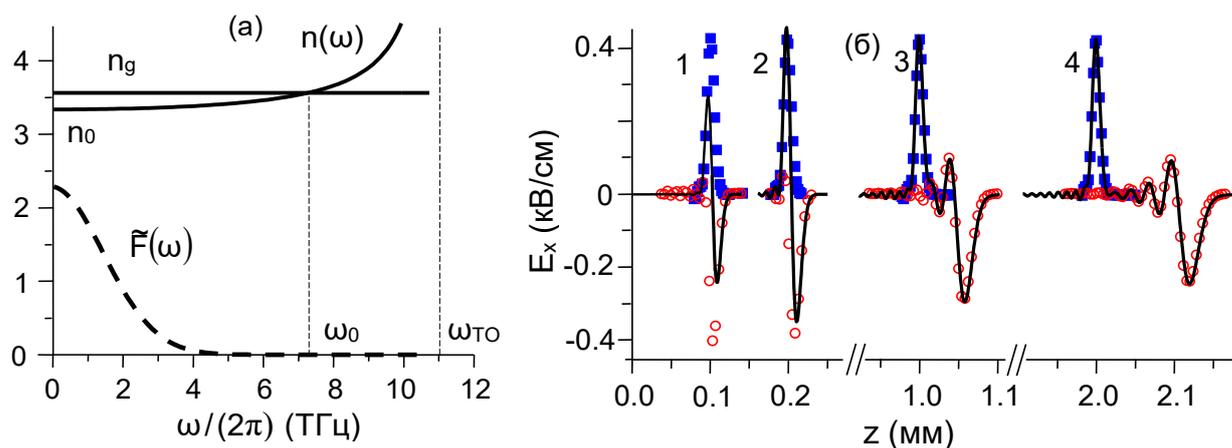


Рисунок 1.17. (а) Иллюстрация условий сильно досветового режима оптико-терагерцового преобразования в GaP: точка пересечения n_g с $n(\omega)$ определяет частоту синхронизма ω_0 . При $\tau_{\text{FWHM}} = 150$ фс спектр огибающей интенсивности оптического импульса $\tilde{F}(\omega_0) \approx 0$. (б) Свободный (открытые кружки) и вынужденный (закрашенные квадраты) импульсы, а также полное терагерцовое поле $E_x(z, t)$ (сплошная линия) в GaP, рассчитанные на основе уравнения (1.18) для последовательных моментов времени при $\tau_{\text{FWHM}} = 150$ фс, $I_0 = 1$ ГВт/см².

Для расчета терагерцового излучения ориентацию кристалла и поляризацию накачки выберем такие же, как и для GaAs, ZnTe (см. п. 1.4.2, 1.5.1). Но в этот раз будет рассматривать генерацию p -поляризованного излучения (с полями B_y , E_x и E_z) компонентой нелинейной поляризации $p_x = d_{\text{eff}}E_0^2$, где $d_{\text{eff}} = 24,8$ пм/В – нелинейный

коэффициент GaP [40]. Возбуждение p -поляризованных волн является преимущественным (по сравнению с s -поляризованными волнами) благодаря более большому френелевскому прохождению этих волн на выходной границе GaP.

Вначале рассмотрим генерацию терагерцового поля в одномерном приближении в полубесконечном кристалле. Тогда динамика поля описывается уравнением (1.18). Как и в случае генерации в ZnTe, для GaP подынтегральное выражение в (1.18) имеет особенность при $\varepsilon(\omega) - n_g^2 = 0$. Эта особенность играет важную роль: вклад вычетов в полюсах $\varepsilon(\omega) - n_g^2 = 0$ описывает генерацию синхронизованной волны на частоте ω_0 (см. выражение (1.23), а также п. 1.5.1). Однако при длительности импульса $\tau_{\text{FWHM}} \gg 150$ фс, используемого далее в расчетах, $\omega_0 \tau \approx 4 \gg 2$ и вклад от полюсов в полное терагерцовое поле подавляется гауссовым множителем $\tilde{F}(\omega) = (\tau/2\sqrt{\pi})e^{-\omega^2\tau^2/4}$ (см. Рисунок 1.17(a)). В результате синхронизованная волна не возбуждается.

Из-за высокой резонансной частоте ω_{TO} дисперсионная кривая $n(\omega)$ в диапазоне нескольких терагерц является плоской (см. Рисунок 1.17(a)). Кроме того, в данном диапазоне поглощение довольно слабо, поэтому зависимость $\varepsilon(\omega)$ можно аппроксимировать действительной постоянной ε_0 . Это позволяет использовать приближенное выражение (1.19). В отличие от сверхсветовых материалов (таких как LiNbO₃ и GaAs, см. п. 1.4), в GaP (при накачке на длине волны ~ 800 нм) скорость c/n_t ($n_t = \sqrt{\varepsilon_0}$) свободного волнового импульса превышает скорость $V = c/n_g$ вынужденного импульса. Следовательно, в GaP импульсы распространяются в обратном порядке по сравнению со сверхсветовыми материалами: свободный импульс опережает вынужденный. Более того, поскольку множитель $n_t^2 - n_g^2$ в уравнении (1.19) имеет противоположный знак для GaP относительно сверхсветовых материалов, импульсы в GaP имеют обратную полярность по сравнению с LiNbO₃ или GaAs. Таким образом, в сильно досветовом материале (как в GaP при возбуждении на длине волны 800 нм) происходит двойная (позиционно-полярная) инверсия генерируемых терагерцовых импульсов относительно сверхсветового режима генерации.

Для иллюстрации описанной выше динамики генерации на Рисунке 1.17(б) приведены мгновенные снимки электрического поля $E_x(z, t)$, рассчитанные на основе точного уравнения (1.18). Из-за близости значений $n_g = 3,56$ и $n_t = 3,34$ вынужденный и свободный волновые импульсы (отображены квадратиками и кружочками на Рисунке

1.17(б)) имеют почти одинаковые амплитуды (см. уравнение (1.19)) и практически компенсируют друг друга вблизи входной границы $z = 0$. Полное терагерцовое поле постепенно нарастает с увеличением z от нуля до момента разделения импульсов (моменты времени 1,2), то есть на длине разбегания $L_w = c\tau_{\text{FWHM}}/(n_g - n_t)$ (в данном выражении используется формула (1.20), но с переставленными членами n_g и n_t). Это даёт $L_w \approx 200$ мкм для $\tau_{\text{FWHM}} = 150$ фс. Для области $0 < z < L_w$ полное поле, согласно (1.21), пропорционально производной огибающей интенсивности оптического импульса и пройденному расстоянию z (момент времени 2 на Рисунке 1.17(б)).

На Рисунке 1.17(б) мгновенные снимки на малых расстояниях $0 < z \lesssim L_w$ выглядят очень похожими на случай слабо сверхсветового режима в GaAs (см. Рисунок 1.10), т.е. наблюдаются два соседних импульса противоположной полярности, причём отрицательный импульс опережает положительный. Однако это сходство маскирует фундаментальное различие в структуре терагерцовых полей в двух режимах (сверхсветового и досветового), связанное с двойной инверсией. Это различие проявляется на больших расстояниях, когда происходит заметное разделение свободного и вынужденного импульсов. Действительно, при $z \gtrsim 1$ мм опережающий отрицательный импульс свободного решения испытывает поглощение и дисперсионное уширение, тогда как запаздывающий положительный (вынужденный) импульс остаётся неизменным (см. моменты времени 3 и 4 на Рисунке 1.17(б)). Напротив, в GaAs запаздывающий положительный (свободноволновой) импульс подвергается поглощению и дисперсионному уширению, тогда как первый отрицательный (вынужденный) импульс не изменяется с увеличением z (см. Рисунок 1.10).

Рассмотрим теперь генерацию терагерцового излучения от оптических импульсов произвольного поперечного размера. На Рисунке 1.18 показано пространственное распределение магнитного поля B_y , рассчитанное на основе уравнений (1.12), (1.13) для нескольких последовательных моментов времени и двух значений ширины лазерного пучка $\ell_{\perp\text{FWHM}} = 300$ мкм и 30 мкм. В случае слабой фокусировки (Рисунке 1.18(а)) генерируемое терагерцовое поле эволюционирует внутри кристалла GaP в соответствии с одномерной теорией (моменты времени 1-3). Около границы (момент 1) формируется импульс, повторяющий производную от огибающей лазерного импульса (отражённое переходное излучение в воздухе ($z < 0$) едва различимо на из-за его слабой интенсивности). Затем при $0 < z \lesssim 0,2$ мм амплитуда этого импульса растёт с расстоянием

z (момент 2). Осцилляции в форме импульса (момент 3) возникают из-за дисперсионных искажений ведущего свободного импульса. Падение сгенерированного терагерцового поля на выходную границу кристалла создаёт отражённое и прошедшее терагерцовое излучение (момент 4). Прошедшее в воздух магнитное поле ослабляется с коэффициентом $\sim 0,45 - 0,46$ из-за различия показателей преломления. Можно наблюдать формирование дальней зоны в ведущей части выходного излучения, создаваемого свободным терагерцовым импульсом (момент 4).

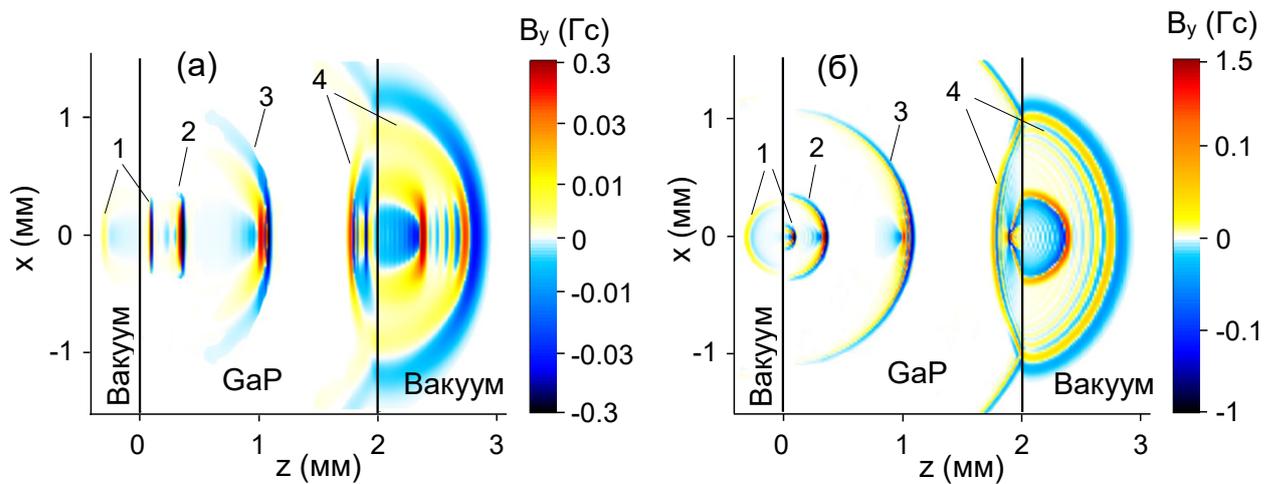


Рисунок 1.18. Мгновенные снимки поля $B_y(z, x, t)$ для последовательных моментов времени (пронумерованных по порядку) для случаев: (а) $l_{FWHM} = 300$ мкм, $I_0 = 0,1$ ГВт/см² и (б) $l_{FWHM} = 30$ мкм, $I_0 = 1$ ГВт/см². В вакууме магнитное поле величиной 1 Гс соответствует электрическому полю 0,3 кВ/см.

В случае сильной фокусировки (см. Рисунок 1.18(б)) картина излучения состоит из пика ближнего поля (вынужденного решения), сопровождающего лазерный импульс, и цилиндрической волны (свободного решения), распространяющейся от входной границы $z = 0$ в направлении $+z$ впереди лазерного импульса (также присутствует слабое переходное излучение в воздухе, распространяющееся в противоположном направлении, показанное для момента 1). Картина излучения существенно отличается от типичных для сверхсветового и слабо досветового режимов отсутствием черенковского конуса и синхронизованной волны. Падение свободной цилиндрической волны на выходную границу кристалла создает (момент 4) относительно слабую переднюю часть терагерцового импульса. Падение вынужденного волнового импульса на выходную

границу дает задержанный на $L(n_g - n_t)/c \approx 1,5$ пс одно-периодичный импульс с амплитудой в 3 раза больше.

Для практических применений слабо осциллирующую переднюю часть выходного излучения можно отфильтровать, используя, например, метод электрооптического стробирования. Более того, задержку и контраст по амплитуде между двумя частями выходного излучения (ведущей осциллирующей частью и запаздывающим одно-периодичным импульсом) можно сделать более выраженными, используя более толстые кристаллы и фокусируя лазерный импульс накачки вблизи выходной границы кристалла [138]. В этом случае несфокусированный на входной границе лазерный импульс будет слабо возбуждать переходную цилиндрическую волну, которая будет испытывать сильное затухание при распространении через толстый кристалл. Вынужденный волновой импульс, возбуждаемый сфокусированным лазерным импульсом вблизи выходной границы, создаст мощный одно-периодичный импульс в выходном терагерцовом излучении.

Интересная особенность картины излучения (см. Рисунок 1.18) заключается в том, что одно-периодичная часть выходного излучения имеет практически идеальный цилиндрический волновой фронт, что объясняется излучением из малой области (шириной, определяемой поперечным размером лазерного импульса) на выходной поверхности кристалла. Таким образом, в сильно досветовом режиме оптико-терагерцового преобразования можно реализовать нитевидный (или точечный, в 3D случае фокусировки лазерного пучка в пятно) терагерцовый источник, излучающий практически изотропно. В сверхсветовом и слабо досветовом режимах реализация такого источника затруднена из-за генерации черенковского конуса или фазово-согласованной волны, соответственно. Это подтверждает Рисунок 1.19(a), где для GaP и ZnTe приведено распределение интегрированной по времени интенсивности

$$I(x) = \int_{-\infty}^{\infty} dt B_y^2(z = L+, x, t). \quad (1.51)$$

Согласно Рисунку 1.19(a), распределение $I(x)$ для GaP толщиной 2 мм в 3,3 раза уже, чем для ZnTe той же толщины (в расчете для ZnTe использовалась реалистичная четырех-резонансная модель дисперсии диэлектрической проницаемости). Заметим, однако, что различие в ширине $I(x)$ между GaP и ZnTe становится менее выраженным для более

тонких кристаллов ZnTe. Например, для ZnTe толщиной 200 мкм, использованного в эксперименте [139], ширина $I(x)$ составляет 89 мкм. Это меньше, чем для ZnTe толщиной 2 мм (142 мкм), но всё ещё более чем в два раза превышает значение 43 мкм для GaP толщиной 2 мм. Для получения ширины $I(x)$, сравнимой с GaP, толщина кристалла ZnTe должна быть всего 50 мкм. Хотя величина терагерцовой интенсивности для ZnTe толщиной 50 мкм примерно в ~ 4 раза выше, чем для GaP толщиной 2 мм (прежде всего, из-за большей нелинейности), столь тонкие (50 мкм) кристаллы неудобны для практического использования.

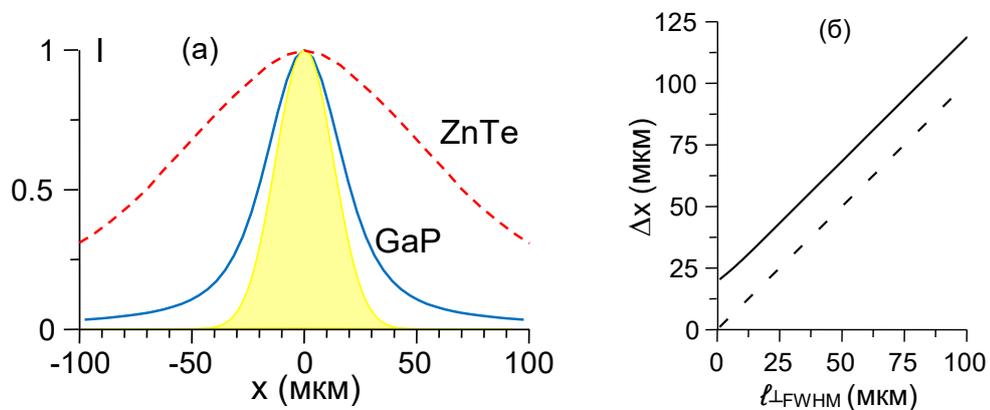


Рисунок 1.19. (а) Нормированные распределения $I(x)$ для кристаллов GaP (сплошная линия) и ZnTe (штриховая линия) толщиной 2 мм, возбуждаемых титан-сапфировым лазером ($\tau_{\text{FWHM}} = 150$ фс, $\ell_{\perp\text{FWHM}} = 30$ мкм). Закрашенная область показывает нормированный профиль оптической интенсивности. (б) Поперечный размер терагерцового ближнего поля Δx (при $\xi = 0$) в GaP в зависимости от поперечного размера оптической накачки $\ell_{\perp\text{FWHM}}$ (сплошная линия). Для расчета использовано уравнение (1.52) с $\tau_{\text{FWHM}} = 150$ фс фс. Пунктирная прямая $\Delta x = \ell_{\perp\text{FWHM}}$ показана для сравнения.

С практической точки зрения возможность уменьшения размера излучающей области на выходной поверхности нелинейного кристалла может быть важна, например, для улучшения разрешения терагерцовой эмиссионной микроскопии [140], [141], как аналог ближнепольной терагерцовой апертурной микроскопии. В этой методике образцы наносятся непосредственно на выходную поверхность нелинейного кристалла (в работах [140], [141] использовался ZnTe) и освещаются генерируемым в кристалле терагерцовым излучением в режиме ближнего поля. Разрешение терагерцовых изображений,

полученных с помощью терагерцового эмиссионного микроскопа, определяется в основном размером терагерцового пятна на выходной поверхности кристалла и может быть увеличено, в принципе, за счёт использования сильно досветового режима генерации терагерцового излучения в GaP.

Для возможного улучшения разрешения терагерцовой эмиссионной микроскопии рассмотрим общий вопрос: существуют ли принципиальные ограничения на минимальный размер выходного терагерцового пятна даже при бесконечно резкой ($\ell_{\perp} \rightarrow 0$) фокусировке лазерного импульса накачки? Для оценки минимального размера ближнего поля, формируемого вынужденным импульсом внутри кристалла, вычислим обратное фурье-преобразование от $\tilde{B}_y = -Re^{-i\omega z/V}$ (из уравнения (1.12)) аналитически в бездисперсионном приближении ($\varepsilon_c(\omega) \approx n_t^2$). Для сильно сфокусированного лазерного импульса с $\ell_{\perp} \ll c\tau(n_g^2 - n_t^2)^{-1/2}$ получаем:

$$B_y(x, \xi) = \frac{4\pi n_g p_x \ell_{\perp}}{c\tau \sqrt{n_g^2 - n_t^2}} \operatorname{Re}[1 - \sqrt{\pi} u e^{u^2} \operatorname{erfc}(u)] \quad (1.52)$$

где $\operatorname{erfc}(u)$ - дополнительная функция ошибок, а $u = |x|(n_g^2 - n_t^2)^{1/2}/(c\tau) - i\xi/\tau$. Поскольку ℓ_{\perp} не входит в параметр u , пространственное распределение ближнего поля, создаваемого сильно сфокусированным лазерным импульсом, не зависит от ℓ_{\perp} . Амплитуда поля также не зависит от ℓ_{\perp} при фиксированной мощности лазерного импульса $p_x \ell_{\perp} = \text{const}$. Таким образом, ширина по попувысоте распределения (1.52) вдоль оси x при $\xi = 0$ (в середине импульса) даёт минимально возможный размер ближнего поля:

$$(\Delta x)_{\min} \approx 0.87 c\tau (n_g^2 - n_t^2)^{-1/2}. \quad (1.53)$$

Интересно, что согласно (1.53) $(\Delta x)_{\min}$ пропорционально длительности лазерного импульса τ . Например, для $\tau_{FWHM} = 150$ фс получаем $(\Delta x)_{\min} \approx 19$ мкм. Минимальная ширина $(\delta x)_{\min}$ распределения интенсивности $B_y^2(x, \xi = 0)$ более чем в два раза меньше:

$$(\delta x)_{\min} \approx 0.41 c\tau (n_g^2 - n_t^2)^{-1/2}, \quad (1.54)$$

то есть $(\delta x)_{\min} \approx 9$ мкм для $\tau_{FWHM} = 150$ фс. Рисунок 1.19(б), построенный на основе точного расчета обратного фурье-преобразования с $\tilde{B}_y = -Re^{-i\omega z/V}$, показывает, что поперечный размер (при $\xi = 0$) ближнего поля Δx действительно стремится к $(\Delta x)_{\min}$ в пределе $\ell_{\perp} \rightarrow 0$. Примечательно, что разница между поперечными размерами ближнего

поля и лазерного импульса составляет примерно $(\Delta x)_{\min}$ в широком интервале ℓ_{\perp} (две линии на Рисунке 1.19(б) практически параллельны).

При прохождении терагерцового поля через границу GaP-воздух, как показывают расчеты, происходит уширение поперечного распределения интенсивности примерно в 1,5 раза. Этот эффект можно объяснить различным фазовым набегом, который испытывают пространственные гармоники терагерцового излучения (с разными g) при прохождении через границу. Таким образом, минимально возможный размер выходного терагерцового пятна на выходной границе кристалла GaP, возбуждаемого титан-сапфировым лазером, составляет ≈ 16 мкм для $\tau_{FWHM} = 150$ фс. Для дальнейшего уменьшения размера пятна необходимо использовать более короткие лазерные импульсы, однако это неизбежно приведёт к смещению генерируемого терагерцового спектра в область более высоких частот и генерации синхронизованного излучения, приводящего к расширению терагерцового пятна на выходе из кристалла (аналогично генерации в кристалле ZnTe, см. Рисунок 1.13(б)).

1.6. Выводы по главе 1

Разработана теория, описывающую генерацию терагерцового излучения при оптическом выпрямлении в слое электрооптического материала фемтосекундных лазерных импульсов, сфокусированных в линию (с помощью цилиндрической линзы). Получены аналитические выражения для поля и энергии генерируемого излучения, которые включают параметры импульса (ширину, длительность, групповую скорость), а также свойства материала слоя (дисперсию и поглощение терагерцовых волн в кристалле). Рассмотрена динамика формирования терагерцового поля в двух возможных режимах: когда оптическая групповая скорость больше, чем максимальная фазовая скорость распространяющихся терагерцовых волн (сверхсветовой режим) и когда она меньше (досветовой режим).

В сверхсветовом режиме возбуждения результирующее терагерцовое поле можно представить как суперпозицию свободного и вынужденного терагерцовых импульсов, которые формируются при входе оптической накачки в слой кристалла. Первоначально импульсы перекрываются и частично компенсируют друг друга, а затем, при распространении вглубь кристалла, разделяются из-за разницы их скоростей, при этом до разделения амплитуда результирующего терагерцового поля растёт линейно. На большем

расстоянии, формируются отдельные свободный и вынужденные импульсы, при этом свободный импульс испытывает дисперсионное распывание и линейное поглощение, а вынужденный униполярный импульс распространения вместе с оптической накачкой без изменения формы (при условии неизменной накачки).

В досветовом случае общее терагерцовое поле можно также разделить на свободные и вынужденные волны. Однако из-за фазового синхронизма эти волны не разделяются в пространстве. В этом случае удобнее разделить динамику на два этапа формирования поля, переход между которыми определяются минимальной длиной когерентности парциальных частот генерируемого излучения. На первом этапе растет амплитуда волнового пакета без существенного изменения его формы. На втором – растет длина пакета без существенного изменения амплитуды. Центральная частота заполнения волнового пакета определяется условием синхронизма (равенства групповой скорости лазерного импульса и фазовой скорости волны). Длина волнового пакета ограничена поглощением терагерцового излучения.

Для различных экспериментальных реализаций, соответствующих как сверхсветовому, так и досветовому режимам, исследовано влияние поперечного размера и длины кристалла на спектр и эффективность генерируемого излучения. Рассмотрено влияние черенковского механизма излучения при острой фокусировке накачки. Предсказаны оптимальные параметры накачки, позволяющие максимизировать эффективность конверсии. В случае накачки кристалла ZnTe фемтосекундным излучением титан-сапфирового лазера (на длине волны 800 нм) толщину кристалла желательно выбирать в интервале 1-3 мм, а лазерный пучок должен быть сфокусирован в размер 10-20 мкм. В случае накачки кристалла GaAs излучением фемтосекундного волоконного лазера (на длине волны ~ 1,5 мкм), толщину кристалла следует брать настолько большой, насколько это допускает дисперсионное уширение лазерного импульса, т. е. около 1 см для 100-200 фс импульсов, при этом лазерный пучок должен быть сфокусирован в размер 30-40 мкм. Указанные рекомендации применимы для интенсивностей ниже ~100 МВт/см², для которых двухфотонное поглощение оптической накачки пренебрежимо мало.

Для сильносфокусированного лазерного пучка использование сильно досветового режима генерации предоставляет практически интересную возможность уменьшить размер терагерцового пятна на выходной поверхности кристалла. В частности, для

кристалла GaP этот размер может быть в 2 – 3 раза меньше, чем в ZnTe при накачке излучением титан-сапфировым лазером. Данный эффект может быть использован, например, для повышения разрешения безапертурной терагерцовой ближнепольной микроскопии.

Показано, что обычно используемые формулы Френеля и закон Снелля для свободных импульсов неприменимы для расчета прохождения и отражения вынужденных терагерцовых импульсов на выходе нелинейного кристалла. Введены аналогичные формулы, в которых низкочастотный показатель преломления в терагерцовом диапазоне должен заменен на оптический групповой индекс. В случае наклонного падения вынужденного импульса на границу возможно подавление как отраженной волны с сохранением прошедшей, так и подавление обеих волн.

Глава 2. Генерация терагерцового излучения скошенными лазерными импульсами

В данной главе приведены теоретические и экспериментальные исследования генерации терагерцового излучения скошенными лазерными импульсами, т.е. импульсами, у которых фронт интенсивности наклонен (скошен) относительно фазовых фронтов. Поскольку источник терагерцового излучения (нелинейная поляризация) связан именно с огибающей лазерного импульса, то скос фронта интенсивности позволяет уменьшить эффективную скорость терагерцового источника и тем самым реализовать синхронизованную генерацию в кристаллах, где групповая скорость оптического импульса превышает максимальную фазовую скорость терагерцового излучения.

Для создания скошенных лазерных импульсов может быть использована дифракционная решетка (в результате дифракции в ненулевой порядок лазерный импульс автоматически приобретает скос фронта интенсивности), или эшелон – профилированное в виде ступенек зеркало, формирующее при отражении из обычного лазерного пучка множество пучков, сдвинутых относительно друг друга в пространстве. В зависимости от конкретной экспериментальной реализации формирователь скошенного лазерного импульса может быть расположен как рядом с кристаллом-генератором, так и на расстоянии. В последнем случае, необходимо использовать оптическую систему для переноса изображения в кристалл-генератор. Важно, что скошенные лазерные импульсы могут испытывать сильное дисперсионное или дифракционное расплывание (при формировании решеткой или эшелонном, соответственно). В ряде случаев этот фактор может являться существенным.

Глава разделена на теоретическую и экспериментальную части. Теоретическая часть состоит из нескольких параграфов.

- В первых двух параграфах рассмотрена структура и динамика формирования поля терагерцового излучения в модельной задаче, где движущийся источник терагерцового излучения (нелинейная поляризация) обладает фиксированной формой. Получены аналитические выражения для терагерцовых полей и определены характерные длины их формирования в различных режимах генерации (когда угол скоса достаточен или недостаточен для синхронизованной генерации терагерцовых волн). Данная теория может быть применима к различным экспериментальным схемам, использующие

лазерные импульсы со скошенным фронтом интенсивности (формируемыми решеткой или эшеленом). Проведены конкретные расчеты и даны рекомендации для достижения максимальной эффективности в кристаллах LiNbO_3 и GaAs .

- В третьем параграфе представлены более точные теоретические расчеты для вполне определенной классической схемы, когда скошенный лазерный импульс создается в результате дифракции на отдельно расположенной решетке, а затем переносится с помощью оптической системы в кристалл (например, LiNbO_3) в виде призмы. Расчеты проведены для обобщенной геометрии при произвольном угле наклона плоскости переноса изображения дифракционной решетки. Показано, что уменьшение угла переноса решетки существенно не влияет на эффективность конверсии, но приводит к ухудшению качества терагерцового пучка. Предложен способ улучшения качества терагерцового пучка, который в том числе, позволяет также увеличить эффективность конверсии.

- В четвертом параграфе, на основе применения скошенных лазерных импульсов, предложена и рассчитана новая схема генерации терагерцового излучения. В отличие от классической схемы, рассмотренной в предыдущем параграфе, вместо призмоподобного кристалла LiNbO_3 предлагается использовать плоский слой из того же материала, помещенного между двумя согласующими призмами для ввода оптической накачки и вывода терагерцового излучения. Данная схема при сопоставимой эффективности с классической схемой позволяет масштабировать энергию генерируемого терагерцового излучения путем использования коммерчески доступных пластин LiNbO_3 большого (несколько сантиметров) диаметра и накачки широкоапертурными пучками высокой (тераваттной) мощности.

- В последнем пятом параграфе представлена теория генерации для схемы, когда дифракционная решетка нанесена на входную поверхность электрооптического кристалла. В отличие от проведенных ранее расчетов другими научными группами, для данной схемы предложено использование в качестве накачки оптические импульсы с заранее подобранной частотной модуляцией, позволяющей формировать спектрально-ограниченный импульс около выходной границы кристалла LiNbO_3 . Это позволяет уменьшить терагерцовое поглощение и повысить эффективность оптико-терагерцовой конверсии.

Экспериментальная часть состоит из двух параграфов.

- В первом параграфе исследована генерация терагерцового излучения в классической схеме, когда оптическое выпрямление скошенного лазерного импульса происходит в кристалле LiNbO_3 в виде призмы. Исследовано влияние температуры, длительности импульса и длины кристалла на эффективность конверсии в зависимости от энергии оптической накачки. Приведена оценка влияния керровской нелинейности на насыщение эффективности.

- Во втором параграфе экспериментально исследована новая схема генерации, предложенная в четвертом параграфе теоретической части. Проведено прямое сравнение с классической схемой генерации.

Основные результаты главы опубликованы в работах [A3, A9, A12, A13, A16, A19, A23].

2.1. Теоретическое исследование

В данном параграфе рассматривается как общая теория, и так и расчеты для определенных экспериментальных схем генерации терагерцового излучения фемтосекундными лазерными импульсами со скошенным фронтом интенсивности, распространяющихся в электрооптическом кристалле. Для аналитического описания структуры и динамики формирования терагерцового поля (в пп. 2.1.1, 2.1.2 и 2.1.5) используется подход, развитый в главе 1. Для численных расчетов экспериментальных схем в режиме оптимальной, близкой к синхронизму, генерации (в пп. 2.1.4 и 2.1.4) используется приближенный метод медленно меняющихся амплитуд, дающий при таком режиме хорошее согласие с точными расчетами.

2.1.1. Стационарный режим генерации в однородной среде

Рассмотрим вначале генерацию терагерцового излучения скошенным лазерным импульсом (титан-сапфирового лазера) в бесконечном электрооптическом кристалле (в качестве примера будет рассмотрен наиболее используемый кристалл LiNbO_3). Геометрия задачи показана на Рисунке 2.1. Фемтосекундный лазерный импульс распространяется в кристалле вдоль направления x с групповой скоростью $V = c/n_g$. Фронт интенсивности импульса наклонён под углом α относительно фазовых фронтов. Будем пренебрегаем изменением профиля импульса из-за линейного поглощения (обычно слабого в таких кристаллах, как LiNbO_3), материальной дисперсии и

многофотонных процессов (что выполняется при не слишком высоких интенсивностях накачки). Кроме того, не будем учитывать влияние скоса фронта интенсивности на расплывание импульса, например, угловую дисперсию, возникающую из-за скоса фронта интенсивности [142]. Это позволяет понять структуру электромагнитного поля. Тем менее, учет угловой дисперсии важен при большом угле скоса фронта интенсивности, как в случае LiNbO_3 , и это учет будет проведен при численных расчетах в пп 2.1.3-2.1.5.

Как и в главе 1, будем рассматривать двумерную задачу, когда оптический импульс бесконечен в одном направлении и имеет конечную ширину в другом направлении. Двумерный случай не требует столь громоздких вычислений, как трёхмерный случай фокусировки в пятно. В то же время он позволяет исследовать влияние фокусировки лазера на амплитудные характеристики поля и эффективность преобразования.

В указанных приближениях нелинейная поляризация, индуцированная в кристалле посредством оптического выпрямления, может быть записана в виде

$$\mathbf{P}^{\text{NL}} = \mathbf{p}F(\xi - y/V_y)G(y), \quad (2.1)$$

где функция $G(y)$ описывает поперечный размер оптического пучка; функция $F(\xi)$ представляет временную огибающую оптической интенсивности, $\xi = t - x/V$, и $V_y = V \operatorname{ctg} \alpha$. При расчетах будем использовать гауссовы функции $G(y)$ и $F(\xi)$ (см. выражения (1.2)). Также будем рассматривать типичную экспериментальную конфигурацию $p_x = p_y = 0$ и $p_z = d_{33}E_0^2 \neq 0$ (E_0 – поле оптического импульса в кристалле), аналогично п. 1.4.1 при сильно сверхсветовом режиме генерации в LiNbO_3 . Дисперсию фонон-поляритов в LiNbO_3 будем описывать одно-резонансной формулой (1.4) с двумя частотами соударений $\gamma/(2\pi) = 0.08$ ТГц and 2.3ТГц при температурах кристалла 10 К и 300 К, соответственно. Остальные параметры аналогичны п. 1.4.1: $\omega_{\text{TO}}/(2\pi) = 7,44$ ТГц, $\varepsilon_0 = 26$, $\varepsilon_\infty = 10$, $n_g = 2,23$, нелинейный коэффициент $d_{33} = 166$ пм/В. Как и ранее, будем рассматривать только нижнечастотную ветвь фонон-поляритонов (ниже ω_{TO}), поскольку возбуждение высокочастотной ветви (выше частоты продольных оптических фононов ω_{LO}) требует очень коротких оптических импульсов.

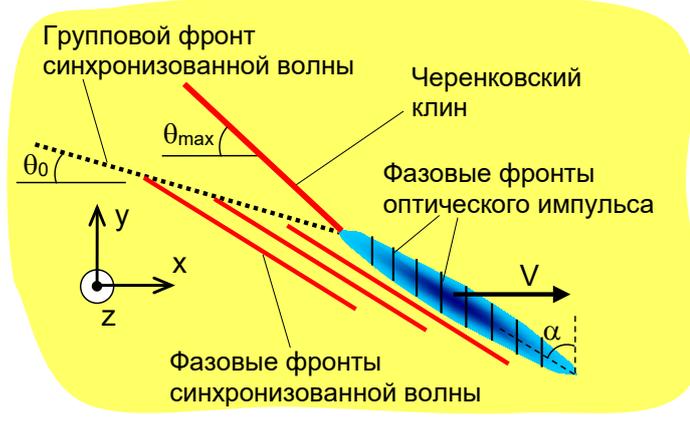


Рисунок 2.1. Картина структуры поля терагерцового излучения при оптическом выпрямлении лазерного импульса со скошенным (по углом α) фронтом интенсивности, распространяющегося в электрооптическом кристалле с групповой скоростью V .

Для нахождения терагерцового излучения, генерируемого движущейся нелинейной поляризацией (2.1), используем уравнения Максвелла (1.3). После преобразования получим следующую систему:

$$\frac{\partial E_z}{\partial y} = -\frac{1}{c} \frac{\partial B_x}{\partial \xi}, \quad (2.2a)$$

$$\frac{\partial}{\partial \xi} (E_z + n_g^{-1} B_y) = 0, \quad (2.2б)$$

$$-\frac{1}{V} \frac{\partial B_y}{\partial \xi} - \frac{\partial B_x}{\partial y} = \frac{1}{c} \frac{\partial D_z}{\partial \xi} + \frac{4\pi}{c} \frac{\partial P_z^{\text{NL}}}{\partial \xi}. \quad (2.2в)$$

Применяя преобразование Фурье по переменным ξ и y , и, используя материальное соотношение $\tilde{D}_z(\omega, g) = \varepsilon(\omega) \tilde{E}_z(\omega, g)$ (ω и g – фурье-переменные, соответствующие ξ и y соответственно, а $\varepsilon(\omega)$ задается как и прежде выражением (1.4)), получаем:

$$\tilde{E}_z(\omega, g) = \frac{4\pi p_z}{n_g^2 - \varepsilon(\omega) + c^2 g^2 / \omega^2} \tilde{F}(\omega) \tilde{G}(g - \omega/V_y), \quad (2.3)$$

где $\tilde{F}(\omega) = (\tau/2\sqrt{\pi}) e^{-\omega^2 \tau^2/4}$ и $\tilde{G}(g) = (\ell_{\perp}/2\sqrt{\pi}) e^{-g^2 \ell_{\perp}^2/4}$ – фурье-образы $F(\xi)$ и $G(y)$, соответственно. Решение в переменных ξ , y запишется через обратное Фурье преобразование:

$$E_z(\xi, y) = \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \int_{-\infty}^{\infty} dg \tilde{E}_z(\omega, g) e^{i\omega\xi - igy}. \quad (2.4)$$

Для понимания процесса генерации терагерцового излучения рассмотрим сначала предельный случай бесконечно-плоского оптического импульса ($\ell_{\perp} \rightarrow \infty$). В этом пределе функция $\tilde{G}(g - \omega/V_y)$ в уравнении (2.3) переходит в дельта-функцию $\delta(g - \omega/V_y)$, что даёт

$$E_z(\xi, y) = 4\pi p_z \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \frac{\tilde{F}(\omega) e^{i\omega(\xi - y/V_y)}}{(n_g/\cos \alpha)^2 - \varepsilon(\omega)}. \quad (2.5)$$

Согласно уравнению (2.5), генерируемое терагерцовое поле в этом пределе зависит только от комбинации переменных $\eta = \xi - y/V_y$: $E_z(\xi, y) = E_z(\eta)$.

Интеграл (2.5) аналогичен интегралу, описывающему генерацию терагерцового излучения обычным (нескошенным) оптическим импульсом, но в виртуальной среде с оптическим групповым показателем преломления $n_g/\cos \alpha$ (см. уравнение (1.18), где оставлено только вынужденное решение.). Изменение угла скоса α эквивалентно изменению группового показателя преломления виртуальной среды и, таким образом, позволяет реализовать различные режимы генерации терагерцового излучения.

В частности, угол скоса α можно выбрать так, чтобы выполнялось условие фазового согласования $\varepsilon(\omega) - n_g^2/\cos^2 \alpha = 0$ (при $\gamma \rightarrow 0$) на выбранной терагерцовой частоте ω . В рассматриваемых нами случае сверхсветового материала ($n_g^2 < \varepsilon_0$) частота синхронизма может быть настроена во всём интервале $0 < \omega < \omega_{\text{ТО}}$ путём изменения угла скоса в пределах $\alpha_{\text{cr}} < \alpha < 90^\circ$, где α_{cr} задаётся выражением

$$\cos \alpha_{\text{cr}} = n_g/\sqrt{\varepsilon_0}. \quad (2.6)$$

Используя параметры LiNbO_3 (см. п. 1.4.1), получаем $\alpha_{\text{cr}} \approx 64^\circ$.

Рассчитаем интеграл (2.5) аналитически. При $\alpha < \alpha_{\text{cr}}$ подынтегральное выражение в (2.5) не имеет особенностей. Поэтому, если в первом приближении пренебречь дисперсией и поглощением в терагерцовом диапазоне и считать $\varepsilon(\omega)$ действительной постоянной ε_0 , то интегрирование (2.5) даёт (более точно, требуется дополнительное условие на длительность импульса $\omega_{\text{ТО}}^2 \tau^2 \gg (\varepsilon_0 - \varepsilon_{\infty}) \left[\varepsilon_0 - (n_g/\cos \alpha)^2 \right]^{-1}$ для избежания спектральных искажений):

$$E_z(\eta) = \frac{4\pi p_z}{(n_g/\cos \alpha)^2 - \varepsilon_0} F(\eta). \quad (2.7)$$

Уравнение (2.7) предсказывает генерацию терагерцового импульса гауссовой формы, повторяющего огибающую оптической интенсивности. Физически этот импульс представляет собой ближнее поле нелинейного источника.

При $\alpha > \alpha_{\min}$ в подынтегральном выражении появляется особенность, и дисперсией уже нельзя пренебречь. Продолжая интегрирование в комплексную плоскость ω , решение можно представить как сумму двух компонент: ближнего поля движущегося источника и излучения за источником. Последнее определяется вычетами в полюсах, задаваемых уравнением $\varepsilon(\omega) - n_g^2 / \cos^2 \alpha = 0$ (см. также п. 1.2.1). Используя (1.4), находим положения полюсов $\omega = \pm \omega_0 + i\gamma/2$, где

$$\omega_0 = \omega_{\text{ТО}} \sqrt{\frac{n_g^2 - \varepsilon_0 \cos^2 \alpha}{n_g^2 - \varepsilon_\infty \cos^2 \alpha} - \frac{\gamma^2}{4\omega_{\text{ТО}}^2}}, \quad (2.8)$$

и вычисляем вклад вычетов (для $\eta > 0$):

$$E_z(\eta) = \frac{4\pi^{3/2} p_z \tau (\omega_{\text{ТО}}^2 - \omega_0^2 - \gamma^2/4)^2}{\omega_0 \omega_{\text{ТО}}^2 (\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty)} e^{-(\omega_0^2 - \gamma^2/4)\tau^2/4} e^{-\gamma\eta/2} \sin[\omega_0(\eta - \gamma\tau^2/4)]. \quad (2.9)$$

Как и в случае генерации синхронизованной волны обычным лазерным импульсом (см. выражение (1.24)), уравнение (2.9) описывает квазимонохроматический волновой пакет, распространяющийся за оптическим импульсом со скоростью $V \cos \alpha$ в направлении, перпендикулярном к фронту интенсивности (под углом α к оси x), и затухающий с декрементом $\gamma/(2V)$ по мере удаления от импульса.

Зависимость частоты ω_0 от угла наклона α для параметров LiNbO_3 при пренебрежимо малом затухании ($\gamma \approx 0$) показана на Рисунке 2.2(а). Поскольку в LiNbO_3 при комнатной температуре терагерцовое поглощение резко возрастает на частотах выше 1-2 ТГц [64], из Рисунка 2.2(а) видно, что наиболее подходящим для генерации терагерцового излучения является узкий интервал углов наклона $64,1^\circ - 65^\circ$. В криогенно охлаждённом LiNbO_3 благодаря значительно меньшему затуханию [64], можно генерировать более высокие частоты при больших углах наклона [40]. Оптимальная длительность лазерного импульса (для максимизации амплитуды синхронизованной волны) уже была рассмотрена ранее в п. 1.2.1 (см. обсуждение после формулы (1.24)): при фиксированной интенсивности накачки должно выполняться условие $\omega_0 \tau \approx \sqrt{2}$, а при фиксированной энергии ($p_z \tau = \text{const}$) длительность τ влияет на амплитуду терагерцового поля только через множитель $e^{-(\omega_0^2 - \gamma^2/4)\tau^2/4}$. В последнем

случае при укорочении оптического импульса амплитуда поля увеличивается, а потом выходит на насыщение при $\tau < \omega_0^{-1}$ (например, при $\tau_{FWHM} < 125$ для $\omega_0 = 2$ ТГц).

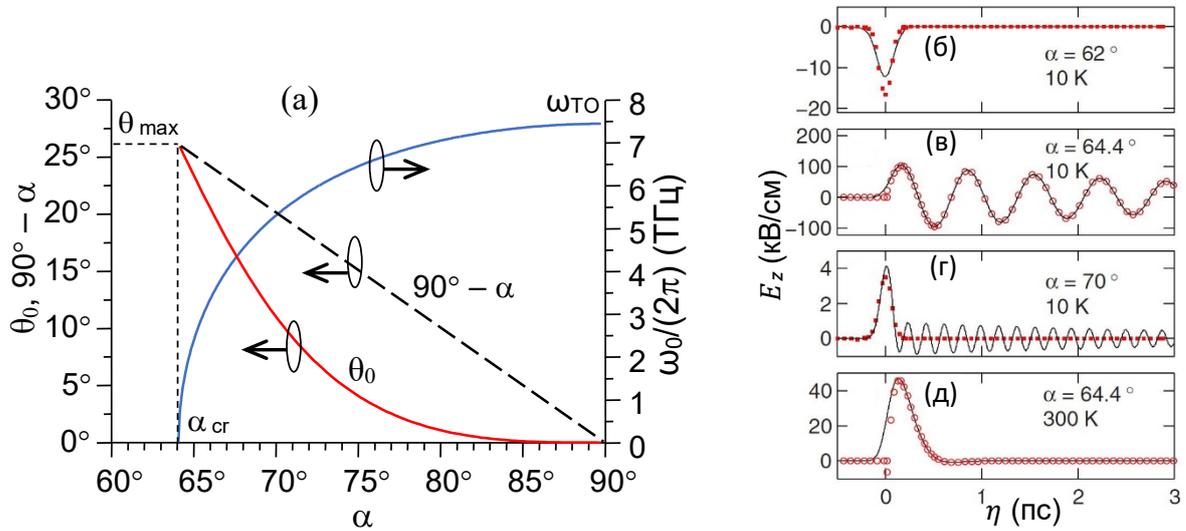


Рисунок 2.2. (а) Частота ω_0 , углы группового (θ_0) и фазового ($90^\circ - \alpha$) фронтов синхронизованной терагерцовой волны в зависимости от угла скоса угла α для кристалла LiNbO_3 с пренебрежимо малым затуханием. (б-д) Полное терагерцовое поле (сплошная линия), ближнее поле (закрашенные квадраты) и фазово-согласованная волна (пустые кружочки), построенные на основе уравнений (2.5), (2.7) и (2.9) соответственно, при $\tau_{FWHM} = 150$ фс, $I_0 = 10$ ГВт/см² и различных значений α и поглощения (температуры кристалла).

При $\omega_0 \tau \gg 1$ амплитуда фазово-согласованной волны (2.9) мала. Математически, гауссов множитель $\tilde{F}(\omega)$ зануляет вклад от полюсов $\pm\omega_0 + i\gamma/2$ в подынтегральном выражении (2.5). Следовательно, вклады вычетов в этих полюсах становятся пренебрежимо малыми. Тогда знаменатель в (2.5) можно аппроксимировать константой, что дает уравнение (2.7), определяющее ближнее поле нелинейного источника. Этот случай аналогичен рассмотренному в главе 1 сильно досветовому режиму генерации (см. п. 1.5.2).

На Рисунках 2.2(б-д) представлены осциллограммы $E_z(\eta)$, рассчитанные для LiNbO_3 численным интегрированием (2.5) (сплошная линия), а также с использованием приближенных формул (2.7) (сплошные квадраты) и (2.9) (полые кружочки). При обеих температурах (10 К и 300 К) генерируемое терагерцовое поле хорошо описывается

уравнением (2.9) для синхронизованной волны, когда угол скоса α немного превышает $\alpha_{cr} \approx 64,1^\circ$, т.е. в узком диапазоне $64,1^\circ < \alpha \leq 66^\circ$; при этом вклад ближнего поля пренебрежимо мал (см. Рисунки 2.2(в) и 2.2(д)). При слабом затухании (10 К) фазово-согласованная волна затухает медленно (см. Рисунок 2.2(в)), тогда как при сильном затухании (300 К) наблюдается экстремально сильное затухание, когда длина затухания становится меньше или сравнима с длиной синхронизованной волны (Рисунок 2.2(д)). При фиксированном угле $\alpha = 64,4^\circ$ амплитуда волны уменьшается вдвое при повышении температуры от 10 К до 300 К (см. Рисунки 2.2(в) и 2.2(д)). Если $\alpha < 64,1^\circ$, то фазово-согласованная волна отсутствует, и терагерцовое поле хорошо описывается уравнением (2.7) для ближнего поля (если α не слишком близок к $64,1^\circ$, см. Рисунок 2.2(б)). Для $\alpha > 66^\circ$ амплитуда фазово-согласованной волны становится незначительной, и основной пик терагерцового поля также хорошо описывается формулой (2.7) (см. Рисунок 2.2(г)).

Для расчета генерируемого поля при произвольном поперечном размере оптического импульса, подставим фурье-образ поля (2.3) в обратное Фурье преобразование (2.4) и воспользуемся методом контурного интегрирования, как сделано в п. 1.2.2. Учитывая только излучающееся поле (вклады от вычетов) и пренебрегая ближним полем (вклады от полу-бесконечных линий под 45° в комплексном фурье-пространстве), получаем (при $\gamma = 0$)

$$E_z(\xi, y) = \frac{8\pi^2 p_z}{c^2} \int_0^{\omega_{TO}} d\omega \frac{\omega^2}{g} \tilde{F}(\omega) \tilde{G}\left(g \pm \frac{\omega}{V_y}\right) \sin(\omega\xi - g|y|), \quad (2.10)$$

где $g = (\omega/c)[\varepsilon(\omega) - n_g^2]^{1/2}$, знак "+" берётся для $y < 0$, а знак "-" для $y > 0$.

Интеграл (2.10) может быть вычислен асимптотически для больших значений ξ с использованием метода стационарной фазы

$$E_z(\xi, y) \approx \frac{8\pi^{5/2} p_z \omega_s^2 \tilde{F}(\omega_s) \tilde{G}(g_s \pm \omega_s/V_y)}{g_s |g_s'' y|^{1/2} c^2} \times \sin\left[\omega_s \xi - g_s |y| - \frac{\pi}{4} \text{sgn}(g_s'')\right], \quad (2.11)$$

где g_s'' обозначает вторую производную по ω , вычисленную на частоте ω_s , которая определяется из условия:

$$V \frac{dg}{d\omega} = \frac{V\xi}{|y|} = \text{ctg } \theta, \quad (2.12)$$

где θ – половинный угол раствора клина с вершиной на движущемся лазерном импульсе $\xi = 0$. Уравнение (2.11) аналогично проанализированному ранее в п. 1.2.2 уравнению

(1.28), описывающее генерацию терагерцового излучения обычным (нескошенным) сфокусированным лазерным импульсом. В частности, это уравнение определяет угол θ_{\max} черенковского клина, создаваемого оптическим импульсом, и угловое распределение терагерцовой частоты внутри конуса. Так, максимальный угол черенковского клина соответствует нулевой частоте и равен

$$\sin \theta_{\max} = n_g / \sqrt{\epsilon_0} \quad (2.13)$$

(для LiNbO_3 $\theta_{\max} \approx 26^\circ$). Внутри черенковского клина частота возрастает при уменьшении θ , стремясь к ω_{TO} при $\theta \rightarrow 0$. Уравнения (2.6) и (2.13) дают $\sin \theta_{\max} = \cos \alpha_{\text{cr}}$, то есть $\theta_{\max} + \alpha_{\text{cr}} = 90^\circ$. Физический смысл данного соотношения можно легко понять. Действительно, черенковское излучение от сверхсветового источника можно рассматривать как суперпозицию парциальных плоских волн различных частот ω , распространяющихся под разными углами θ (см. уравнение (2.10)). Угол раскрытия θ_{\max} черенковского клина соответствует парциальной плоской волне с $\omega \rightarrow 0$ и максимальной фазовой скоростью $c/\sqrt{\epsilon_0}$. Парциальные плоские волны с более высокими частотами имеют меньшие фазовые скорости и распространяются под меньшими углами $\theta < \theta_{\max}$. Для эффективного возбуждения заданной частотной компоненты фронт интенсивности оптического импульса должен быть параллелен фазовому фронту компоненты: $\alpha = 90^\circ - \theta$. Таким образом, минимальный угол α , при котором может быть достигнуто фазовое согласование с частотной компонентой, определяется максимальным значением θ : $\alpha_{\text{cr}} = 90^\circ - \theta_{\max}$.

Наличие скоса у фронта интенсивности лазерного импульса дает несколько особенностей в структуре черенковского излучения, из-за наличия множителя $\tilde{G}(g_s \pm \omega_s/V_y)$ в уравнении (2.11). Во-первых, амплитуда терагерцового поля внутри черенковского конуса асимметрична относительно траектории лазерного луча: поле сильнее для $y > 0$ и слабее для $y < 0$. Во-вторых, максимум $\tilde{G}(g_s \pm \omega_s/V_y)$, достигаемый при $y > 0$ и $g_s - \omega_s/V_y = 0$, определяет угол θ_0 , под которым распространяется групповой фронт фазово-согласованной терагерцовой волны. Действительно, равенство $g_s - \omega_s/V_y = 0$ выполняется для $\omega_s = \omega_0$, где ω_0 – частота синхронизма, задаваемая уравнением (2.8) при $\gamma = 0$. Подстановка ω_0 в (2.12) дает угол θ_0 для группового фронта фазово-согласованной волны:

$$\operatorname{ctg} \theta_0 = \operatorname{tg} \alpha + \frac{\operatorname{ctg} \alpha}{n_g^2(\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty)} \left(\frac{n_g^2}{\cos^2 \alpha} - \varepsilon_\infty \right) \left(\frac{n_g^2}{\cos^2 \alpha} - \varepsilon_0 \right). \quad (2.14)$$

Зависимость θ_0 от α показана на Рисунке 2.2(а). Фазовые фронты фазово-синхронизованной волны, естественно, параллельны фронту интенсивности накачивающего оптического импульса, то есть наклонены под углом $90^\circ - \alpha$ к траектории лазера (см. Рисунок 2.1).

При $\alpha = \alpha_{cr}$ уравнение (2.14) дает $\theta_0 = 90^\circ - \alpha_{cr} = \theta_{\max}$. Таким образом, в этом случае групповой фронт синхронизованной волны, её фазовые фронты и черенковский конус параллельны друг другу и фронту интенсивности накачивающего оптического импульса. При $\alpha > \alpha_{cr}$, согласно уравнениям (2.14) и (2.13), все три угла различны: $\theta_0 < 90^\circ - \alpha < \theta_{\max}$ (Рисунок 2.2(а)).

Если синхронизованная волна не возбуждается ($\alpha < \alpha_{cr}$) или её групповой фронт и черенковский конус хорошо разделены в пространстве, т.е. α значительно (на несколько градусов для LiNbO_3) превышает α_{cr} , структуру черенковского конуса можно описать в бездисперсионном приближении ($\varepsilon(\omega) = \varepsilon_0$). Тогда интеграл (2.10) вычисляется аналитически:

$$E_z(\xi, y) = - \frac{2\pi^{3/2} p_z \ell_\perp \tau}{c \tau_\pm (\varepsilon_0 - n_g^2)^{1/2}} \frac{d}{d\zeta} F(\zeta, \tau_\pm). \quad (2.15)$$

В уравнении (2.15) $F(\zeta, \tau_\pm)$ – гауссова функция (1.2), где вместо ξ используется $\zeta = \xi - (|y|/c)(\varepsilon_0 - n_g^2)^{1/2}$ – координата поперёк черенковского клина (2.13), а вместо τ –

$$\tau_\pm = \left[\tau^2 + (\ell_\perp n_g / c)^2 (\operatorname{tg} \alpha \pm \operatorname{tg} \alpha_{cr})^2 \right]^{1/2} \quad (2.16)$$

для $y < 0$ и $y > 0$, соответственно. Согласно (2.15), распределение поля поперёк черенковского клина (2.13) задаётся производной огибающей интенсивности оптического импульса, аналогично случаю импульса без наклонного фронта (см. уравнение 1.33). Однако при возбуждении импульсом со скошенным фронтом эффективное характерное время τ_\pm гауссовой функции $F(\zeta, \tau_\pm)$ и, следовательно, толщина конуса различаются для $y < 0$ и $y > 0$ м распределение терагерцового поля поперёк конуса более плавное для $y < 0$, чем для $y > 0$. Максимальное значение терагерцового поля на черенковском конусе:

$$|E_z|_{\max} = \frac{(2\pi)^{3/2} p_z \ell_\perp \tau}{c \tau_\pm^2 (\varepsilon_0 - n_g^2)^{1/2}} e^{-1/2}. \quad (2.17)$$

достигаемое при $\zeta = \pm\tau_{\pm}/\sqrt{2}$, меньше для $y < 0$, чем для $y > 0$. Асимметрия картины излучения наиболее выражена при больших ℓ_{\perp} . Например, при характерных экспериментальных параметрах накачки (см. далее п. 2.2) $\ell_{\perp\text{FWHM}} \sim 1 - 2$ мм, $\tau_{\text{FWHM}} = 100 - 300$ фс и $\alpha \approx \alpha_{cr}$, τ_{+} примерно в 200 раз больше, чем τ_{-} . Следовательно, сегмент $y < 0$ черенковского клина пренебрежимо мал.

На Рисунке 2.3 показано пространственное распределение электрического поля E_z , рассчитанное численно на основе уравнений (2.3) и (2.4), для нескольких углов скоса и двух значений коэффициента затухания. Полученные картины поля могут быть интерпретированы с использованием описанных выше аналитических расчетов. В случае малого затухания (при криогенном охлаждении) характерные особенности возбуждения импульсами с наклонным фронтом выражены наиболее отчётливо (Рисунки 2.3(а)-2.3(в)). При $\alpha < \alpha_{cr}$ ($\alpha = 62^\circ$ на Рисунке 2.3(а)) генерируемое терагерцовое поле состоит из ближнего поля, локализованного в области нелинейного источника, и асимметричного черенковского конуса (нижняя часть конуса при $y < 0$ неразличима на из-за её слабости). Половинный угол раскрытия черенковского конуса θ_{\max} составляет около 26° , что согласуется с уравнением (2.13). Электрическое поле на конусе изменяется в направлении, нормальном к конусу, как первая производная огибающей интенсивности оптического импульса, то есть состоит из двух соседних импульсов противоположной полярности, согласно уравнению (2.15).

При $\alpha > \alpha_{cr}$ (Рисунки 2.3(б-г)) в картине излучения появляется синхронизованная волна. На Рисунке 2.3(б), где $\alpha = 64,4^\circ$ и, следовательно, α лишь незначительно превышает α_{cr} , групповой фронт синхронизованной волны практически совпадает с черенковским конусом ($\theta_0 \approx \theta_{\max}$, см. также Рисунок 2.2(а)), и волна проявляется как осциллирующий "хвост" за черенковским конусом. Частота осцилляций составляет около 1.5 ТГц, что согласуется с уравнением (2.8). Генерируемые терагерцовые поля более чем на порядок сильнее по сравнению с полем на Рисунке 2.2(а). При $\alpha = 65,6^\circ$ (Рисунок 2.3(в)) групповой фронт фазово-согласованной волны и черенковский конус хорошо разделены ($\theta_{\max} - \theta_0 \approx 5^\circ$, в соответствии с Рисунок 2.2(а)). Частота синхронизованной волны составляет около 3 ТГц, а ее амплитуда примерно в 2 раза меньше по сравнению с полем на Рисунке 2.3(б).

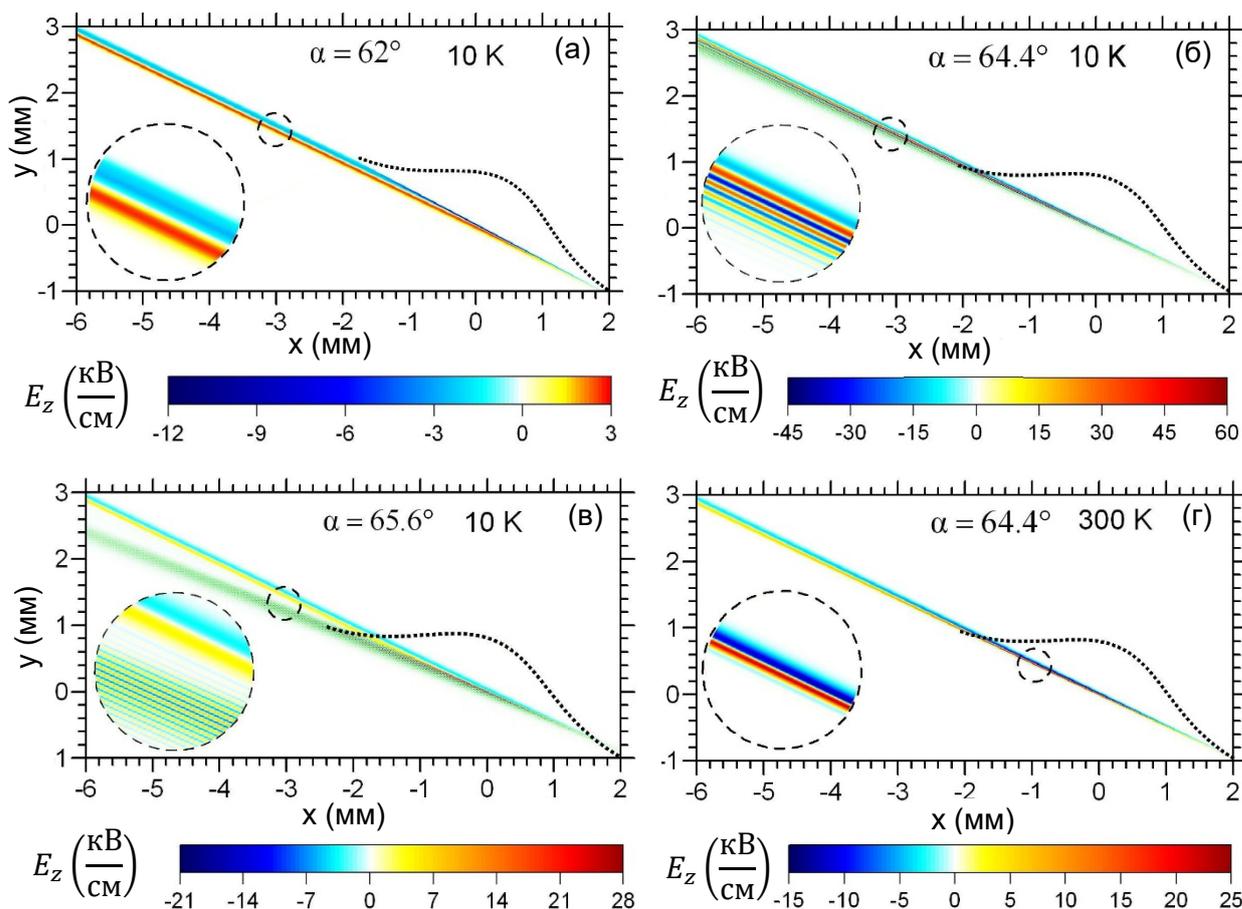


Рисунок 2.3. Мгновенные снимки электрического поля $E_z(x, y, t)$, генерируемого в LiNbO_3 скошенным импульсом титан-сапфирового лазера ($\tau_{FWHM} = 150$ фс, $\ell_{\perp FWHM} = 1$ мм, $I_0 = 10$ ГВт/см²). Температура и угол скоса α указаны на соответствующих картинах. Пунктирной линией показан поперечный профиль оптической интенсивности.

Интересно сравнить распределение терагерцового поля поперёк черенковского конуса на Рисунках 2.3(а-в). На Рисунках 2.3(а) и 2.3(в) распределение более плавное, а поле слабее, чем на Рисунке 2.3(б). Это можно объяснить большими значениями эффективного характеристического времени τ_{\perp} для Рисунков 2.3(а) и 2.3(в) по сравнению с Рисунком 2.3(б) (см. уравнения (2.15) и (2.16)).

Сравнивая картины излучения при криогенной и комнатной температурах (для случая $\alpha = 64.4^\circ$, см. Рисунки 2.3(б) и 2.3(г)), можно заметить, что синхронизованная волна практически не возбуждается, а амплитуда генерируемых терагерцовых полей на Рисунке 2.3(г) примерно вдвое меньше, чем на Рисунке 2.3(б), что хорошо согласуется с предсказаниями одномерной модели (см. Рисунки 2.2(в),(д)). Однако стоит отметить, что

даже при использованном в расчетах $\ell_{\perp} = 1$ мм, значительно превышающем длину генерируемой терагерцовой волны в материале, терагерцовое поле составляет примерно половину значения, предсказанного в приближении плоского импульса накачки (Рисунки 2.2 (в) и 2.2(д)]. Лишь при $\ell_{\perp} > 5$ мм обеспечивается хорошее согласие двумерных расчетов с одномерными. Объяснение этого эффекта будет дано в следующем параграфе данной главы.

2.1.2. Динамика формирования терагерцового поля

Рассмотрим теперь генерацию терагерцового излучения лазерными импульсами со скошенным фронтом интенсивности с учетом входной границы кристалла. Пусть скошенный лазерный импульс падает по нормали (вдоль оси x) на входную границу $x = 0$ полубесконечного электрооптического кристалла (см. Рисунок 2.4). Поскольку $V < c$, то угол скоса импульса уменьшается на входной границе, и внутри кристалле становится равным α (в соответствии с геометрией задачи п. 2.1.1). При выполнении численных расчетов будем использовать, как и ранее, однорезонансную модель дисперсии фонон-поляритонов и рассматривать два материала: стехиометрический LiNbO_3 легированный 0.68 моль% MgO (комнатной и криогенной температуры) при накачке излучением титан-сапфирового лазера, а также GaAs (комнатной температуры) при накачке излучением на длине волны 1,8 мкм и 3,5 мкм. Некоторые параметры для данного LiNbO_3 немного отличаются от рассмотренной в п.2.1 случая, а именно: $\varepsilon_0 = 22,4$, $\gamma/2\pi = 0,03$ ТГц и $\varepsilon_0 = 24,4$, $\gamma/2\pi = 1,3$ ТГц [50] при комнатной и криогенных температурах, соответственно. Для GaAs использовались параметры из п. 1.4.2 за исключением $\gamma/2\pi = 0,25$, а также при накачке на 1,8 мкм и 3,5 мкм использовались $n_g = 3,5$ и $n_g = 3,36$, соответственно.

Будем использовать те же приближения, что и в предыдущем параграфе данной главы. Тогда, используя уравнения Максвелла, для фурье-образа электрического поля можно записать следующее уравнение

$$\frac{\partial^2 \tilde{E}_z}{\partial x^2} + \kappa^2(x) \tilde{E}_z = -\frac{4\pi\omega^2 p}{c^2} \tilde{F}(\omega) \tilde{G} \left(g - \frac{\omega}{V_y} \right) \Pi(x) e^{-i\omega x/V}, \quad (2.18)$$

где $\kappa^2 = \kappa_v^2 = (\omega/c)^2 - g^2$ для $x < 0$ и $\kappa^2 = \kappa_c^2 = (\omega/c)^2 \varepsilon - g^2$ для $x > 0$; $\Pi(x)$ - функция Хевисайда. Решая уравнение (2.18) в однородных областях $x < 0$ и $x > 0$, а затем сшивая решения с помощью граничных условий непрерывности \tilde{E}_z и $\tilde{B}_y = -(ic/\omega) \partial \tilde{E}_z / \partial x$ при $x = 0$, получаем

$$\tilde{E}_z(\omega, g, x) = A \begin{cases} \frac{\kappa_c - \omega/V}{\kappa_v + \kappa_c} e^{i\kappa_v x}, & x < 0 \\ e^{-i\omega x/V} - \frac{\kappa_v + \omega/V}{\kappa_v + \kappa_c} e^{-i\kappa_c x}, & x > 0 \end{cases} \quad (2.19)$$

где $A = 4\pi p \tilde{F}(\omega) \tilde{G}(g - \omega/V_y) / (n_g^2 - \varepsilon + c^2 g^2 / \omega^2)$. Решение (2.19) преобразуется в пространство (t, y, x) путем взятия обратного преобразования Фурье (2.4).

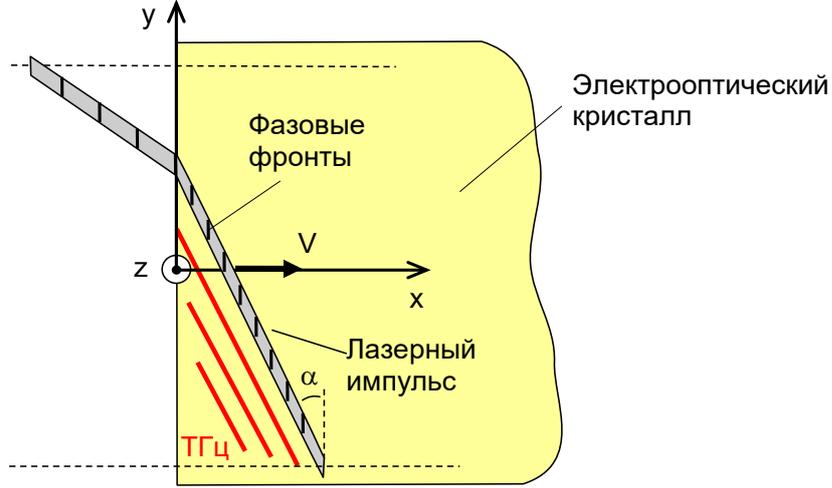


Рисунок 2.4. Геометрия задачи для расчета динамики формирования терагерцового излучения лазерным импульсом со скошенным фронтом интенсивности, падающего на границу электрооптического материала.

Для понимания динамики формирования терагерцового поля в кристалле рассмотрим сначала предельный случай бесконечно-плоского оптического импульса ($\ell_{\perp} \rightarrow \infty$). Тогда в области $x > 0$ из уравнения (2.19) получаем

$$E_z(t, y, x) = 4\pi p \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \frac{\tilde{F}(\omega) e^{i\omega(t-y/V_y)}}{(n_g / \cos \alpha)^2 - \varepsilon(\omega)} \left(e^{-i\omega x/V} - \frac{n_v + n_g}{n_v + n_c} e^{-in_c \omega x/c} \right) \quad (2.20)$$

где $n_v = (1 - n_g^2 \operatorname{tg}^2 \alpha)^{1/2}$ и $n_c = (\varepsilon - n_g^2 \operatorname{tg}^2 \alpha)^{1/2}$. Согласно уравнению (2.20), генерируемое терагерцовое поле в этом пределе зависит только от x и комбинации переменных $\xi = t - y/V_y$: $E_z(t, y, x) = E_z(\xi, x)$. Уравнением (2.20) полностью аналогично уравнению (1.18), анализ которого был проведен в п. 1.2.1 путем представления полного поля в виде суперпозиции вынужденного и свободного импульсов, определяемых первым и вторым слагаемыми в уравнении (2.20), соответственно (с физической точки зрения, вынужденный волновой импульс

представляет собой ближнее поле, а свободный волновой импульс – переходное излучение). Некоторым отличием является наличие коэффициента n_c в показателе экспоненты свободного решения (а также присутствие в множителе перед экспонентой коэффициента n_v). Как было показано в п. 1.2.1, динамика формирования поля существенно зависит от того, выполняется условие синхронизма или нет. Для лазерного импульса со скошенным фронтом интенсивности это эквивалентно условию на угол скоса α (см. п. 2.1.1): если $\alpha < \alpha_{cr}$ (для α_{cr} см. выражение (2.6), которое для используемых в данном разделе параметров дает $\alpha_{cr} \approx 61,9^\circ$) то синхронизованная волна не возбуждается, в противном случае, при $\alpha > \alpha_{cr}$, возможно возбуждение синхронизованной волны.

Динамику поля в разных режимах генерации иллюстрируют Рисунки 2.5 и 2.6 (расчет поля проведен на основании уравнения (2.20)). При $\alpha = 61,4^\circ < \alpha_{cr}$ (см. Рисунок 2.5(a)) картина излучения состоит преимущественно из двух пространственных импульсов с противоположными знаками: вынужденного волнового импульса (ближнее поле), ориентированного под углом $\alpha = 61,4^\circ$, и свободного волнового импульса (переходное излучение), ориентированного под углом $\beta = \arctan(n_g n_{c0}^{-1} \operatorname{tg} \alpha) = 59,8^\circ$, где $n_{c0} = (\varepsilon_0 - n_g^2 \operatorname{tg}^2 \alpha)^{1/2}$. Со временем вся картина излучения перемещается со скоростью V_y вдоль оси y , поэтому импульсы распространяются с разными скоростями вдоль оси x . Около границы оба пространственных импульса накладываются и почти полностью компенсируют друг друга. Потом, в результате пространственного разделения, амплитуда терагерцового поля сначала растёт с увеличением x (см. также осциллограммы на Рисунке 2.6(a) для $x = 0.05, 0.2$ мм). В бездисперсионном приближении (см. п. 1.2.1) этот рост может быть описан выражением

$$E_z(\xi, x) \approx -2\pi r x (c n_g)^{-1} dF/d\eta, \quad (2.21)$$

где $\eta = \xi - x/V$. Длина вдоль оси x , на которой происходит полное разделение импульсов (по уровню полувысоты) определяется длиной разбегания

$$L_w = \frac{c \tau_{FWHM}}{n_{c0} - n_g} = \frac{c \tau_{FWHM}}{(\varepsilon_0 - n_g^2 \operatorname{tg}^2 \alpha)^{1/2} - n_g}. \quad (2.22)$$

(заметим, что при $\alpha = 0$ величина L_w совпадает с длиной разбегания, введённой в п. 1.2.1, и возрастает с увеличением α). Подставляя в выражение (2.22) параметры задачи, получаем $L_w \approx 0,4$ мм, что хорошо согласуется с Рисунком 2.5(a).

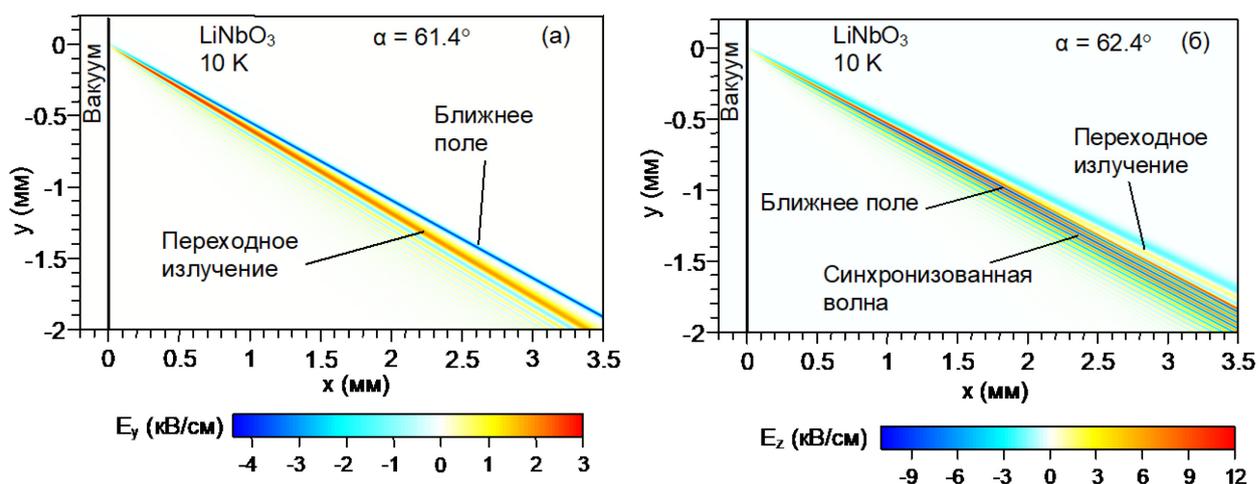


Рисунок 2.5. Снимки терагерцового поля $E_z(t, y, x)$ при $t = 0$, генерируемого в кристалле LiNbO_3 (при температуре 10 К) бесконечно широким скошенным лазерным импульсом ($\tau_{FWHM} = 200$ фс, $I_0 = 1$ ГВт/см²) в режимах (а) отсутствия ($\alpha = 61.4^\circ$) и (б) присутствия ($\alpha = 62.4^\circ$) синхронизма.

При $x > 0.4$ мм ведущий вынужденный (отрицательный) импульс не претерпевает изменений, тогда как запаздывающий свободный (положительный) импульс подвергается поглощению и дисперсионным искажениям (см. также осциллограммы на Рисунке 2.6(а) при $x = 0.6, 1.2$ мм). Амплитуда вынужденного импульса может быть приближенно оценена с применением бездисперсионного приближения, что дает

$$E_{\max} = 4\pi p(n_{c0}^2 - n_g^2)^{-1}. \quad (2.23)$$

Стоит заметить, что при $n_{c0} \rightarrow n_g$, а также при довольно малых длительностях лазерного импульса приближённые формулы (2.21)-(2.23) становятся несправедливыми и необходимо учитывать дисперсию и поглощение терагерцового излучения. Математически, бездисперсионное приближение $\varepsilon(\omega) \approx \varepsilon_0$ применимо при условии $\tau \gg (2/\omega_{\text{ТО}})[1 + (\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty)/(n_{c0}^2 - n_g^2)]^{1/2}$, что дает $\tau_{FWHM} \gg 250$ фс. Это иллюстрирует Рисунок 2.6(б). При довольно большой длительности ($\tau_{FWHM} = 1000$ фс) предельное значение $|E_z|^{\max}$, а также длина, на которой растёт амплитуда поля, хорошо описываются уравнениями (2.23) и (2.22), соответственно. При уменьшении длительности, возбуждаются более высокочастотные компоненты, которые из-за дисперсии обладают большим $\varepsilon(\omega)$. Это приводит к увеличению знаменателя уравнения (2.20) и более быстрому разбеганию с накачкой. Как результат амплитуда вынужденного

импульса и длина, на которой происходит разбегание со свободным импульсом уменьшаются (см. графики для $\tau_{FWHM} = 100$ и 200 фс на Рисунке 2.6(б)).

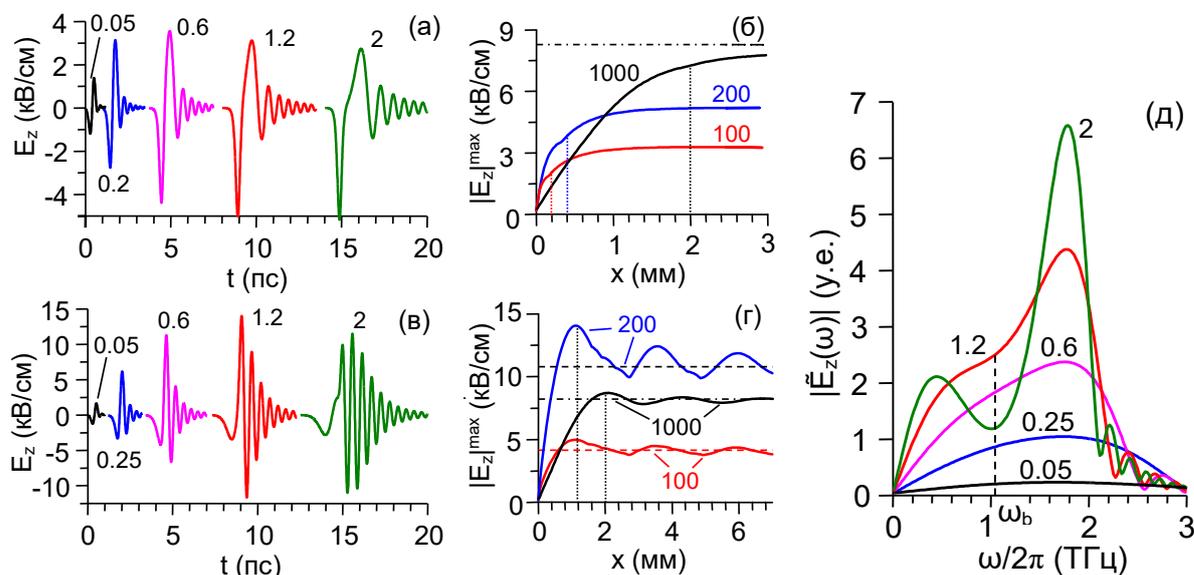


Рисунок 2.6. (а,в) Осциллограммы $E_z(t)$ при $y = 0$ и разных x (указаны в мм рядом с соответствующими кривыми) для режимов (а) несинхронизованной ($\alpha = 61,4^\circ$) и (с) синхронизованной ($\alpha = 62,4^\circ$) генераций в LiNbO_3 (при $T = 10$ К), $\tau_{FWHM} = 200$ фс, $I_0 = 1$ ГВт/см². (б),(г) Максимальное терагерцовое поле в зависимости x для разных τ_{FWHM} (указаны в фс рядом с соответствующими кривыми) в режимах (б) несинхронизованной ($\alpha = 61,4^\circ$) и (г) синхронизованной ($\alpha = 62,4^\circ$) генераций. Горизонтальные линии на (б) и (г) показывают $|E_{\max}|$, полученное из уравнений (2.23) (штрих-пунктирные линии) и (2.9) (штриховые линии). Вертикальные линии на (б) и (г) обозначают длины разбегания (L_w) и нарастания амплитуды (L_b). (д) Спектр терагерцового импульса при различных x для осциллограмм на Рисунке (в).

В случае синхронизованной генерации ($\alpha = 62,4^\circ > \alpha_{cr}$) в структуре поля помимо переходного излучения и ближнего поля наблюдается формирование синхронизованной волны (см. Рисунок 2.5(б)). Различные частотные компоненты переходного излучения распространяются под разными углами $\beta = \arctg[n_g n_c^{-1}(\omega) \tg \alpha]$ к оси y , согласно уравнению (2.20). Фронт излучения, формируемый низкочастотными компонентами с $\beta = \arctg(n_g n_{c0}^{-1} \tg \alpha) \approx 64,3^\circ$, распространяется впереди лазерного импульса, в отличие от рассмотренного выше режима $\alpha < \alpha_{cr}$. Остальные частотные компоненты переходного

излучения распространяются под меньшими углами и интерферируют с синхронизованной волной. Переходное излучение затухает с увеличением x из-за поглощения и дисперсионного уширения, что приводит к постепенному формированию предельной формы синхронизованной волны, определяемой выражением (2.9).

Начальную динамику формирования поля, когда происходит интерференция переходного излучения и синхронизованной волны, можно разделить на две стадии, аналогично рассмотренному в главе 1 случаю генерации синхронизованной волны обычными лазерными импульсами в досветовом режиме (см. п. 1.5.1). На первом этапе импульс нарастает по амплитуде линейно с x без существенных изменений его формы (см. осциллограммы для $x = 0,05, 0,25$ и $0,6$ мм на Рисунке 2.6(в)). На втором этапе импульс увеличивается по длительности без значительного изменения амплитуды (см. осциллограммы для $x = 1,2$ и 2 мм). Для понимания такой двухэтапной динамики можно рассмотреть эволюцию спектра поля на Рисунке 2.6(д). Для $x < 1,2$ мм основная часть спектра растёт с увеличением x . Это означает, что импульс также растёт при распространении без изменения своей формы. После $x = 1,2$ мм часть спектра в окрестности определённой частоты $\omega_b/(2\pi) \approx 1$ ТГц начинает уменьшаться с ростом x , в то время как другие частоты продолжают расти, наиболее быстро в окрестности частоты $\omega_0/(2\pi) \approx 1,8$ ТГц (см. уравнение (2.8)), для которой выполняется условие синхронизма. Таким образом, спектр начинает искажаться. Соответственно, должна искажаться и форма импульса. Расстояние, на котором это начинает происходить, было введено в п. 1.5.1 как длина нарастания амплитуды (buildup length) L_b . Математически L_b может быть найдена из уравнения $\partial |\tilde{E}_z(\omega, x)| / \partial x = 0$, что эквивалентно условию минимальной длины когерентности спектральных компонент импульса $L_b = \min L_{\text{coh}}(\omega) = L_{\text{coh}}(\omega_b)$:

$$L_b = \frac{\pi c}{\omega_b |n_c(\omega_b) - n_g|}. \quad (2.24)$$

Из (2.23) при $\omega_b \approx 1$ ТГц и $\alpha = 62.4^\circ$ получаем $L_b \approx 1,2$ мм, что хорошо соответствует точным численным расчетам на Рисунках 2.5(б) и 2.6(в).

Для характеристики второго этапа процесса можно ввести длину формирования волнового пакета (elongation length)

$$L_e = \frac{2c \cos \alpha}{\gamma n_g [\cos \alpha - n_g v_g(\omega_0)/c]}. \quad (2.25)$$

Это расстояние вдоль оси x , на котором задний край генерированной синхронизованной волны, распространяющийся с групповой скоростью $V_g(\omega_0)$ в направлении, перпендикулярном к фронту интенсивности лазерного импульса (под углом α к оси x), отстаёт от лазерного импульса на длину затухания $2V \cos \alpha / \gamma$ стационарного решения (2.9). Стоит заметить, что в случае коллинеарного синхронизма ($\alpha = 0$) выражение (2.25) также будет описывать длину, на которой формируется стационарное решение (1.24).

На Рисунке 2.6(г) показана зависимость максимального поля в терагерцовом импульсе $|E_z|^{\max}$ от координаты x , рассчитанная численно на основе уравнения (2.20) при различных значениях длительности импульса. Для $\tau_{FWHM} = 100$ фс и 200 фс зависимость хорошо согласуется с описанной выше динамикой формирования фазово-согласованной волны: $|E_z|^{\max}$ растёт с увеличением x , пока x меньше L_b , определяемого уравнением (2.23), а при $x > L_b$ практически совпадает с амплитудой синхронизованной волны, заданной уравнением (2.9). Для $\tau_{FWHM} = 1000$ фс синхронизованная волна подавлена гауссовым множителем $\tilde{F}(\omega)$ в (2.20) (аналогично сильно досветовому режиму генерации), поэтому длина увеличения $|E_z|^{\max}$ составляет $L_w \approx 2$ мм (см. уравнение (2.22)), а не $L_b \approx 1,2$ мм, и стационарное значение $|E_z|^{\max}$ при $x > L_w$ совпадает с амплитудой ближнего поля E_{\max} , заданной уравнением (2.23).

Сравним теперь потенциал генерации терагерцового излучения для случаев криогенно охлажденного LiNbO₃ при накачке титан-сапфировым лазером, а также GaAs при комнатной температуре при накачках на длинах волн 1.8 мкм и 3.5 мкм. Для данных случаев на Рисунке 2.7 показаны максимальное поле в генерируемом терагерцовом импульсе $|E_z|^{\max}$ (рассчитанное на основе уравнения (2.20)), а также характерные длины L_w , L_b и L_e в зависимости от $\alpha - \alpha_{cr}$ (для GaAs при накачке на длинах волн 1.8 мкм и 3.5 мкм, $\alpha_{cr} = 13^\circ$ и $20,7^\circ$, соответственно). Из рисунка можно сделать несколько выводов. Во-первых, при одинаковой расстройке $|\alpha - \alpha_{cr}|$ величина $|E_z|^{\max}$ больше в синхронизованном режиме генерации ($\alpha - \alpha_{cr} > 0$), чем в несинхронизованном ($\alpha - \alpha_{cr} < 0$). Во-вторых, $|E_z|^{\max}$ резко увеличивается с уменьшением $|\alpha - \alpha_{cr}|$. Однако поскольку L_b и L_w также увеличиваются, для достижения больших полей требуются более толстые кристаллы (также еще накладывается ограничение на длительность лазерного

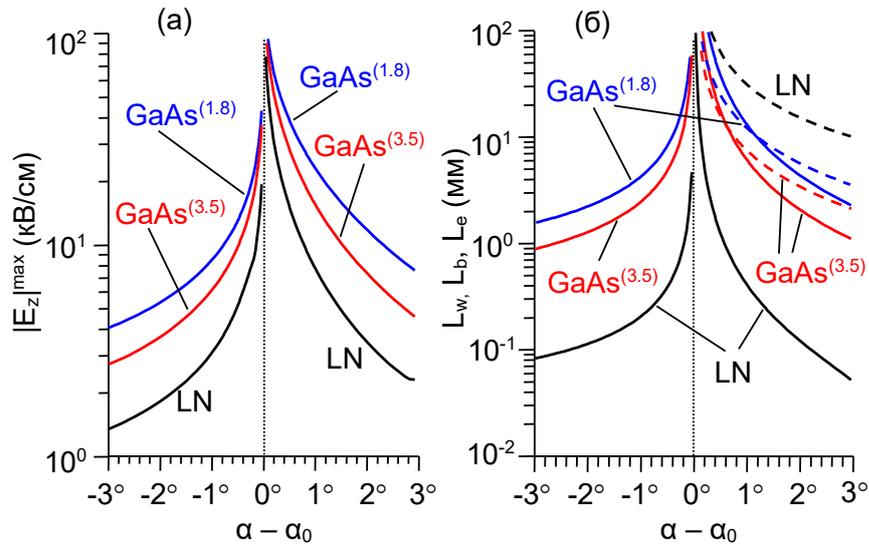


Рисунок 2.7. (а) $|E_z|^{\max}$ в кристалле в зависимости от $\alpha - \alpha_{\text{cr}}$ для криогенно охлажденного LiNbO₃ (LN) при 0,8 мкм накачке, а также GaAs при 1,8 мкм и 3,5 мкм накачках (GaAs^(1.8) и GaAs^(3.5), соответственно). Параметры лазерного импульса: $I_0 = 1 \text{ ГВт/см}^2$ и $\tau_{\text{FWHM}} = 200 \text{ фс}$. (б) Характерные длины L_w (сплошная линия при $\alpha - \alpha_{\text{cr}} < 0$), L_b (сплошная линия при $\alpha - \alpha_{\text{cr}} > 0$) и L_e (штриховая линия) в зависимости от $\alpha - \alpha_{\text{cr}}$ для тех же материалов (L_w приведена для $\tau_{\text{FWHM}} = 200 \text{ фс}$).

импульса из-за дисперсионного расплывания, см. далее пп. 2.1.3, 2.1.5). В-третьих, в GaAs можно достичь значительно большего $|E_z|^{\max}$ по сравнению с LiNbO₃ при одинаковой пиковой интенсивности лазера I_0 . Это выглядит удивительным, поскольку нелинейный коэффициент d_{eff} GaAs примерно в 2,2 раза меньше, чем у LiNbO₃. Однако большее $|E_z|^{\max}$ формируется в GaAs на значительно большей длине, чем в LiNbO₃. Например, L_b при $\alpha - \alpha_{\text{cr}} = 1^\circ$ составляет около 10 мм для GaAs (при 1.8 мкм накачке) и всего около 0,4 мм для LiNbO₃. Следует отметить, что расплывание скошенного импульса за счет угловой дисперсии менее существенны в GaAs по сравнению с LiNbO₃ из-за меньшего α_{cr} для GaAs (соответствующая характерная дисперсионная длина $\propto \text{tg}^{-2} \alpha_{\text{cr}}$, см. 2.1.3). Это позволяет использовать более толстые кристаллы GaAs по сравнению с LiNbO₃ для генерации терагерцового излучения. Для оценки ограничения на толщину кристалла GaAs требуется более общее рассмотрение, выходящее за рамки рассматриваемой в данном разделе модели фиксированной нелинейной поляризации. В-четвёртых, GaAs при 1.8 мкм накачке может обеспечить большее $|E_z|^{\max}$ по сравнению с 3,5 мкм накачкой, но опять же при большей длине взаимодействия между лазерным импульсом и

терагерцовым полем. Необходимо отметить, что значения на Рисунке 2.7 получены для фиксированной пиковой интенсивности лазера I_0 . В то же время, поскольку многофотонное поглощение менее существенно при 3,5 мкм накачке, данный вариант может быть лучшим кандидатом для генерации большего $|E_z|^{\max}$ при более высоких I_0 . И, безусловно, для LiNbO_3 можно использовать значительно более высокие интенсивности накачки по сравнению с полупроводником GaAs, что может дать большие напряжённости терагерцового поля.

Для оптического импульса с конечным поперечным размером динамика формирования терагерцового поля в кристалле описывается уравнениями (2.19) и (2.4). Прежде чем перейти к численному анализу этих уравнений, рассмотрим качественно особенности случая конечного поперечного размера. Существует две основные особенности. Первая – формирование черенковского конуса (см. п. 2.1), которое не учитывается в плоском приближении. Вторая особенность – эффект поперечного (в направлении y) ухода генерируемых терагерцовых волн из области $-\ell_{\perp FWHM}/2 \lesssim y \lesssim \ell_{\perp FWHM}/2$, где распространяется лазерный импульс. Для характеристики этого эффекта введем новый параметр - длину поперечного выбегания.

Для переходного излучения эффект поперечного ухода проиллюстрирован на Рисунке 2.8(a). Поскольку импульс переходного излучения распространяется под углом β к оси x , он удаляется из области $-\ell_{\perp FWHM}/2 \lesssim y \lesssim \ell_{\perp FWHM}/2$ при $x = L_{tw}^{\text{trans}}$, где $L_{tw}^{\text{trans}} = \ell_{\perp FWHM} \text{ctg } \beta$ – длина поперечного выбегания для переходного излучения. Заштрихованный треугольник на Рисунке 2.8(a) показывает область, где генерируемое терагерцовое поле (за исключением черенковского излучения) может быть описано в плоском приближении. В области справа от линии АВ терагерцовое поле описывается стационарной теорией, описанной в п. 2.1.1. Если $L_{tw}^{\text{trans}} < L_w$, динамика формирования стационарного поля определяется поперечным уходом переходного излучения, а не продольным (вдоль оси x) разделением импульсов переходного и ближнего полей.

Синхронизованная волна также испытывает эффект поперечного ухода, что иллюстрируется Рисунке 2.8(б). В отличие от переходного излучения, синхронизованная волна генерируется распространяющимся лазерным импульсом непрерывно, а не только на границе кристалла. Согласно принципу Гюйгенса, синхронизованная волна в данный момент времени может быть представлена как суперпозиция элементарных волн (волновых пакетов), излученных из точек, которые лазерный импульс прошел в

предыдущий момент времени. Элементарные волны будут интерферировать конструктивно на фронте интенсивности лазерного импульса, формируя таким образом синхронизованную волну. Поскольку данная волна распространяется под углом α к оси x , парциальная волна, излученная правым нижним краем лазерного импульса, удалится из области $-\ell_{\text{FWHM}}/2 \lesssim y \lesssim \ell_{\text{FWHM}}/2$ после прохождения расстояния $L_{tw}^{ph-m} = \ell_{\text{FWHM}} \text{ctg } \alpha$ вдоль оси x , что является длиной поперечного выбегания синхронизованной волны. На расстоянии L_{tw}^{ph-m} элементарная волна распространяется синхронно с лазерным импульсом в направлении, нормальном к его фронту интенсивности, постепенно смещаясь к левому верхнему краю импульса; амплитуда волны увеличивается благодаря взаимодействию с импульсом. После выхода из области $-\ell_{\text{FWHM}}/2 \lesssim y \lesssim \ell_{\text{FWHM}}/2$ волна затухает из-за поглощения, дисперсии и дифракции.

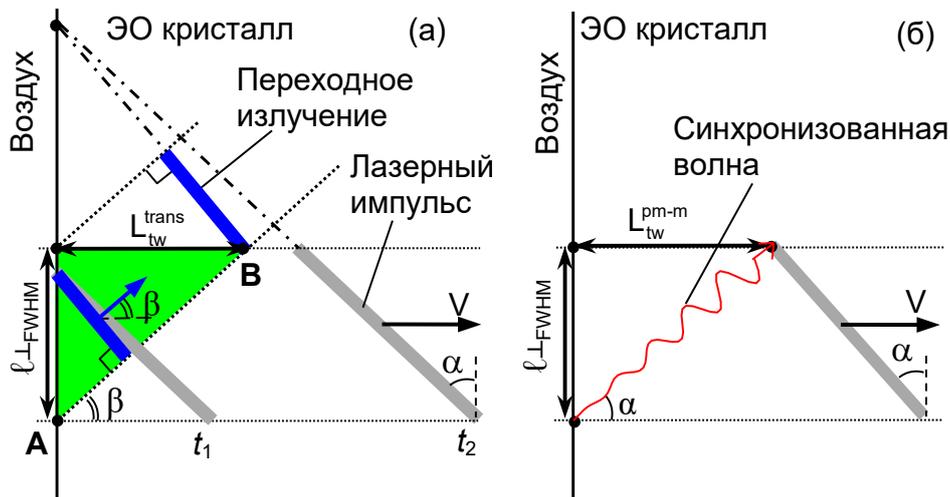


Рисунок 2.8. Рисунки, иллюстрирующие длину поперечного выбегания (а) переходного излучения и (б) синхронизованной волны.

Таким образом, L_{tw}^{ph-m} имеет смысл длины взаимодействия между лазерным импульсом и синхронизованной волной. Если $L_{tw}^{ph-m} < L_b$, первая стадия формирования синхронизованной волны не завершается, и волна не достигает стационарной амплитуды, определяемой уравнением (2.9). Если $L_{tw}^{ph-m} > L_b$, первая стадия завершается на длине L_b , и дальнейшее удлинение волнового пакета (вторая стадия процесса формирования) зависит от соотношения между L_{tw}^{ph-m} и L_e . Если $L_{tw}^{ph-m} > L_e$, то вторая стадия завершается на длине L_e и эффект поперечного выбегания, очевидно, несущественен.

Если $L_{tw}^{ph-m} < L_e$, поперечный уход препятствует удлинению волнового пакета до стационарной формы.

Практически интерес представляют только углы $\alpha \approx \alpha_{cr}$. Для таких углов $\beta \approx \alpha \approx \alpha_{cr}$, и, следовательно, можно использовать одну длину поперечного выбегания

$$L_{tw} = \ell_{\perp FWHM} \operatorname{tg} \alpha_{cr} = \frac{n_g \ell_{\perp FWHM}}{(\varepsilon_0 - n_g^2)^{1/2}} \quad (2.26)$$

вместо L_{tw}^{trans} и L_{tw}^{ph-m} . Из уравнения (2.26) получаем оценки: $L_{tw} \approx 0,5\ell_{\perp FWHM}$ для LiNbO_3 , $L_{tw} \approx 2,6\ell_{\perp FWHM}$ и $L_{tw} \approx 4,3\ell_{\perp FWHM}$ для GaAs при 3.5 мкм и 1.8 мкм накачках.

На рисунке 2.9(а-в) показаны структуры поля излучения, рассчитанные численно на основе уравнений (2.19) и (2.4) для LiNbO_3 при криогенной и комнатной температурах при $\ell_{\perp FWHM} = 4$ мм. Длина поперечного выбегания составляет $L_{tw} \approx 2$ мм. Для охлажденного LiNbO_3 наблюдается значительное различие между режимами синхронизованной и несинхронизованной генерации (Рисунки 2.9(а) и 2.9(б), соответственно). При отсутствии синхронизма в генерируемом излучении можно выделить ближнее поле (БП), асимметричный клин черенковского излучения (ЧИ) и переходное излучение (ПИ). Импульс черенковского излучения распространяется позади импульса ближнего поля. Согласно Рисунку 2.7(б), $L_w \approx 0.2$ мм для $\alpha - \alpha_{cr} = -1^\circ$. Поскольку $L_w \ll L_{tw}$, импульсы ближнего поля и черенковского излучения успевают полностью разделиться в пределах треугольной области, введённой на Рисунке 2.8(а). В режиме синхронизма на Рисунке 2.9(б) появляется синхронизованная волна (СВ), а импульс черенковского излучения распространяется уже впереди импульса ближнего поля. Согласно Рисунку 2.7(б), $L_b \approx 0,4$ мм и $L_e \approx 30$ мм для $\alpha - \alpha_{cr} = 1^\circ$. Поскольку $L_b < L_{tw} \ll L_e$, амплитуда синхронизованной волны достигает максимума, определяемого уравнением (2.9), но длина волнового пакета оказывается меньше возможной из-за значительного эффекта поперечного ухода. Для LiNbO_3 при комнатной температуре, несмотря на $\alpha > \alpha_{cr}$, синхронизованная волна практически не видна из-за высоких потерь (см. Рисунок 2.9(в)). Согласно уравнению (2.9), длина синхронизованного волнового пакета оценивается ~ 15 мкм, то есть всего половина длины волны (для частоты 2 ТГц в LiNbO_3).

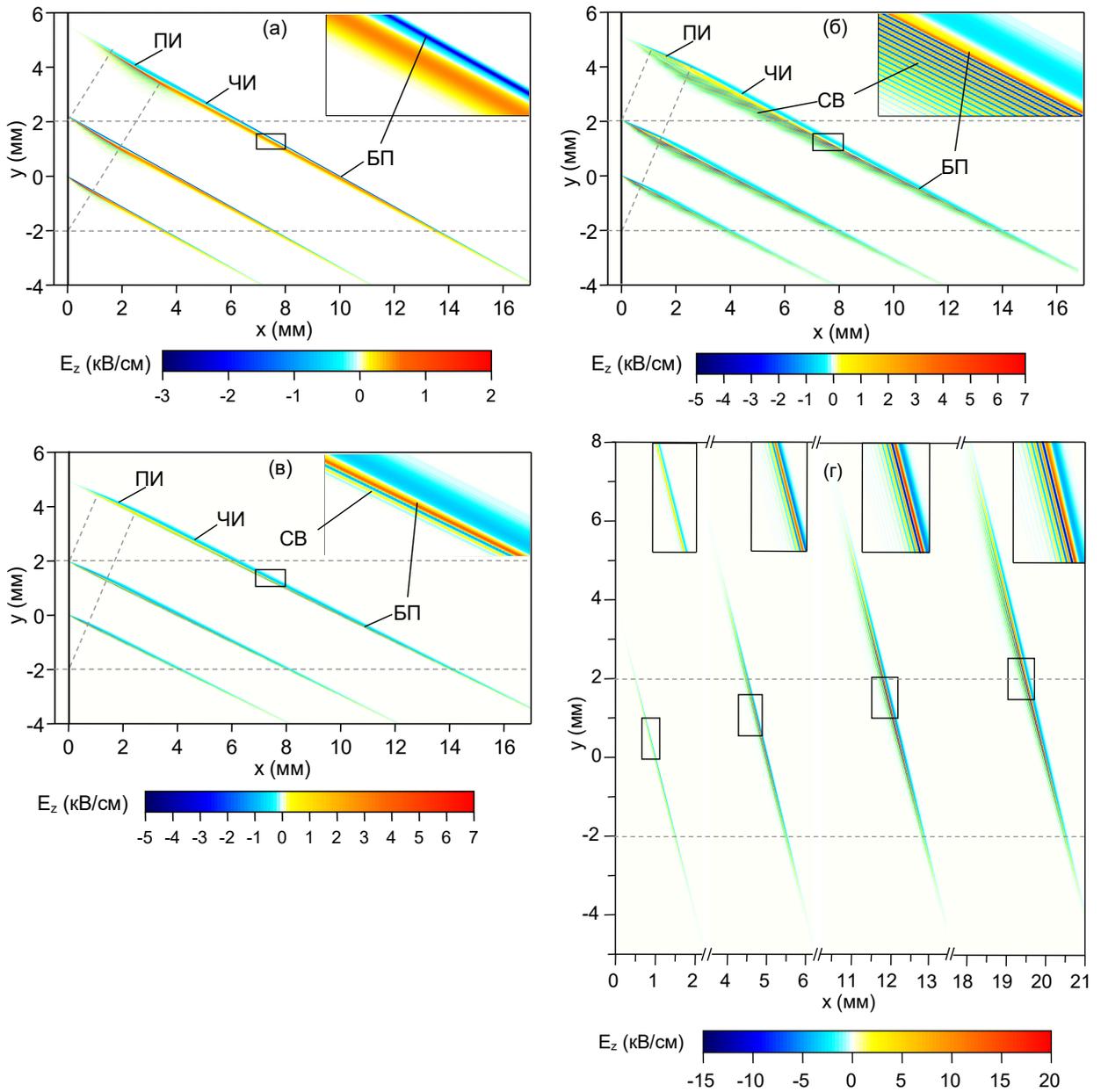


Рисунок 2.9. Снимки $E_z(t, y, x)$ в последовательные моменты времени t в LiNbO_3 при (а) температуре $T = 10 \text{ К}$, $\alpha = 60,9^\circ$, (б) $T = 10 \text{ К}$, $\alpha = 62,9^\circ$, (в) $T = 300 \text{ К}$, $\alpha = 63,8^\circ$; а также в GaAs при $T = 300 \text{ К}$, $\alpha = 14^\circ$. Параметры оптической накачки: $\ell_{\perp\text{FWHM}} = 4 \text{ мм}$, $\tau_{\text{FWHM}} = 200 \text{ фс}$, и $I_0 = 1 \text{ ГВт/см}^2$.

В GaAs при 1.8 мкм накачке, том же поперечном размере лазерного импульса и той же расстройке $\alpha - \alpha_{\text{cr}} = 1^\circ$ три характеристических длины оказываются сравнимыми: $L_{tw} \sim L_b \sim L_e \sim 15 \text{ мм}$. Следовательно, синхронизованный волновой пакет полностью формируется на расстоянии $\sim 15 - 20 \text{ мм}$ Рисунок 2.9(г). Уменьшение поперечного размера лазерного импульса до $\ell_{\perp\text{FWHM}} = 1 \text{ мм}$ (не показано на рисунке) приводит к уменьшению L_{tw} до значения $L_{tw} \approx 4,3 \text{ мм}$, т. е. получаем $L_{tw} \ll L_b, L_e$. В результате

эффект поперечного выбегания препятствует формированию синхронизированного волнового пакета, и, как следствие, амплитуда и длина волнового пакета уменьшаются примерно 2 раза.

2.1.3. Обобщенный анализ стандартной схемы генерации в призме из LiNbO_3

Описанная в предыдущих параграфах динамика формирования поля терагерцового излучения помогает понять общий процесс неколлинеарной генерации скошенными лазерными импульсами. Для расчета реальных схем необходимо даже в случае отсутствия поглощения накачки учитывать изменение формы и амплитуды лазерного импульса из-за дисперсионного расплывания, которое ранее пренебрегалось, но может быть существенной из-за угловой дисперсии, возникающей при формировании скошенного фронта интенсивности с помощью дифракционной решетки. В следующих параграфах данной главы будут проведены расчеты с учетом этого эффекта.

Классическая схема формирования скошенных лазерных импульсов для генерации терагерцового излучения показана рисунке 2.10 (см. также работы [38], [65]). Оптический импульс падает на дифракционную решетку под углом φ_i и дифрагирует под углом φ_D . В результате дифракции формируется импульс со скошенным фронтом интенсивности. Оптическая система, состоящая обычно из двух ахроматических линз (возможно также использовать одну линзы или зеркало), переносит оптический импульс в электрооптический кристалл. Угол скоса фронта интенсивности внутри кристалла определяется выражением [38]

$$\text{tg } \alpha = \frac{\lambda_{\text{opt}} M}{n_g \Lambda \cos \varphi_D}, \quad (2.27)$$

где λ_{opt} – оптическая (центральная) длина волны, Λ – период решетки, M – коэффициент уменьшения телескопа (для телескопа, показанного на Рисунке 2.10 $M = f_1/f_2$, где f_1 и f_2 фокусные расстояния линз).

Помимо угла скоса важным также является угол переноса изображения решетки. В результате дифракции на решетке оптический импульс быстро расплывается из-за угловой дисперсии (каждые спектральные компоненты уже бегут под разными углами, что приводит к их относительному запаздыванию и созданию частотно-модулированного импульса). Минимальная длительность импульса достигается на решетке. Как следствие, при переносе импульса внутрь кристалла, минимальная длительность импульса вновь

достигается на плоскости изображения решетки. Угол наклона изображения решетки θ равен [38]

$$\operatorname{tg} \theta = \frac{n_{opt}}{M} \operatorname{tg} \varphi_D \quad (2.28)$$

и подбирается так, чтобы он совпадал с углом скоса фронта интенсивности. В этом случае длительность импульса будет минимальная на протяжении всего фронта интенсивности. Дополнительным моментом является положение изображения решетки относительно выходной границы кристалла. Для кристаллов с большим терагерцовым поглощением необходимо располагать изображение решетки ближе к выходной границе кристалла, которая срезается также под углом α .

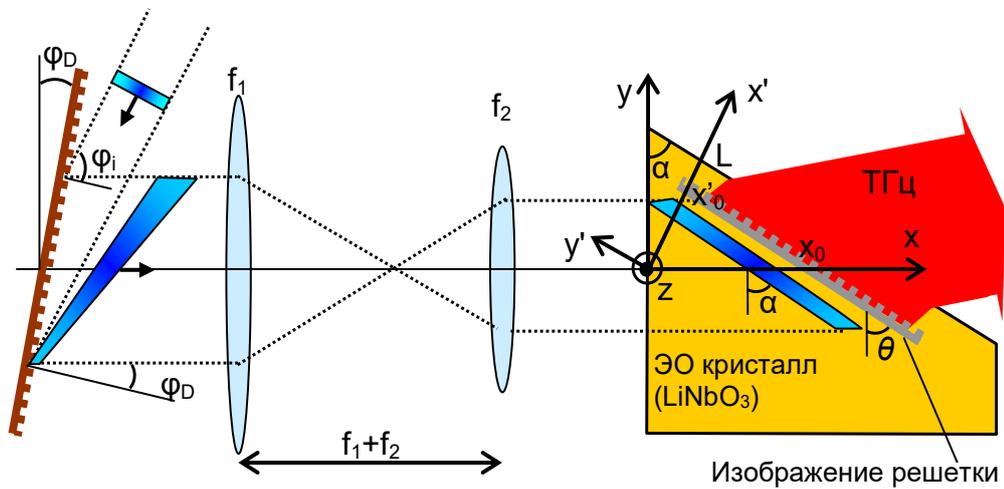


Рисунок 2.10. Схема формирования лазерного импульса со скошенным фронтом интенсивности в электрооптическом (ЭО) кристалле для генерации терагерцового излучения. В традиционной схеме угол наклона плоскости изображения решетки θ равен углу скоса α . Решается обобщенная задача, когда $\theta \neq \alpha$. Выходная грань ЭО кристалла параллельна фронту интенсивности.

При расчете генерации терагерцового излучения необходимо правильно учитывать дисперсионное расплывание лазерного импульса в кристалле. В некоторых работах учет угловой дисперсии был сделан приближенно (в частности, в работе [143] приведена некорректная формула). Для ясности рассмотрим падающий оптический импульс вне кристалла. Введём угол $\beta(\tilde{\omega})$, под которым частотная компонента $\tilde{\omega}$ оптического импульса распространяется относительно оси x , для центральной частоты $\tilde{\omega}_0$ имеем

$\beta(\tilde{\omega}_0) = 0$. Волновые числа k_x и k_y записываются как $k_x = (\tilde{\omega}/c) \cos \beta(\tilde{\omega})$ и $k_y = (\tilde{\omega}/c) \sin \beta(\tilde{\omega})$. Разложение этих уравнений в ряд Тейлора даёт:

$$k_x = \frac{\tilde{\omega}_0}{c} + \frac{1}{c}(\tilde{\omega} - \tilde{\omega}_0) - \frac{\tilde{\omega}_0}{2c} \left(\frac{\partial \beta}{\partial \tilde{\omega}} \right)^2 (\tilde{\omega} - \tilde{\omega}_0)^2, \quad (2.29)$$

$$k_y = \frac{\tilde{\omega}_0}{c} \frac{\partial \beta}{\partial \tilde{\omega}} (\tilde{\omega} - \tilde{\omega}_0) + \left(\frac{1}{c} \frac{\partial \beta}{\partial \tilde{\omega}} + \frac{\tilde{\omega}_0}{2c} \frac{\partial^2 \beta}{\partial \tilde{\omega}^2} \right) (\tilde{\omega} - \tilde{\omega}_0)^2, \quad (2.30)$$

где все производные берутся при центральной частоте лазерного импульса $\tilde{\omega}_0$. Уравнение (2.30) было получено в работе [143], тогда как уравнение (2.29) содержит дополнительный квадратичный член $(-\frac{\tilde{\omega}_0}{2c} (\frac{\partial \beta}{\partial \tilde{\omega}})^2 (\tilde{\omega} - \tilde{\omega}_0)^2)$, который был упущен в данной работе. Чтобы показать важность этого члена, подставим (2.29) и (2.30) в пространственную зависимость $\propto \exp(-ik_x x - ik_y y)$ оптического поля и для удобства записи заменим производные по частоте $\tilde{\omega}$ на производные по длине волны λ . Это даёт следующий множитель (содержащий в показателе экспоненты слагаемое $\propto (\tilde{\omega} - \tilde{\omega}_0)^2$)

$$\propto \exp \left\{ i(\tilde{\omega} - \tilde{\omega}_0)^2 \frac{\lambda_{opt}^3}{4\pi c^2} \left[\left(\frac{\partial \beta}{\partial \lambda} \right)^2 x - \left(\frac{\partial^2 \beta}{\partial \lambda^2} \right) y \right] \right\}, \quad (2.31)$$

который определяет уширение оптического импульса из-за дисперсии второго порядка. Из уравнения (2.31) видно, что пропуск первого члена в квадратных скобках приводит к отсутствию зависимости уширения от координаты x . Угловая дисперсия в (2.31) определяется в нашем случае дисперсией решетки. Из формулы решетки $\sin \varphi_i + \sin \varphi_D = m\lambda/\Lambda$ (m – порядок дифракции) получаем

$$\frac{\partial \varphi_D}{\partial \lambda} = \frac{m}{\Lambda \cos \varphi_d}, \quad \frac{\partial^2 \varphi_D}{\partial \lambda^2} = \frac{m^2 \sin \varphi_d}{\Lambda^2 \cos^3 \varphi_D} = \left(\frac{\partial \varphi_d}{\partial \lambda} \right)^2 \operatorname{tg} \varphi_D. \quad (2.32)$$

Оптическая система переноса даёт соотношение $\frac{d\beta}{d\lambda} = -M \frac{d\varphi_D}{d\lambda}$, а преломление на входной границе кристалла уменьшает $\frac{d\beta}{d\lambda}$ в n_{opt} раз. Тогда, пренебрегая материальной дисперсией, из (2.31) при учете (2.28) и (2.32) можно получить следующее выражение для эволюции длительности скошенного лазерного импульса $\tau(x, y)$ из-за дисперсионного расплывания

$$\tau(x, y) = \tau_0 \sqrt{1 + \frac{(x - x_0 + y \operatorname{tg} \theta)^2}{L_d^2}}, \quad (2.33)$$

где x_0 – координата вдоль оси x при которой длительность импульса достигает минимального значения τ_0 (координата пересечения изображения решетки с осью x), τ_0 –

длительность спектрально-ограниченного лазерного импульса, дисперсионная длина $L_d = \tau_0^2/k_2^{\text{eff}}$, с эффективной коэффициентом дисперсии групповой скорости

$$k_2^{\text{eff}} = -\frac{n_g^2 \lambda_{\text{opt}} \text{tg}^2 \alpha}{2\pi c^2 n_{\text{opt}}}. \quad (2.34)$$

Для LiNbO₃ с требуемым для эффективной генерации терагерцового излучения углом скоса $\alpha \approx 63^\circ$, уравнение (2.34) дает (при $\lambda_{\text{opt}} = 800$ нм) $k_2^{\text{eff}} \approx 13000$ фс²/мм, что более чем на порядок превышает материальную дисперсию $k_2^{\text{LiNbO}_3} \approx 350$ фс²/мм (для данной длины волны). А значит приближение малости вклада материальной дисперсии является достаточно корректным. Дисперсионную длину тогда можно записать через удобное соотношение

$$L_d[\text{мм}] \approx 2,3 \times 10^{-5} \times \tau_{\text{OFWHM}}^2[\text{фс}]. \quad (2.35)$$

Например, при длительности лазерного импульса 200 фс получаем L_d около 1 мм.

Расчеты генерации терагерцового излучения (в основном для LiNbO₃) в классической геометрии, когда $\theta = \alpha$, были проведены в нескольких работах [63], [64], [65]. Здесь рассмотрим обобщенную теорию на случай произвольного угла θ . В качестве примера будем рассматривать стехиометрический LiNbO₃ при комнатной температуре при накачке излучением титан-сапфирового лазера (параметры кристалла см. в п. 2.1.2).

Будем, как и в предыдущих разделах, решать задачу в двумерном приближении, когда накачка считается бесконечной вдоль оси z , а нелинейная поляризация ориентирована вдоль той же оси z . Тогда внутри кристалла

$$P_z^{NL}(x, y, t) = d_{\text{eff}} \frac{8\pi}{cn_{\text{opt}}} I(x, y, t) = d_{\text{eff}} \frac{8\pi}{cn_{\text{opt}}} I_0 T_{\text{entr}} \frac{\tau_0}{\tau(x, y)} F(x, y, t) G(y), \quad (2.36)$$

где для LiNbO₃ $d_{\text{eff}} = d_{33}$. В (2.36) учтено, что интенсивность лазерного импульса уже не постоянная (как предполагалось ранее в п. 2.1.1 и 2.1.2), а изменятся ввиду изменения длительности $\tau(x, y)$ (см. уравнение (2.33)), $F(x, y, t) = \exp(-\xi^2/\tau^2(x, y))$ – временная огибающая лазерного импульса, $G(y) = \exp(-y^2/\ell_\perp^2)$ – поперечный размер лазерного пучка, T_{entr} – френелевский коэффициент прохождения по мощности.

Для нахождения терагерцового излучения, запишем уравнения Максвелла с нелинейной поляризацией (2.36) и применим к ним Фурье преобразование относительно переменных t и y , а результате получим уравнение для фурье-образа поля $\tilde{E}_z(x, g, \omega)$ внутри кристалла (см. также п. 2.1.1 и 2.1.2):

$$\frac{\partial^2 \tilde{E}_z}{\partial x^2} + \kappa^2 \tilde{E}_z = -\frac{4\pi\omega^2}{c^2} \tilde{P}_z^{NL}(x, g, \omega), \quad (2.37)$$

где $\tilde{P}_z^{NL}(x, g, \omega)$ – фурье-образ $P_z^{NL}(x, y, t)$, $\kappa^2 = (\omega/c)^2 \varepsilon - g^2$. Для дальнейшего решения (2.37) удобно воспользоваться методом медленно меняющихся амплитуд [120], считая, что на входной границе $\tilde{E}_z(0, g, \omega) = 0$ (см. также уравнение (1.25)). Как было упомянуто в п.1.2.1 данный метод дает хорошее совпадение с точным решением уравнения вида (2.37) в случае близких скоростей оптической накачки и терагерцового излучения. Кроме того, для эффективного последующего численного расчёта преобразований Фурье выгодно ввести дополнительную систему координат (x', y') повернутую на угол α относительно (x, y) (см. Рисунок 2.10). В новой системе координат выражение для длительности лазерного импульса записывается как

$$\tau(x', y') = \tau_0 \sqrt{1 + \frac{[(x' - x'_0) \cos(\theta - \alpha) + y' \sin(\theta - \alpha)]^2}{L_d^2 \cos^2 \theta}} \quad (2.38)$$

где x'_0 – точка пересечения плоскости изображения решётки с осью x' . В результате, используя метод медленной меняющихся амплитуд, электрическое поле внутри кристалла в система координат (x', y') можно записать как

$$E_z(x', y', t) = \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \tilde{E}_z(x', y', \omega) e^{i\omega t} = \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \int_{-\infty}^{\infty} dg \tilde{E}_z(x', g, \omega) e^{i\omega t - igy'}, \quad (2.39)$$

где

$$\tilde{E}_z(x', g, \omega) = \frac{2\pi\omega^2}{ih_c c^2} \int_{-\infty}^{x'} dx'' \tilde{P}_z^{NL}(x'', g, \omega) e^{ih_c(x'' - x')}, \quad (2.40)$$

волновое число h_c определяется выражением $h_c^2 = \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \varepsilon(\omega) - g^2$, а $\tilde{P}_z^{NL}(x'', g, \omega)$ представляет собой преобразование Фурье нелинейной поляризации $P_z^{NL}(x'', y', t)$ (определяемую (2.36) при переходе в новую систему координат (x', y')). Дисперсию $\varepsilon(\omega)$, как и ранее, будем описывать однорезонансной моделью (1.4) с параметрами, приведенными в п. 2.1.2 для LiNbO₃ при комнатной температуре.

Для численного вычисления интеграла в уравнении (2.39) ограничим нижний предел значением $-2\ell_{\perp}/\sin\alpha$. Это соответствует интегрированию от нижней периферии лазерного пучка ($y = -2\ell_{\perp}$), где оптическая интенсивность и, следовательно, нелинейная поляризация пренебрежимо малы. Для расчет генерируемой энергии (с единицы длины

вдоль оси z) проинтегрируем вектор Пойтинга при $x' = L+$, где L – координата выходной границы кристалла, по $-\infty < y' < \infty$ и $-\infty < t < \infty$. Это даст

$$W = \int_0^{\infty} w(\omega) d\omega \quad (2.41)$$

со спектральной плотностью

$$w(\omega) = 2\pi c^2 \int_{-\frac{\omega}{c}}^{\frac{\omega}{c}} dg \frac{h_v}{\omega} T_{\text{exit}}(\omega, g) |\tilde{E}_z(x' = L-, g, \omega)|^2. \quad (2.42)$$

В уравнении (2.42) $h_v = (\omega^2/c^2 - g^2)^{1/2}$ представляет собой волновое число в вакууме, а стандартный коэффициент пропускания Френеля по мощности $T_{\text{exit}} = |2h_c/(h_c + h_v)|^2$ используется на выходной поверхности кристалла ввиду близкого к синхронизму режима генерации ($\cos \alpha \approx n_g/n_{\text{THz}}$, см. п. 1.3).

Исследуем влияние отклонения плоскости изображения решётки от стандартной ориентации $\theta = \alpha$ на генерацию терагерцового излучения. Следует отметить, что кроме ориентации θ , положение плоскости изображения решётки x'_0 также является важным параметром, влияющим на генерацию терагерцового излучения. Действительно, из-за малой дисперсионной длины для типичных длительностей импульсов накачки (см. уравнение (2.35)) импульс испытывает значительное дисперсионное уширение вне окрестности плоскости изображения решётки. Соответственно, оптическая интенсивность и эффективность генерации быстро уменьшаются с расстоянием от этой плоскости. Таким образом, только довольно тонкая область в окрестности плоскости изображения решётки вносит основной вклад в генерацию терагерцового излучения. Из-за сильного поглощения терагерцового излучения в LiNbO_3 , расстояние между этой плоскостью и выходной границей кристалла существенно влияет на выходную энергию и спектр терагерцового излучения (см. далее п. 2.1.5). Приведённые ниже результаты получены для оптимального положения x'_0 , которое находится в процессе вычислений путём максимизации выходной энергии. В процессе оптимизации энергия вычисляется при различных x'_0 в выражении (2.38) и фиксированных всех других параметрах, а максимум энергии находится с использованием метода золотого сечения.

На Рисунках 2.11(а-в) показаны распределения амплитудного частотного спектра $|\tilde{E}_z(L-, y', \omega)|$ вдоль выходной границы кристалла (при $x' = L-$) для трёх различных углов θ . Соответствующие распределения электрического поля $E_z(L-, y', t)$ представлены на

Рисунках 2.11(г-е). В стандартном случае $\theta = \alpha$ с $\alpha = \alpha_{cr} + 0.1^\circ = 63,3^\circ$ (синхронизм достигается на частоте ≈ 0.8 ТГц), распределения спектра и поля довольно равномерны в широком интервале $-7 < y' < 0$ мм (Рисунки 2.11(а) и 2.11(г)). Для $\theta \neq \alpha$ ситуация иная: ширина полосы и форма спектра, а также соответствующая временная зависимость поля, существенно изменяются с y' . Для $\theta = 45^\circ$ (Рисунок 2.11(б)) ширина полосы максимальна около $y' \approx -1$ мм и быстро уменьшается при меньших y' . Это отражается в более плавной временной зависимости поля при меньших y' (Рисунок 2.11(д)). Напротив, для $\theta = 75^\circ$ (Рисунок 2.11(в)) ширина полосы уменьшается при больших y' от максимального значения при $y' \approx -5$ мм, с соответствующими изменениями во временной зависимости поля (Рисунок 2.11(е)). Спектральная неоднородность по сечению терагерцового пучка при $\theta \neq \alpha$ может привести к сильной расходимости пучка и ухудшению его последующей фокусировки.

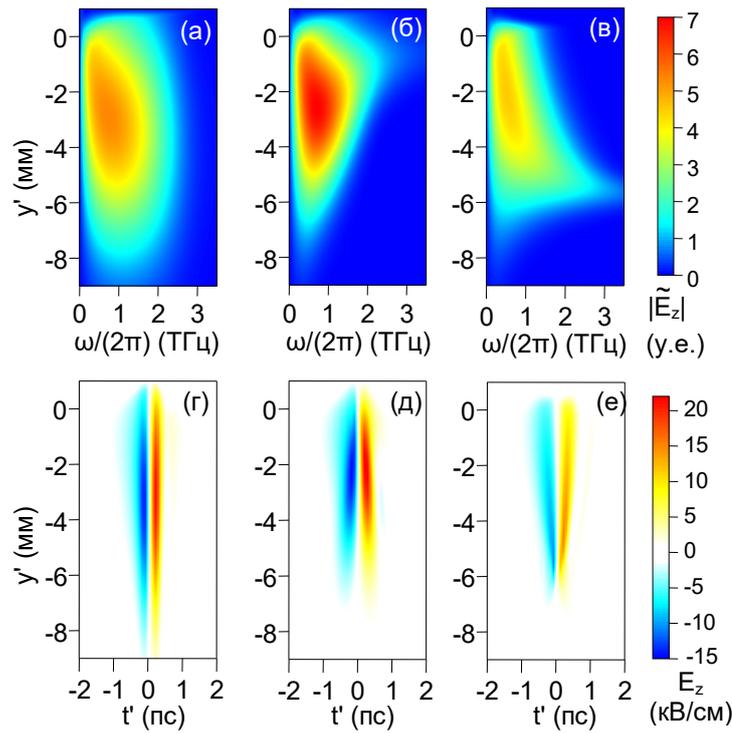


Рисунок 2.11. (а-в) Распределения амплитудного спектра $|\tilde{E}_z(L-, y', \omega)|$ по координате y' вблизи выходной границы кристалла (при $x' = L-$) для: (а) $\theta = \alpha = 63,3^\circ$, $x'_0 = 1,6$ мм, (б) $\theta = 45^\circ$, $x'_0 = 2,2$ мм, (в) $\theta = 75^\circ$, $x'_0 = 0,8$ мм. (г-е) Соответствующие распределения электрического поля $E_z(L-, y', t')$, где $t' = t - L/(V \cos \alpha)$. Параметры накачки: $I_0 = 10$ ГВт/см², $\ell_{\perp FWHM} = 3$ мм и $\tau_0^{FWHM} = 100$ фс, $L = 2$ мм.

Интересной особенностью Рисунок 2.11(б) является бóльшая, чем в стандартном случае $\theta = \alpha$ (Рисунок 2.11(а)), спектральная амплитуда на частотах $\sim 0.5 - 1$ ТГц в интервале $-5 < y' < -1$ мм. Соответственно, полная энергия терагерцового излучения (или эффективность преобразования) несколько выше для $\theta = 45^\circ$, чем для $\theta = \alpha = 63.3^\circ$ (см. Рисунок 2.12(а)). Более того, этот вывод справедлив для всего углового интервала $\theta < \alpha$ (Рисунок 2.12(а)). Таким образом, отклонение плоскости изображения решётки от стандартной ориентации $\theta = \alpha$ в сторону меньших углов $\theta < \alpha$ не уменьшает энергию терагерцового излучения, хотя и вносит спектральную неоднородность по сечению терагерцового пучка. Однако для $\theta > \alpha$ максимальная спектральная амплитуда и энергия терагерцового излучения быстро уменьшаются с отклонением θ от стандартного значения $\theta = \alpha$. Оптимальная координата x'_0 уменьшается с ростом θ (вставка на Рисунке 2.12(а)).

Качественно, полученную на Рисунке 2.12(а) зависимость можно объяснить с помощью выражения (2.38). Вдоль оси x' изменение длительности импульса определяется эффективной дисперсионной длиной

$$L'_d = L_d \cos \theta / \cos(\theta - \alpha). \quad (2.43)$$

При $\theta < \alpha$ дисперсионная длина увеличивается с уменьшением θ , что приводит к более плавному изменению интенсивности накачки и увеличению амплитуды парциальных волн (см. рассмотренную ранее динамику формирования поля на Рисунок 2.8(б)). При $\theta > \alpha$, L'_d уменьшается, и амплитуда парциальных волн падает. С другой стороны, из-за наклона изображения решетки происходит ограничение размера источника фактором

$$a_d = L_d \cos \theta / |\sin(\theta - \alpha)|, \quad (2.44)$$

что дает уменьшение генерируемой энергии при любом знаке отклонения θ от α . Таким образом совокупное влияние двух факторов слабо влияет на энергию терагерцового излучения при $\theta < \alpha$ и дает уменьшение энергии при $\theta > \alpha$.

Согласно расчётам, увеличение длительности импульса накачки до 200-300 фс (при фиксированной энергии импульса накачки) приводит к увеличению энергии терагерцового излучения, но не оказывает существенного влияния на зависимость энергии от θ . Увеличение длительности импульса накачки свыше 200-300 фс снижает энергию терагерцового излучения. Следовательно, оптимальная длительность импульса

накачки составляет 200-300 фс, в согласии с расчетами других групп для стандартного случая $\theta = \alpha$ [144].

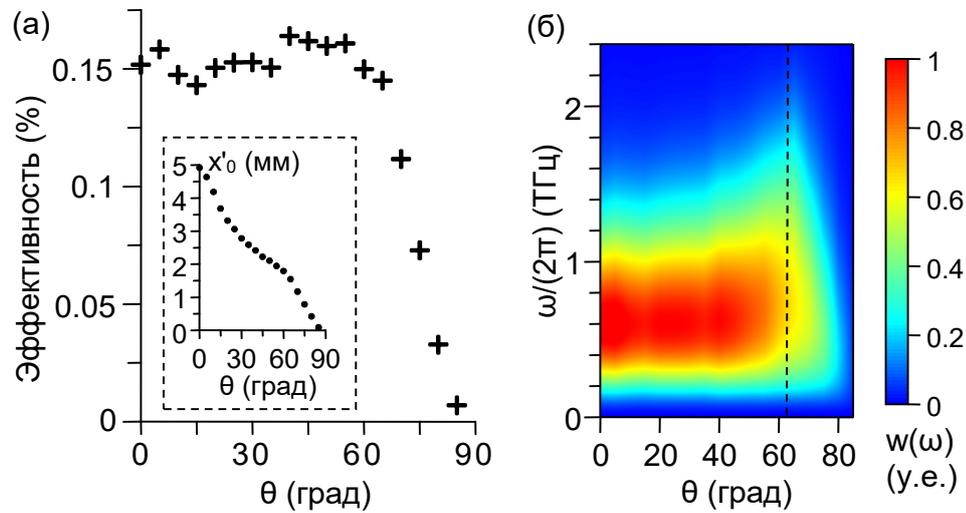


Рисунок 2.12. (а) Эффективность преобразования и (б) энергетический спектр в зависимости от угла θ . Параметры I_0 , τ_0^{FWHM} и L те же, что и на Рисунке 2.11. На графике (а) во вставке показана зависимость x'_0 от θ . На графике (б) вертикальная линия отмечает значение $\theta = \alpha = 63,3^\circ$.

Рассмотрим генерацию терагерцового излучения, когда выходная граница кристалла параллельна плоскости изображения решетки (см. Рисунок 2.13). В данной геометрии генерируемое в LiNbO_3 терагерцовое излучение падает под углом к выходной грани, поэтому для минимизации френелевских потерь и эффекта полного внутреннего отражения к выходной грани LiNbO_3 предлагается прикладывать выводящую призму из материала с малым поглощением в терагерцовом диапазоне, например, из высокоомного кремния (Si).

Генерируемая энергия внутри кристалла рассчитывалась путем численного интегрирования по времени и координате y'' (направленной вдоль выходной границы призмы, см. Рисунок 2.13) от вектора Пойтинга, в котором электрическое поле $E_z[x'(y''), y'(y''), t]$ считалось с помощью (2.39), (2.40) в каждой точке выходной границы LiNbO_3 . Высветившаяся терагерцовая энергия считалась у четом френелевских коэффициентов прохождения через границу $\text{LiNbO}_3\text{-Si}$ и Si-воздух .

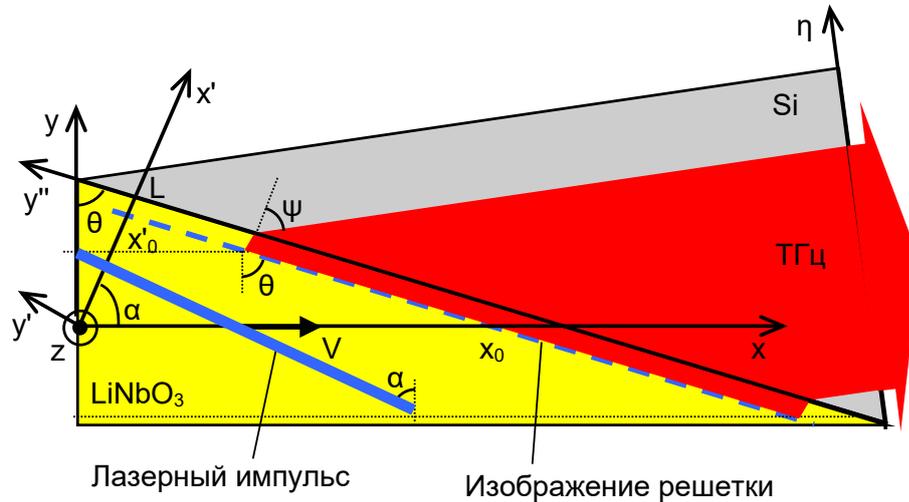


Рисунок 2.13. Обобщенная геометрия генерации терагерцового излучения скошенным лазерным импульсом, когда плоскостью изображения решетки не параллельна плоскости фронта интенсивности ($\theta \neq \alpha$), но параллельна выходной грани кристалла.

На Рисунках 2.14(а) и 2.14(б) показаны распределения амплитудного спектра $|\tilde{E}_z[x'(y''), y'(y''), \omega]|$ вдоль выходной границы кристалла LiNbO_3 (вдоль оси y'') (внутри кристалла), для двух различных углов $\theta = 45^\circ$ и 75° . Цветовая шкала такая же, как на Рисунках 2.11(а-в), поэтому рисунки можно сравнивать напрямую. Распределения спектров вдоль оси y'' довольно равномерны, аналогично традиционному случаю на Рисунках 2.11(а). Также равномерно и соответствующие распределения поля на Рисунках 2.14(в) и 2.14(г). Ширина полосы спектра практически одинакова для обоих углов θ . Однако максимальное значение спектральной амплитуды и размер её пространственной локализации поля на Рисунках 2.14(а) и 2.14(б) существенно различаются. Максимальное значение как поля, так и спектральной плотности для $\theta = 45^\circ$ в два раза выше, чем для 75° . Это можно объяснить большей длиной взаимодействия L'_d для $\theta = 45^\circ$ (см. уравнение (2.43)). Размер локализации терагерцового поля больше для $\theta = 75^\circ$, чем для 45° . Это можно объяснить большим эффективным размером источника излучения в проекции на выходную грань LiNbO_3

$$\ell_{\perp FWHM}^{\text{eff}} = \ell_{\perp FWHM} / \cos \theta. \quad (2.45)$$

Два вышеупомянутых фактора также объясняют различие в профилях плотности энергии терагерцового излучения Φ по сечению пучка в воздухе на выходной поверхности Si

призмы (Рисунок 2.14(д)). На Рисунок 2.14(д) $\theta = \alpha = 63,3^\circ$ соответствует структуре с Si пластиной вместо призмы.

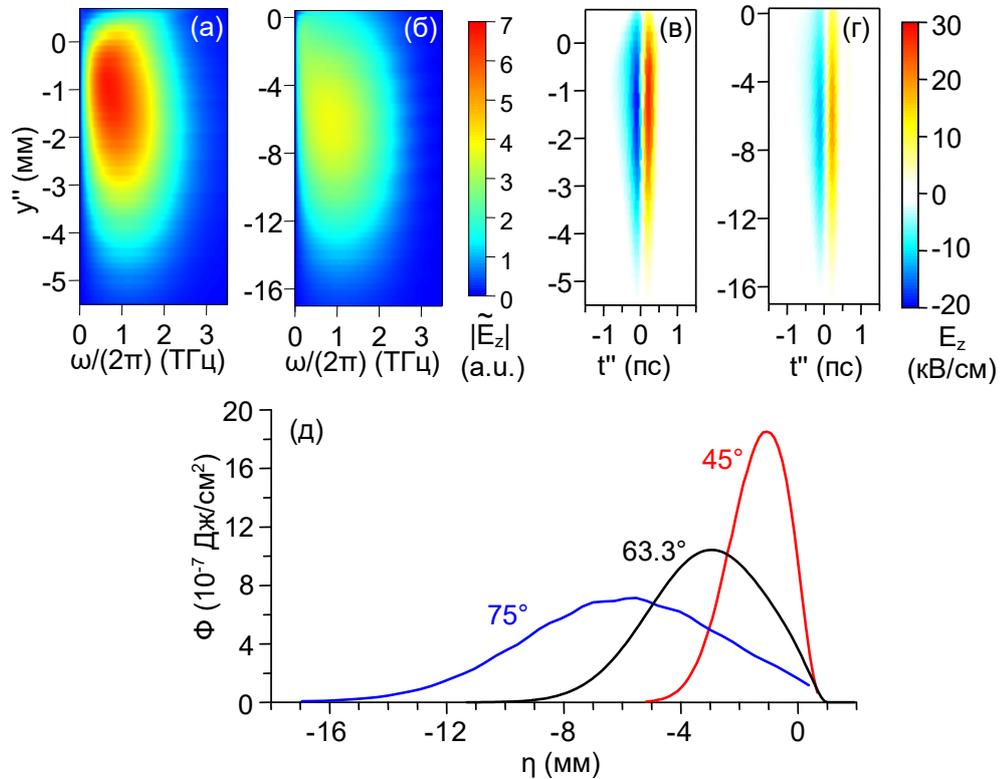


Рисунок 2.14. Распределения амплитудного спектра $|\tilde{E}_z(L-, y'', \omega)|$ по координате y'' вблизи выходной границы кристалла для: (а) $\theta = 45^\circ$, (б) $\theta = 75^\circ$. (в), (г) Соответствующие для $\theta = 45^\circ$ и $\theta = 75^\circ$ распределения электрического поля $E_z(L-, y'', t'')$, где $t'' = t - x'(y'')/(V \cos \alpha)$. (д) Распределения плотности потока энергии терагерцового излучения (Φ) вдоль выходной границы Si призмы для $\theta = 45^\circ$ и $\theta = 75^\circ$ (также, для сравнения, приведена кривая для $\theta = \alpha = 63.3^\circ$). Параметры накачки, как на рисунке 2.11.

На Рисунке 2.15 показана эффективность оптико-терагерцового преобразования в зависимости от угла θ для различных длительностей импульса накачки. Для 50 фс импульса накачки эффективность практически не зависит от θ в широком угловом интервале $30^\circ < \theta < 75^\circ$, со слабо выраженным максимумом около 55° . Эффективность резко падает при $\theta > 75^\circ$. С увеличением длительности импульса накачки максимум становится более выраженным и смещается в сторону больших углов. Например, угол максимума эффективности составляет $\approx 75^\circ$ для $\tau_{\text{0FWHM}} = 200$ фс и $\approx 85^\circ$ для 400 фс.

Значение максимальной эффективности возрастает с увеличением длительности импульса (при фиксированной энергии импульса накачки) и превышает эффективность в стандартном случае $\theta = \alpha = 63,3^\circ$ при $\tau_{\text{оFWHM}} = 100$ фс. В частности, для $\tau_{\text{оFWHM}} = 400$ фс геометрия с $\theta \approx 85^\circ$ более чем в два раза эффективнее стандартной геометрии с $\theta = \alpha = 63,3^\circ$.

Зависимости на Рисунке 2.15 могут быть качественно объяснены взаимодействием двух факторов: угловых вариаций $L'_d(\theta)$ (уравнение (2.43)) и $\ell_{\text{LFWHM}}^{\text{eff}}(\theta)$ (уравнение (2.45)). Для коротких импульсов накачки (50 фс) длина дисперсии мала ($L_d \approx 60$ мкм, см. уравнение (2.35)), поэтому фактор $L'_d(\theta)$ очень существенен и конкурирует с $\ell_{\text{LFWHM}}^{\text{eff}}(\theta)$, поддерживая эффективность почти постоянной при $\theta < \alpha$ и вызывая падение эффективности при $\theta \rightarrow 90^\circ$. Для более длинных импульсов накачки фактор дисперсионного уширения становится менее значимым ($L_d \approx 3.7$ мм для $\tau_{\text{оFWHM}} = 400$ фс), и начинает преобладать геометрический фактор размера излучающего источника $\ell_{\text{LFWHM}}^{\text{eff}}(\theta)$. Это объясняет смещение максимумов кривых к 90° .

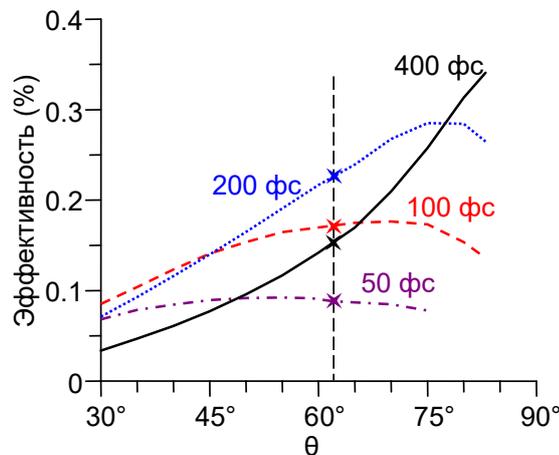


Рисунок 2.15. Эффективность в зависимости от угла θ при различных длительностях фемтосекундного лазерного импульса (указано около соответствующих кривых). Энергия лазерного излучения фиксирована и соответствует $I_0 = 10$ ГВт/см² at $\tau_{\text{оFWHM}} = 100$ фс; $a_{\text{FWHM}} = 3$ мм, $L = 2$ мм. Вертикальная линия отмечает случай $\theta = \alpha$.

Согласно расчётам, длительность импульса $\tau_{\text{оFWHM}} = 200$ фс максимизирует эффективность преобразования для стандартной схемы с $\theta = \alpha$. Это можно объяснить

конкуренцией увеличением дисперсионной длины и уменьшением оптической интенсивности (при фиксированной энергии импульса накачки) с ростом длительности импульса накачки. Для рассматриваемой схемы на Рисунке 2.13 фактор размера излучающего источника делает выгодным использование более длинных импульсов накачки и углов θ , близких к 90° , для достижения более высокой эффективности.

Теперь кратко обсудим, как ширина пучка накачки $\ell_{\perp FWHM}$ и размер кристалла L влияют на эффективность преобразования. Увеличение длины кристалла приводит к росту эффективности с последующим насыщением. Например, для $\tau_{0FWHM} = 100$ фс насыщение происходит при $L = 1$ мм, а для $\tau_{0FWHM} = 500$ фс – при $L = 5$ мм. Увеличение ширины пучка накачки (при фиксированной оптической интенсивности) вызывает почти линейный рост эффективности с последующим насыщением. Например, для $\tau_{0FWHM} = 100$ фс и 500 фс насыщение происходит при $\ell_{\perp FWHM} = 2$ мм и 15 мм, соответственно. При фиксированной энергии импульса накачки эффективность растёт с уменьшением ширины пучка до размеров, сравнимых с длиной генерируемой волны. Это обусловлено доминирующим ростом интенсивности накачки. Однако, при размерах оптического пучка меньше длины генерируемой волны скос фронта интенсивности уже не играет роли и механизм черенковского излучения начинает преобладать над фазово-синхронной генерацией. Более детально влияние длины и ширины пучка будет исследовано в п. 2.1.5.

2.1.4. Масштабирование генерации в схеме с пластиной LiNbO_3 и двумя диэлектрическими призмами

Как было сказано в предыдущем параграфе, в классической схеме генерации терагерцового излучения скошенными лазерными импульсами кристалл-генератор (LiNbO_3) имеет форму призмы с углом среза, равным углу скоса интенсивности α . Такая форма оптимальна для ввода оптической накачки и вывода сгенерированного излучения. Однако при использовании мощных лазерных импульсов необходимы дорогостоящие кристаллы с большой апертурой. Кроме того, при использовании коротких лазерных импульсов накачки (< 200 фс), рабочей областью является лишь небольшая по толщине (менее 2 мм) выходная грань кристалла (см. п. 2.1.3). При длинных импульсах может работать уже большая часть кристалла, однако из-за наклона выходной поверхности длина взаимодействия (терагерцового излучения с накачкой) вблизи вершины призмы и

вдали от вершины существенно различаются, что может приводить к неоднородному распределению терагерцовой генерации.

Для преодоления отмеченных недостатков в данном параграфе предлагается использовать альтернативную призме сборную сэндвич-структуру с плоским слоем LiNbO_3 , геометрия которой приведена на Рисунке 2.15. Плоскопараллельная пластина LiNbO_3 толщиной L зажата между двумя призмами. Входная призма, прозрачная в оптическом диапазоне, обладает оптическим показателем преломления n_d и углом при вершине θ . В частности, в качестве такой диэлектрической призмы можно использовать заполненную жидкостью кювету (см. далее эксперимент в п. 2.2.2). Выходная призма, прозрачная в терагерцовом диапазоне, например кремниевая (Si), обладает терагерцовым показателем преломления $n_{\text{Si}} = 3,42$ и углом при вершине ψ . Оптическая ось кристалла LiNbO_3 (ось z) ортогональна плоскости рисунка. Оптический импульс со скошенным фронтом интенсивности падает проходит через вводящую призму и распространяется под углом φ к нормали пластины (ось x). В пластине фронт интенсивности импульса наклонён под углом $\alpha \approx 63^\circ$ (близким к углу неколлинеарного синхронизма) относительно фазовых фронтов. Поляризация оптической накачки совпадает с осью z . Поверхность, где достигается минимальная длительность лазерного импульса (совпадающая с поверхностью изображения дифракционной решетки, используемой для создания скошенного импульса (см. Рисунок 2.10 и пояснения к нему)) предполагается параллельной плоскости пластины LiNbO_3 и имеет координату x_0 . В дальнейших расчётах x_0 выбирается для максимизации генерируемой терагерцовой энергии, как было сделано в п. 2.1.3. Терагерцовое излучение генерируется перпендикулярно фронту импульса накачки и падает на выходную поверхность пластины LiNbO_3 под углом $\alpha - \varphi$. После перехода из ниобата лития (с терагерцовым показателем преломления $n_{\text{THz}} \approx 5$) в кремниевую призму под углом ψ , терагерцовое излучение выводится по нормали в свободное пространство через выходную грань призмы. При $\sin \theta > n_d^{-1}$ призма должна быть отделена от LiNbO_3 воздушным зазором толщиной несколько мкм для обеспечения полного внутреннего отражения оптической накачки на границе LiNbO_3 -воздух и предотвращения фотогенерации свободных носителей в Si. При $\sin \theta < n_d^{-1}$ на выходной поверхности LiNbO_3 следует использовать тонкие оптические покрытия для отражения (или поглощения) накачки. Альтернативой является использование выводящих призмы из материала, прозрачного как в оптическом, так и в терагерцовом диапазонах (например,

кристаллический кварц). Основным преимуществом данной структуры является коммерческая доступность недорогих пластин LiNbO_3 толщиной около 1 мм и диаметром до 10 см, позволяющие увеличить генерируемую терагерцовую энергию за счет накачки лазерными пучками тераваттной мощности с большой апертурой.

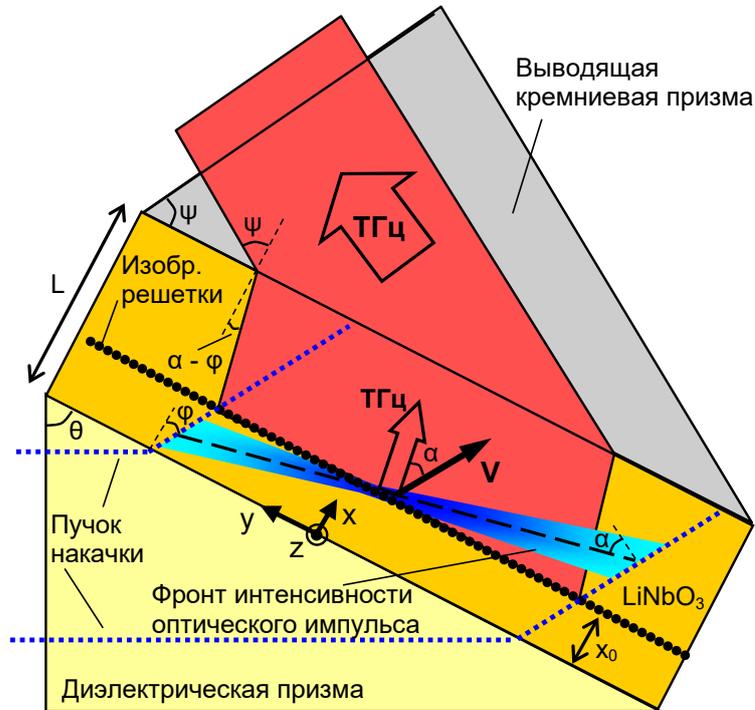


Рисунок 2.15. Оптико-терагерцовый преобразователь лазерных импульсов со скошенным фронтом интенсивности, состоящий из пластины ниобата лития, помещённой между двумя призмами.

Используя закон Снеллиуса для границ раздела диэлектрик– LiNbO_3 и LiNbO_3 – Si , можно рассчитать зависимости $\psi(\theta)$. Данная зависимость приведена на Рисунке 2.16(a) для различных показателей преломления n_d материала входной призмы: $n_d = 1$ (без входной призмы), $n_d = 1,33$ (призма представляет собой кювету, заполненную водой), $n_d = 1,5$ (стеклянная призма или кювета, заполненная органической жидкостью), $n_d = 2,16$ (материал призмы – линейный аналог ниобата лития) и $n_d = 2,5$ (призма из халькогенидного стекла). Также на Рисунке 2.16(a) приведены три характерных угла для кривой с $n_d = 2,5$. Минимальный угол θ_{\min} , определяемый выражением

$$\sin \theta_{\min} = \frac{n_{\text{opt}}}{n_d} \left[\sin \alpha \left(1 - \frac{n_{\text{Si}}^2}{n_{\text{THz}}^2} \right)^{1/2} - \frac{n_{\text{Si}} \cos \alpha}{n_{\text{THz}}} \right]. \quad (2.46)$$

Этот угол, при котором угол $\alpha - \varphi$ равен критическому углу полного внутреннего отражения терагерцового излучения на границе $\text{LiNbO}_3\text{-Si}$. Данный угол монотонно убывает с n_d (Рисунке 2.16(б)). Максимальный угол θ_{\max} , определяемый выражением $\sin \theta_{\max} = n_{\text{opt}}/n_d = 2,16/n_d$, является критическим углом полного внутреннего отражения луча накачки на границе входной призмы и пластины ниобата лития. Этот угол существует только при $n_d > 2,16$ и уменьшается с увеличением n_d , как показано на Рисунке 2.16(б). Угол θ_0 , определяется выражением $\sin \theta_0 = (n_{\text{THz}}/n_d) \sin \alpha \approx 1,93/n_d$. При данном угле $\psi = 0$, т.е. терагерцовое излучение выходит по нормали из пластины LiNbO_3 , а значит отсутствует необходимость в выводящей призме. Этот угол существует только при $n_d > 1,93$ и уменьшается с увеличением n_d (Рисунке 2.16(б)). При $\theta > \theta_0$ отрицательный угол $\psi < 0$ на Рисунке 2.16(а) означает, что терагерцовое излучение выходит из кремниевой призмы через другую грань, в отличие от показанной геометрии на Рисунке 2.15.

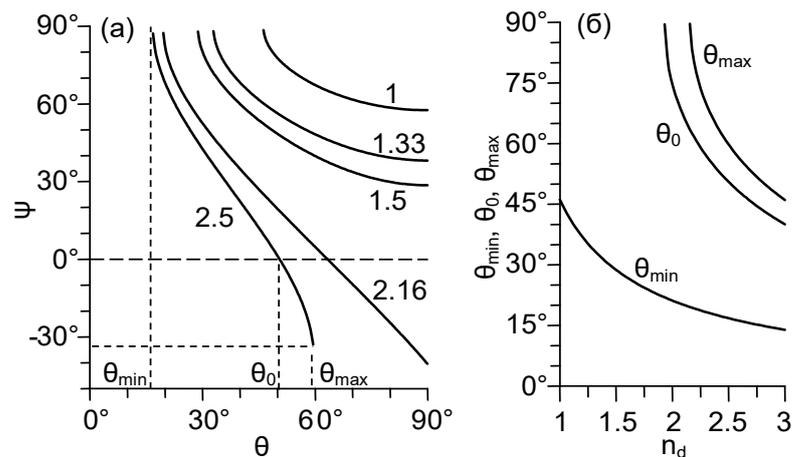


Рисунок 2.16. (а) Угол выводящей призмы ψ в зависимости от угла вводящей призмы θ для различных n_d (указанных около соответствующих кривых). (б) Характерные углы θ_{\min} , θ_0 и θ_{\max} в зависимости n_d .

Интенсивность оптического импульса в системе координат, приведенной на Рисунке 2.15, можно записать как

$$I(x, y, t) = T_{\text{entr}} I_0 \frac{\tau_0}{\tau(x)} G(x, y) e^{-\xi^2/\tau^2(x)}, \quad (2.47)$$

где локальное время $\xi = t - [x \cos(\alpha - \varphi) + y \sin(\alpha - \varphi)]/(V \cos \alpha)$, поперечный (относительно направления распространения) профиль пучка накачки $G(x, y) =$

$\exp[-(y + x \operatorname{tg} \varphi)^2 \cos^2 \theta / \ell_{\perp}^2]$, и T_{entr} – оптический коэффициент пропускания по мощности на границе диэлектрик-LiNbO₃ (при наличии антиотражающие покрытия $T_{\text{entr}} = \cos \theta / \cos \varphi$, в противном случае T_{entr} определяется уравнениями Френеля). Длительность импульса из-за угловой дисперсии (материальная дисперсия пренебрегается) определяется формулой

$$\tau(x) = \tau_0 [1 + (x - x_0)^2 / L_d^2]^{1/2}, \quad (2.48)$$

где дисперсионная длина (согласно уравнениям (2.35) и (2.38))

$$L_d [\text{мм}] \approx 2,3 \times 10^{-5} \times \cos \varphi \tau_{\text{OFWHM}}^2 [\text{фс}]. \quad (2.49)$$

В выражении (2.48) τ_0 - минимальная (спектрально ограниченная) длительность импульса, в плоскости изображения решетки $x = x_0$.

Для расчета генерируемого терагерцового излучения воспользуемся методом, предложенным в п. 2.1.3. Тогда электрическое поле внутри кристалла записывается через Фурье-интеграл

$$E_z(x, y, t) = \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \int_{-\infty}^{\infty} dg \tilde{E}_z(x, g, \omega) e^{i\omega t - igy}, \quad (2.50)$$

где

$$\tilde{E}_z(x, g, \omega) = \frac{2\pi\omega^2}{ih_{LN}c^2} \int_{-\infty}^x dx' \tilde{P}^{\text{NL}}(x', g, \omega) e^{ih_c(x'-x)}, \quad (2.51)$$

волновое число h_c определяется выражением $h_{LN}^2 = \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \varepsilon(\omega) - g^2$, а $\tilde{P}^{\text{NL}}(x', g, \omega)$ представляет собой фурье-образ от нелинейной поляризации $P^{\text{NL}}(x', y', t) = d_{\text{eff}} \frac{8\pi}{cn_{\text{opt}}} I(x, y, t)$, где $I(x, y, t)$ определяется уравнением (2.47). Дисперсию $\varepsilon(\omega)$, как и ранее, будем описывать однорезонансной моделью (1.4) с параметрами, приведенными в п. 2.1.2 для LiNbO₃ при комнатной температуре.

Терагерцовую энергию W , излучаемую в свободное пространство (на единицу длины по оси z), находим путем интегрирования x -компоненты вектора Пойнтинга в кремниевой призме (при $x = L+$) по $-\infty < y < \infty$ и $-\infty < t < \infty$ с учетом коэффициента Френеля для границе Si-воздух $T_{\text{Si/air}} = 4n_{\text{Si}}(1 + n_{\text{Si}})^{-2}$, что дает $W = \int_0^{\infty} w(\omega) d\omega$ и спектральная плотность

$$w(\omega) = 2\pi c^2 T_{\text{Si/air}} \int_{-\infty}^{\infty} dg \frac{\operatorname{Re} h_{\text{Si}}}{\omega} T_{\text{LN/Si}}(\omega, g) |\tilde{E}_z(x = L-, g, \omega)|^2 \quad (2.52)$$

В уравнении (2.52) $h_{Si} = (\omega^2 n_{Si}^2 / c^2 - g^2)^{1/2}$, $T_{\text{exit}} = |2h_{LN} / (h_{LN} + h_{Si})|^2$. Эффективность преобразования оптического излучения в терагерцовое определяется как W/W_{opt} , где $W_{\text{opt}} = \pi \ell_{\perp} \tau_0 I_0$ - энергия лазерного импульса накачки на единицу длины по оси z .

На Рисунке 2.17(a) показана зависимость эффективности от угла θ для различных значений n_d , полученная на основе уравнения (2.52). При $n_d \leq 2.16$ эффективность стремится к нулю на границах интервала $\theta_{\min} \leq \theta \leq 90^\circ$ и имеет максимум внутри интервала. Максимум достигается при $\theta \approx \theta_{\min} + 10^\circ$ для $n_d = 1,33$ и 1, и при $\theta \approx 63^\circ$ для $n_d = 2,16$. Важно отметить, что максимальная эффективность всего в ~ 2 -3 раза меньше для $n_d = 1,33$ и 1 по сравнению с $n_d = 2,16$. При $n_d > 2,16$ эффективность монотонно возрастает с увеличением θ в интервале $\theta_{\min} \leq \theta \leq \theta_{\max}$.

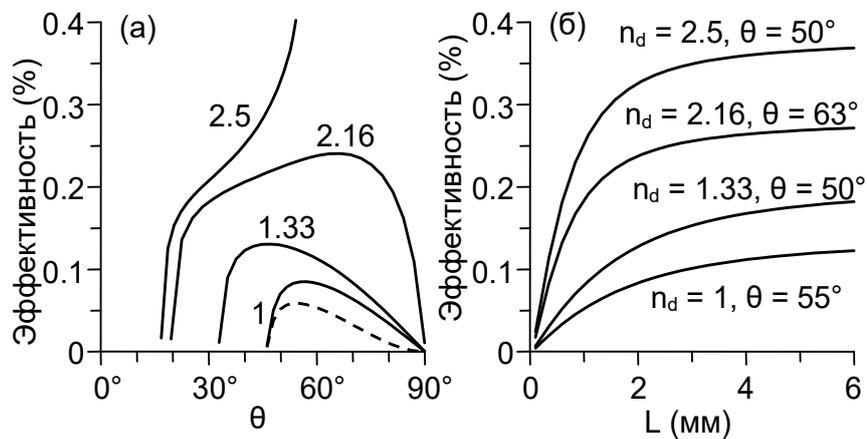


Рисунок 2.17. (а) Эффективность оптико-терагерцовой конверсии в зависимости от θ при различных n_{od} . Сплошные линии получены при наличии просветляющего покрытия на входной границе LiNbO_3 . Штриховая кривая – рассчитана для случая отсутствия просветляющего покрытия на входной границе LiNbO_3 . (б) Эффективность в зависимости от толщины кристалла L при различных θ и n_d . Значения остальных параметров: $\tau_{\text{0FWHM}} = 100$ фс, $\ell_{\perp\text{FWHM}} = 5$, и $I_0 = 10$ ГВт/см².

Поведение кривых на Рисунке 2.17(a) обусловлено тремя факторами, которые зависят от θ . Во-первых, френелевские потери терагерцового излучения на границе LiNbO_3 -Si. Во-вторых, изменение размера пучка накачки при преломлении на границе диэлектрик- LiNbO_3 . В-третьих, изменение угла между фронтом импульса накачки и плоскостью изображения решётки в LiNbO_3 . Первый фактор приводит к снижению

эффективности при $\theta \rightarrow \theta_{\min}$ для любых n_d , так как угол падения $\alpha - \varphi$ терагерцового излучения на границу LiNbO₃-Si приближается к критическому углу полного внутреннего отражения $\approx 44^\circ$. Второй фактор приводит к расширению пучка накачки при его прохождении в пластину LN для $n_d < 2,16$ или его сжатию для $n_d > 2,16$. В результате оптическая интенсивность уменьшается или увеличивается, что приводит к снижению или росту эффективности при $\theta \rightarrow \pi/2$ и $\theta \rightarrow \theta_{\max}$, соответственно. Третий фактор существенен только при $\theta > \alpha$ и приводит к снижению эффективности с ростом θ из-за уменьшения длины взаимодействия между импульсом накачки и генерируемой терагерцовой волной (см. п. 2.1.3). Во всех случаях антиотражающее покрытие увеличивает эффективность преобразования (что показано только для $n_d = 1$).

На Рисунке 2.17(б) показано, что эффективность возрастает с увеличением толщины кристалла LiNbO₃, достигая насыщения быстрее для больших значений n_d . Это можно объяснить уменьшением дисперсионной длины L_d ввиду зависимости $L_d \propto \cos \varphi$ (см. уравнение (2.49)), когда с ростом n_d из-за закона Снеллиуса увеличивается φ . Значения эффективности в насыщении выше для больших n_d . Практический вывод из Рисунка 2.17(б) заключается в том, что использование кристаллов толще 3-4 мм мало увеличивает эффективность (хотя может быть полезным для более длинных импульсов накачки).

Для экспериментального применения предложенной схемы необходимо знать параметры дифракционной решётки и оптического телескопа, необходимых для создания нужного угла скоса фронта интенсивности лазерного импульса, а также требуемого угла изображения решетки. Для расчета этих параметров был использован подход на основе работы [38]. В результате были получены следующие выражения

$$\operatorname{tg} \theta = \frac{n_d}{M} \operatorname{tg} \varphi_D, \quad \operatorname{tg} \alpha = \frac{\lambda_{opt} M \cos \theta}{n_g \Lambda \cos \varphi_D \cos \varphi}, \quad (2.53)$$

где φ_D - угол дифракции (см. Рисунок 2.10), M - уменьшение телескопа, Λ - период решётки, а λ_{opt} - длина волны лазера. Учитывая закон Снеллиуса $\sin \varphi = (n_d/n_{opt}) \sin \theta$ и уравнение решётки в конфигурации Литтроу $\sin \beta = \lambda/(2\Lambda)$, уравнения (2.53) определяют зависимости Λ и M от θ , приведенные на Рисунках 2.18 (а) и 2.18(б), соответственно (на практике угол φ_D отклоняется от угла Литтроу примерно на $\pm 10^\circ$ [65]).

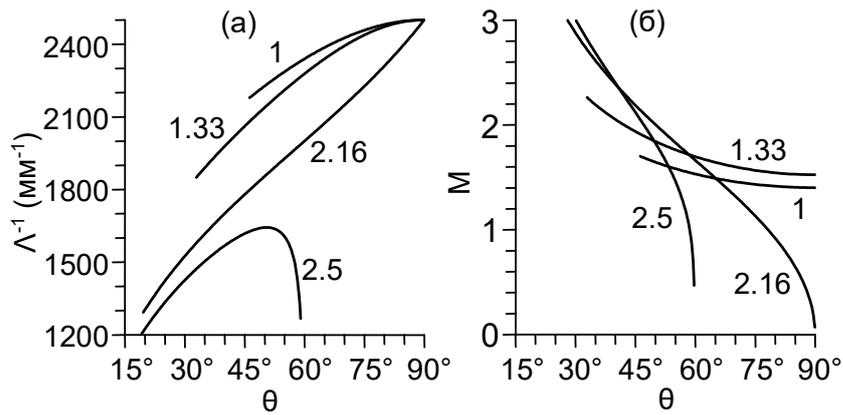


Рисунок 2.18. (а) Плотность штрихов дифракционной решётки и (б) уменьшение телескопа в зависимости от угла θ при различных значениях показателя преломления диэлектрической призмы n_d .

Приведенные на Рисунке 2.18 зависимости будут использованы для расчета оптимальных параметров экспериментальной схемы, которая будет рассмотрена в п. 2.2.2.

2.1.5. Анализ схемы со скашиванием импульса накачки при помощи дифракционной решетки на границе кристалла

В данном параграфе приведена строгая теория генерации терагерцового излучения лазерными импульсами со скошенным фронтом интенсивности, формируемыми дифракционной решеткой, расположенной на входной границе плоского слоя электрооптического кристалла. Расширяя одномерную теорию работы [144], данная теория учитывает конечный поперечный размер пучка лазерной накачки, что важно ввиду поперечного выбегания терагерцовых волн из области источника (см. п. 2.1.2). Также теория учитывает расплывание импульса накачки, из-за угловой и материальной дисперсий. Также более детально прорабатывается идея использования частотно-модулированных (чирпированных) импульсов накачки, которые испытывают дисперсионное сжатие в кристалле, чтобы уменьшить негативное влияние сильного поглощения терагерцового излучения на частотах ≥ 1 ТГц в таких материалах, как LiNbO_3 . В отличие от работы [144], где частотная модуляция (чирп) импульса выбирался для минимизации длительности импульса в центре кристалла, в данной теории предлагается оптимизировать предварительный чирп с точки зрения максимизации энергии терагерцового излучения. Для кристаллов типа LiNbO_3 предлагается настраивать

чирп на значение, при котором импульс достигает минимальной фурье-ограниченной длительности вблизи выходной границы кристалла. Поскольку более короткие импульсы накачки излучают более высокие терагерцовые частоты, то частоты ≥ 1 ТГц будут генерироваться вблизи выходной границы и, следовательно, не будут существенно ослабляться при выходе из кристалла. В то же время практически вся толщина кристалла будет эффективно использоваться для генерации слабо поглощаемых низких частот.

Как и в предыдущих параграфах будем рассматривать двумерный случай, когда оптический импульс накачки бесконечен в одном направлении и имеет конечную ширину в другом направлении (случай фокусировки цилиндрической линзой). Пусть такой импульс падает по нормали (вдоль оси x) на пропускающую дифракционную решетку, расположенную на входной границе $x = 0$ электрооптического кристалла (Рисунок 2.19).

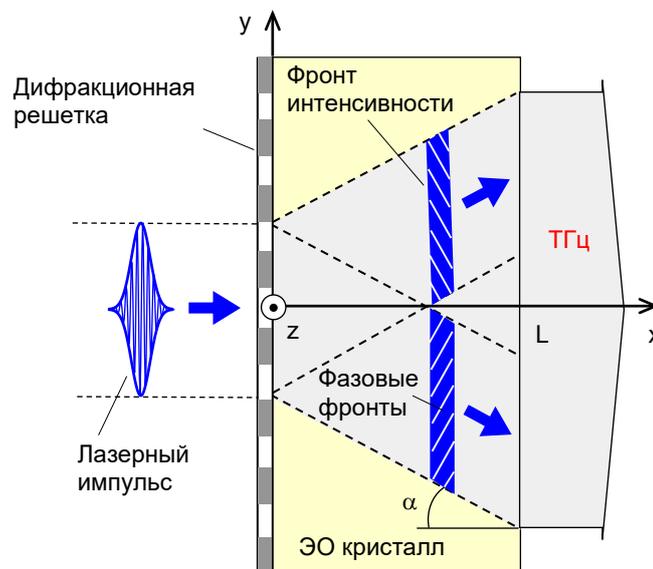


Рисунок 2.19. Геометрия задачи: лазерный импульс падает на дифракционную решетку, нанесенную на входную поверхность электрооптического (ЭО) кристалла. В результате дифракции формируются два лазерных импульса (для голографической решетки) со скошенным фронтом интенсивности (угол скоса α), которые генерируют терагерцовое излучение.

Электрическое поле $E_{opt}(x, y, t)$ лазерного импульса имеет амплитуду $E_0 = (0, 0, E_0)$, центральную частоту $\tilde{\omega}_0$, а также гауссову временную огибающую и поперечный (вдоль оси y) профиль:

$$E(0-, y, t) = E_0 \exp\left(i\tilde{\omega}_0 t + \frac{i\delta t^2}{2\tau_0^2} - \frac{t^2}{2\tau_0^2} - \frac{y^2}{2\ell_\perp^2}\right), \quad (2.54)$$

где δ - параметр чирпа, а размер ℓ_\perp предполагается достаточно большим, чтобы можно было пренебречь дифракционной расходимостью лазерного импульса на длине кристалла L .

Применяя преобразование Фурье по времени к уравнению (2.54), оптические импульсы, дифрагированные в ± 1 порядки, могут быть записаны как

$$E_{\pm 1}(x, y, t) = \frac{\tau_0}{[2\pi(1-i\delta)]^{1/2}} T_{\pm 1} E_0 e^{i\tilde{\omega}_0 t \mp iGy - y^2/(2\ell_\perp^2)} \int_{-\infty}^{\infty} d\Omega e^{i\Omega t - ik_x x - \Omega^2 \tau_0^2/[2(1-i\delta)]} \quad (2.55)$$

где $\Omega = \tilde{\omega} - \tilde{\omega}_0$, $T_{\pm 1}$ - коэффициенты пропускания для ± 1 порядков, $G = 2\pi/\Lambda$ - пространственная частота штрихов решётки (где Λ - период решётки), и $k_x = [(\tilde{\omega}_0 + \Omega)^2 n^2 c^{-2} - G^2]^{1/2}$ - x -компонента волнового вектора (где $n = n(\tilde{\omega}_0 + \Omega)$ - оптический показатель преломления кристалла). Угол дифракции α определяется как $\sin \alpha = \lambda_0/(n_0 \Lambda)$, где $\lambda_0 = 2\pi c/\tilde{\omega}_0$ - центральная длина волны в вакууме, а $n_0 = n(\tilde{\omega}_0)$. Разлагая k_x в степенной ряд до второго порядка по Ω , интеграл в уравнении (2.55) может быть вычислен аналитически:

$$E_{\pm 1}(x, y, t) \approx T_{\pm 1} E_0 \left(\frac{\tau_0}{\tau}\right)^{1/2} e^{-\xi^2/(2\tau^2) - \eta_\pm^2/(2\ell_\perp^2)} e^{i\tilde{\omega}_0 t \mp iGy - iGx \cot \alpha + i\phi(x)}, \quad (2.56)$$

где

$$\tau(x) = \frac{\tau_0}{(1+\delta^2)^{1/2}} \left[1 + \left\{ \delta - \frac{x(1+\delta^2)}{c^2 \tau_0^2} \left(\frac{n_g^2 \operatorname{tg}^3 \alpha}{G} - \frac{c^2 GVD}{\cos \alpha} \right) \right\}^2 \right]^{1/2} \quad (2.57)$$

описывает изменение длительности импульса с x из-за угловой (первый член в круглых скобках) и материальной (второй член) дисперсий, $\xi = t - n_g x/(c \cos \alpha)$, $\eta_\pm = y \mp x \operatorname{tg} \alpha$, GVD - дисперсия групповой скорости в кристалле. Минимальная длительность импульса $\tau_m = \tau_0(1+\delta^2)^{-1/2}$ достигается при

$$x_m = \delta c^2 \tau_m^2 \left(\frac{n_g^2 \operatorname{tg}^3 \alpha}{G} - \frac{c^2 GVD}{\cos \alpha} \right)^{-2}. \quad (2.58)$$

Дисперсионная длина определяется формулой

$$L_d = \sqrt{3} c^2 \tau_m^2 \left| \frac{n_g^2 \operatorname{tg}^3 \alpha}{G} - \frac{c^2 GVD}{\cos \alpha} \right|^{-1}. \quad (2.59)$$

Фазовая модуляция $\phi(x)$ в выражении (2.56) не будет влиять на нелинейную поляризацию, создаваемую дифрагированными импульсами в кристалле за счет оптического выпрямления, поэтому выражение для $\phi(x)$ можно не приводить.

Далее будут рассмотрены две возможные экспериментальные конфигурации, представляющие интерес [145]: рельефная решётка, на которой падающий лазерный импульс дифрагирует только в один из ± 1 порядков ($T_{+1} \neq 0, T_{-1} = 0$) и голографическая решётка с равными эффективностями в ± 1 порядках ($T_{+1} = T_{-1}$). Будем полагать, что эффективность дифракции составляет 100%, а значит $T_{+1} = (n_0 \cos \alpha)^{-1/2}$ для рельефной решётки и $T_{+1} = T_{-1} = (2n_0 \cos \alpha)^{-1/2}$ для голографической решётки. Как и в предыдущих параграфах данной главы будем рассматривать типичную ситуацию, когда нелинейная поляризация ориентирована вдоль оси z [44], [63]. В случае рельефной решетки нелинейная поляризация принимает вид

$$P_z^{NL} = p \frac{\tau_0}{\tau(x)} e^{-\xi^2/\tau(x)^2 - \eta_+^2/\ell_1^2}, \quad (2.60)$$

тогда как для голографической решётки нелинейная поляризация

$$P_z^{NL} = p \frac{\tau_0}{\tau(x)} e^{-\xi^2/\tau(x)^2} [e^{-\eta_+^2/\ell_1^2} + e^{-\eta_-^2/\ell_1^2} + 2 \cos(2Gy) e^{-(y^2+x^2 \operatorname{tg}^2 \alpha)/\ell_1^2}]. \quad (2.61)$$

В обоих случаях модуль амплитудного вектора p равен $p = d_{\text{eff}} T_{+1}^2 E_0^2$.

Для расчета терагерцового поля воспользуемся уравнениями (2.50) и (2.51), в которых фурье-образ нелинейной поляризации $\tilde{P}_z^{NL}(x, g, \omega)$ рассчитывается из уравнений (2.60) или (2.61) с учетом (2.57). Для описания прохождения терагерцового поля через выходную границу кристалла ($x = L$) можно использовать стандартный коэффициент пропускания Френеля в рассматриваемом режиме генерации близким к фазовому синхронизму ($n_g/\cos \alpha \approx \sqrt{\epsilon}$) (см. п. 1.3). Для вычисления энергии терагерцового излучения W , излучаемой из кристалла (на единицу длины вдоль оси z), проинтегрируем x -компоненту вектора Пойнтинга в вакууме (при $x = L +$) по бесконечным интервалам $-\infty < y < \infty$ и $-\infty < t < \infty$. Эффективность оптико-терагерцового преобразования определяется как W/W_{opt} , где W_{opt} - энергия падающего оптического импульса.

Рассмотрим два практически важных случая: кристалл LiNbO_3 при накачке излучением титан-сапфирового лазера (длина волны 0,8 мкм), и GaAs при накачке на длине волны 1,8 мкм. Использование в последнем случае длины волны 1,8 мкм может быть оптимальной для умеренных интенсивностей накачки, поскольку, в отличие от

более коротких длин волн, устраняет двухфотонное поглощение и, в то же время, требует относительно малого угла скоса $\sim 10^\circ$ (см. п. 2.1.2) по сравнению с более длинноволновой накачкой. Лазерные импульсы с меньшими углами скоса испытывают меньшую угловую дисперсию и, следовательно, могут служить эффективным источником терагерцовых волн при больших толщинах кристалла. Параметры указанных кристаллов, взятые для расчета, приведены в п. 2.1.2 (а также терагерцовые константы для GaAs в п. 1.4.2).

Сначала рассмотрим кристалл LiNbO_3 и схему с рельефной решёткой (при наличии только +1 порядка дифракции). На Рисунке (2.20) показано, как эффективность и терагерцовый спектр зависят от положения плоскости минимальной длительности с координатой x_m (см. уравнение (2.58)) для различных спектрально-ограниченных длительностей лазерного импульса τ_m и толщин кристалла L . Пиковая оптическая интенсивность фиксирована на уровне $I_0 = 10 \text{ ГВт/см}^2$, поэтому энергия импульса увеличивается с ростом τ_m . Для коротких лазерных импульсов с $\tau_m^{\text{FWHM}} \sim 50 - 200 \text{ фс}$ наивысшая эффективность достигается, когда x_m находится близко к выходной границе кристалла (Рисунок 2.20(а, б)); этот эффект более выражен для более толстого кристалла. Важно отметить, что подстройка x_m в положение максимальной эффективности позволяет одновременно достичь более широкого терагерцового спектра (Рисунок 2.20(в, г)). Для кристалла толщиной 1 мм оптимальная длительность составляет около 200 фс. С увеличением толщины растет эффективность, а также оптимальная длительность. Однако при этом генерируется более низкочастотный спектр (Рисунок 2.20(в, г)).

В работе [144] чирп импульса накачки выбирался таким образом, чтобы минимальная длительность импульса τ_m достигалась в центре кристалла, т.е. при $x_m = L/2$. Рисунок 2.20 демонстрирует, что такой выбор является не оптимальным как с точки зрения эффективности, так и ширины спектра.

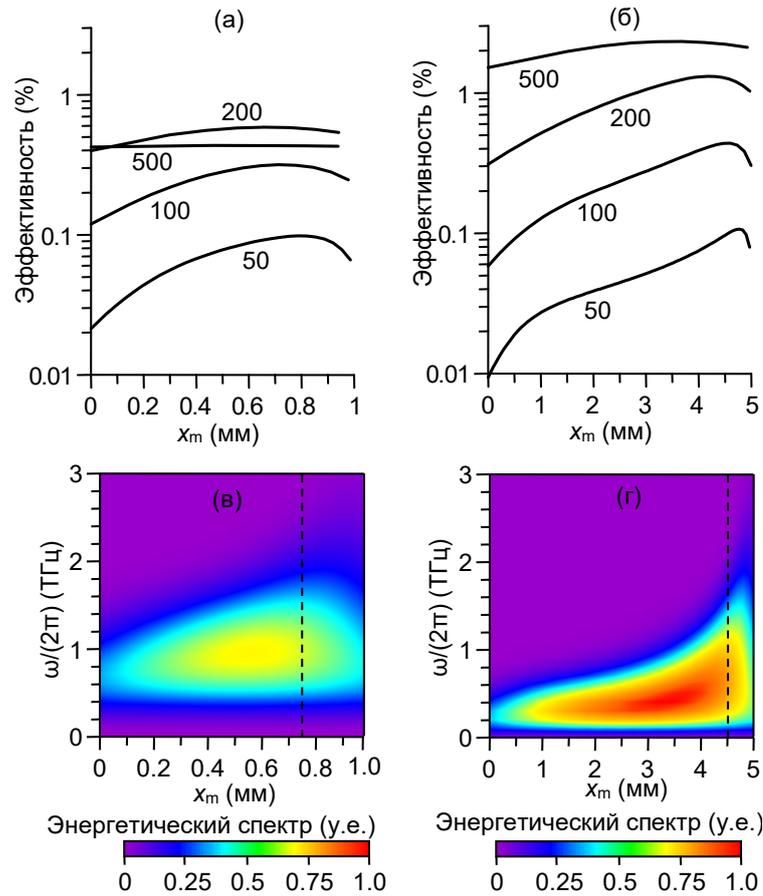


Рисунок 2.20. (а,б) Эффективность оптико-терагерцовой конверсии в LiNbO_3 в зависимости от x_m для различных τ_m^{FWHM} (указаны в фс рядом с соответствующими кривыми). (в, г) Терагерцовый спектр в зависимости от x_m для $\tau_m^{\text{FWHM}} = 100$ фс. Пунктирные вертикальные линии отмечают положение x_m с максимальной эффективностью. Толщина кристалла составляет $L = 1$ мм на (а, в) и $L = 5$ мм на (б, г). Параметры накачки: $I_0 = 10$ ГВт/см², $\alpha = 63,16^\circ$ и $\ell_{\text{FWHM}} = 5$ мм.

На Рисунке 2.21 приведено сравнение эффективностей, рассчитанных в зависимости от L при разных τ_m^{FWHM} и ℓ_{FWHM} для случаев $x_m = L/2$ (Рисунок 2.21(а)) и оптимальной координатой x_m , максимизирующей генерируемую энергию (Рисунок 2.21(б)). В случае $x_m = L/2$ эффективность имеет максимум при определённой толщине кристалла L_{max} , которая зависит от τ_m^{FWHM} и ℓ_{FWHM} . Уменьшение эффективности для более толстых кристаллов ($L > L_{\text{max}}$) можно объяснить поглощением высокочастотных терагерцовых компонент, генерируемых в окрестности $x_m = L/2$, на их пути к выходной границе $x = L$. В случае оптимального x_m , эффективность не уменьшается с ростом L , а насыщается при значениях, зависящих от τ_m^{FWHM} и ℓ_{FWHM} . Интересно, что значения L_{max}

лежат области начала насыщения кривых на Рисунок 2.21(б) и хорошо согласуются с результатами одномерных расчётов в работе [144].

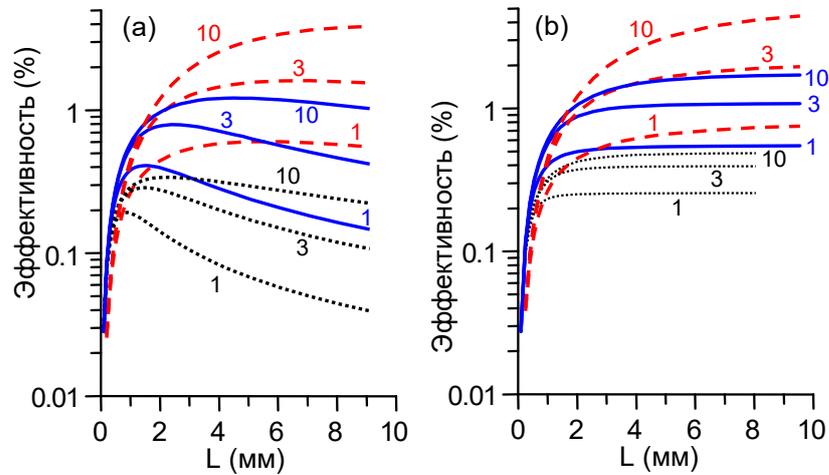


Рисунок 2.21. Эффективность оптико-терагерцовой конверсии в LiNbO_3 в зависимости от толщины кристалла L для случаев: (а) $x_m = L/2$ и (б) оптимального значения x_m . Значения ℓ_{LFWHM} указаны в мм рядом с соответствующими кривыми, $\tau_m^{\text{FWHM}} = 100$ фс (пунктирные линии), 200 фс (сплошные линии), 500 фс (линии точками). Параметры оптической накачки: $I_0 = 10$ ГВт/см², $\alpha = 63,16^\circ$.

Рост эффективности с увеличением ℓ_{LFWHM} можно объяснить двумя факторами. Во-первых, увеличение ℓ_{LFWHM} уменьшает эффект поперечного ухода синхронизированной терагерцовой волны из области источника (см. п. 2.1.2). Во-вторых, увеличение ℓ_{LFWHM} эквивалентно увеличению эффективной длительности импульса (см. выражение (1.34)); импульсы с большей эффективной длительностью генерируют черенковское излучение на более низких частотах, которые испытывают меньшее поглощение.

На Рисунках 2.22(а-в) показаны структуры терагерцового поля в свободном пространстве вблизи выходной границы кристалла толщиной 3 мм. Для импульса без чирпа ($\delta = 0$) с минимальной длительностью на входной границе кристалла ($x_m = 0$), выходной терагерцовый импульс имеет низкую интенсивность и состоит из низкочастотных компонент, однако пучок обладает хорошим качеством (Рисунок 2.22(а)). Для чирпированных импульсов Рисунки 2.22(б,в) терагерцовый пучок становится пространственно чирпированным и неоднородным по интенсивности. Для

импульса с $x_m = L/2$ пучок довольно симметричен, и обладает высокочастотной и более интенсивной центральной частью (Рисунок 2.22(б)). Для импульса с оптимальным x_m пучок сильно асимметричен: в верхней части пучка имеется широкополосная высокоинтенсивная часть, а в нижней части – слабое низкочастотное излучение (Рисунок 2.22(в)). Интенсивная широкополосная часть пучка выходит из кристалла сразу за лазерным импульсом. Низкочастотное излучение достигает выходной границы при различных y от точек внутри кристалла, где оно было излучено, из-за эффекта поперечного ухода. В принципе, поперечная спектральная неоднородность терагерцового пучка может быть несущественной благодаря его последующей фокусировке, но может влиять на расходимость в свободном пространстве.

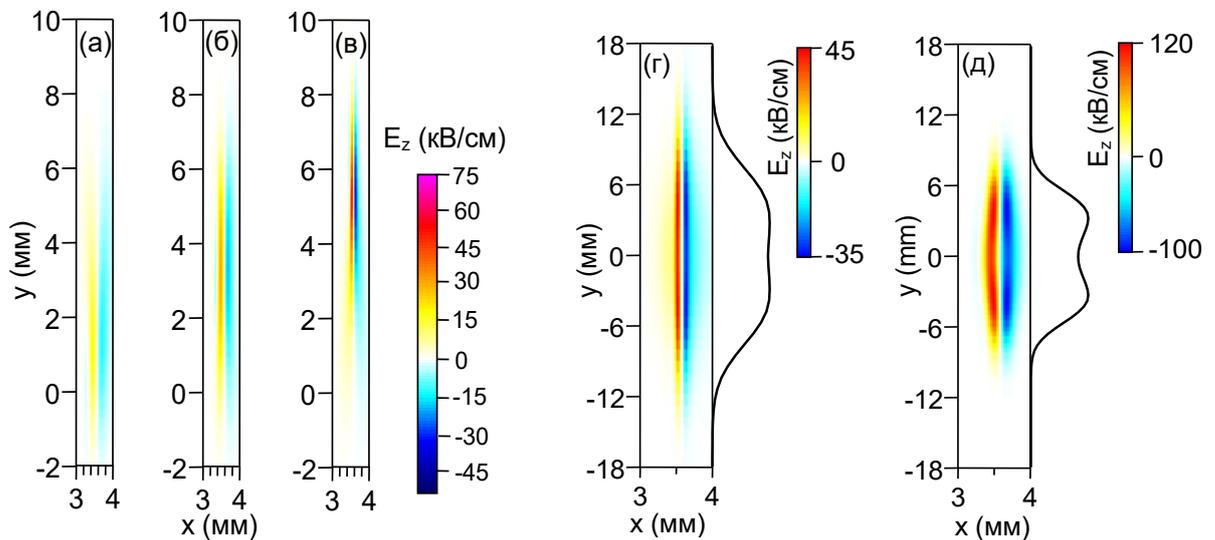


Рисунок 2.22. Структура электрического поля в свободном пространстве вблизи выходной границы LiNbO_3 толщиной $L = 3$ мм для случаев (а-в) рельефной и (г-д) голографической решёток. На (а) $x_m = 0$, (б) $x_m = L/2 = 1.5$ мм, (в) выбрана оптимальная $x_m = 2.7$ мм. Остальные параметры: $\tau_m^{\text{FWHM}} = 100$, $\ell_{\perp\text{FWHM}} = 10$ мм. На (г) $\ell_{\perp\text{FWHM}} = 10$ мм, $\tau_m^{\text{FWHM}} = 200$ фс, $x_m = 2.7$ мм, (д) $\ell_{\perp\text{FWHM}} = 5$ мм, $\tau_m^{\text{FWHM}} = 500$ фс, $x_m = 2.55$ мм. Везде $I_0 = 10$ ГВт/см² и $\alpha = 63.16^\circ$. Заметим, что оси x и y имеют разный масштаб.

Теперь кратко обсудим случай голографической решётки. На Рисунках 2.22(г,д) показаны структуры поля для двух различных импульсов накачки. Параметры импульсов выбраны так, чтобы обеспечить генерацию качественных терагерцовых пучков с плоской центральной частью (см. также поперечные профили плотности энергии терагерцового

излучения сбоку соответствующих рисунков). На Рисунке 2.22(г) благодаря большому поперечному размеру лазерного импульса ($\ell_{\perp\text{FWHM}} = 10$ мм) оптические пучки ± 1 порядков перекрываются, генерируя перекрывающиеся терагерцовые поля. Они формируют пучок с плоской центральной частью. На Рисунке 2.22(д), несмотря на меньший поперечный размер импульса ($\ell_{\perp\text{FWHM}} = 5$ мм) и значительное пространственное разделение оптических пучков ± 1 порядков на выходной границе кристалла, они тем не менее формируют терагерцовый пучок с почти плоской центральной частью. Это обусловлено относительно большой длительностью импульса $\tau_m^{\text{FWHM}} = 500$ фс. Такой импульс не испытывает значительного дисперсионного уширения в кристалле и генерирует слабо поглощаемые низкочастотные терагерцовые волны. Волны, генерируемые вблизи входной границы кристалла, достигают центральной части выходной границы и заполняют промежуток между оптическими пучками, формируя качественный терагерцовый пучок. Таким образом, даже в случае голографической решётки можно получить качественный терагерцовый пучок, используя относительно широкие оптические пучки или относительно длинные лазерные импульсы.

В GaAs угол $\alpha_{\text{cr}} \approx 13^\circ$ значительно меньше, чем в LiNbO₃. Использование меньших углов скоса уменьшает как угловую дисперсию лазерного импульса накачки (увеличивает L_d), так и поперечный уход генерируемых терагерцовых волн (увеличивает L_{tw} (см. обсуждение в п. 2.1.2 и выражение (2.26)). Дополнительно, благодаря меньшему поглощению терагерцового излучения в GaAs, длина затухания $L_a = c/(\omega|\text{Im}\sqrt{\epsilon}|)$ более чем на порядок превышает соответствующее значение для LiNbO₃. Благодаря этим факторам можно использовать толстые кристаллы GaAs для достижения высокой эффективности генерации. Более того, в GaAs можно генерировать более высокие терагерцовые частоты по сравнению с LiNbO₃.

Начнем рассмотрение случая рельефной решетки. Пусть угол скоса $\alpha = \alpha_{\text{cr}} + 1^\circ \approx 14^\circ$, так что синхронизм с накачкой достигается на частоте $\omega_0/(2\pi) \approx 2$ ТГц. На Рисунке 2.23 (а) показана зависимость эффективности от длины кристалла L для различных τ_m^{FWHM} и $\ell_{\perp\text{FWHM}}$. Для каждого L эффективность максимизируется соответствующим выбором x_m . Следует отметить, что из-за относительно слабого поглощения терагерцового излучения в GaAs, влияние x_m на эффективность умеренное, особенно для больших τ_m^{FWHM} . Например, для $\tau_m^{\text{FWHM}} = 200$ фс эффективность изменяется не более чем на $\sim 10\%$

при вариации x_m от $L/2$ до L даже в толстом кристалле с $L = 3$ см (при $x_m < L/2$ эффективность снижается более значительно).

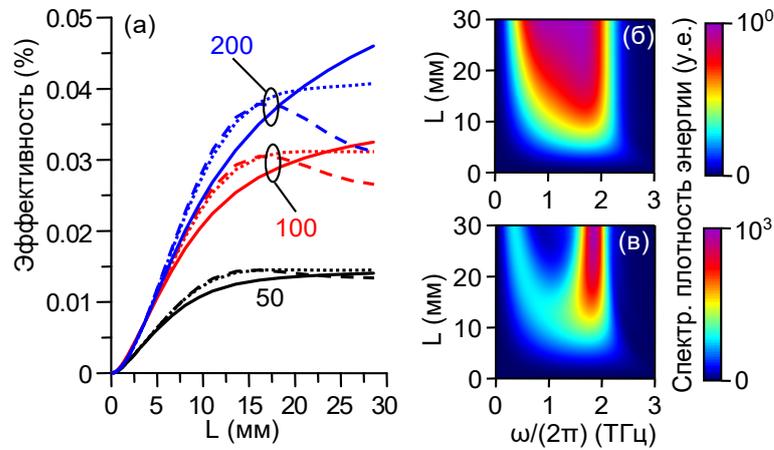


Рисунок 2.23. (а) Эффективность генерации в GaAs с рельефной решеткой в зависимости от толщины кристалла L для различных значений τ_m^{FWHM} (указаны в фс рядом с соответствующими кривыми) и $\ell_{\perp\text{FWHM}} = 2$ мм (сплошные линии), 5 мм (штриховые линии) и 15 мм (линии точками). (б,в) Зависимость терагерцового спектра от L для $\tau_m^{\text{FWHM}} = 200$ фс при (б) $\ell_{\perp\text{FWHM}} = 2$ мм и (в) $\ell_{\perp\text{FWHM}} = 15$ мм. Остальные параметры: $I_0 = 0,1$ ГВт/см², $\alpha = 14^\circ$.

Для $\ell_{\perp\text{FWHM}} = 5$ мм и 15 мм длина поперечного ухода составляет $L_{tw} \approx 2$ см и 6 см соответственно, что превышает длину нарастания амплитуды ($L_b \approx 1,5$ см, см. уравнение (2.24)) и длину формирования волнового пакета ($L_e \approx 1,5$ см, см. уравнение (2.25)) при $\alpha - \alpha_{\text{cr}} = 1^\circ$ (см. также Рисунок 2.7(б)). Таким образом, эффект поперечного ухода не играет роли в формировании терагерцового волнового пакета, и этот процесс может быть описан в приближении плоского оптического импульса с бесконечным поперечным размером (см. п. 2.1.2). Согласно этому приближению, полное формирование синхронизированной волны происходит на расстоянии $L_b \approx L_e \approx 1,5$ см. Это объясняет насыщение кривых для $\ell_{\perp\text{FWHM}} = 5$ и 15 мм на Рисунке 2.23. Немонотонный характер кривых для $\ell_{\perp\text{FWHM}} = 15$ мм соответствует колебаниям максимального терагерцового поля в формирующемся волновом пакете в процессе его распространения (аналогично генерации в LiNbO₃ на Рисунке 2.6(г)). Для $\ell_{\perp\text{FWHM}} = 2$ мм длина поперечного ухода $L_{tw} \approx 0,9$ см меньше L_b и L_e . Следовательно, приближение бесконечно широкого оптического пучка накачки неприменимо, и амплитуда генерируемого терагерцового

поля ограничена эффектом поперечного ухода. Увеличение эффективности при $L > 0,9$ см можно объяснить ростом ширины синхронизированного терагерцового пучка из-за поперечного ухода. Однако этот механизм насыщается при $L_a \approx 2$ см для $\omega_0/(2\pi) \approx 2$ ТГц. Дальнейший рост эффективности на Рисунке 2.23(а) можно связать с удлинением низкочастотной асимметричной черенковской компоненты. Этот вывод подтверждается Рисунком 2.23 (б), где наблюдается усиление низкочастотной части спектра (<1 ТГц) с увеличением L . Для $\ell_{\text{FWHM}} = 15$ мм в спектре доминирует спектральные компоненты на частоте фазового синхронизма 2 ТГц (Рисунок 2.23 (в)).

На Рисунке 2.24(а,б) показаны картины излучения в свободном пространстве вблизи выходной границы кристалла для двух значений ℓ_{FWHM} . Для $\ell_{\text{FWHM}} = 15$ мм (Рисунке 2.24(а)) картина излучения определяется преимущественно высокочастотной синхронизированной волной. Слабый низкочастотный черенковский полу-клин (внизу пучка) виден впереди фазово-синхронизированной волны. Терагерцовое поле в черенковском полу-клине состоит из двух соседних импульсов противоположной полярности.

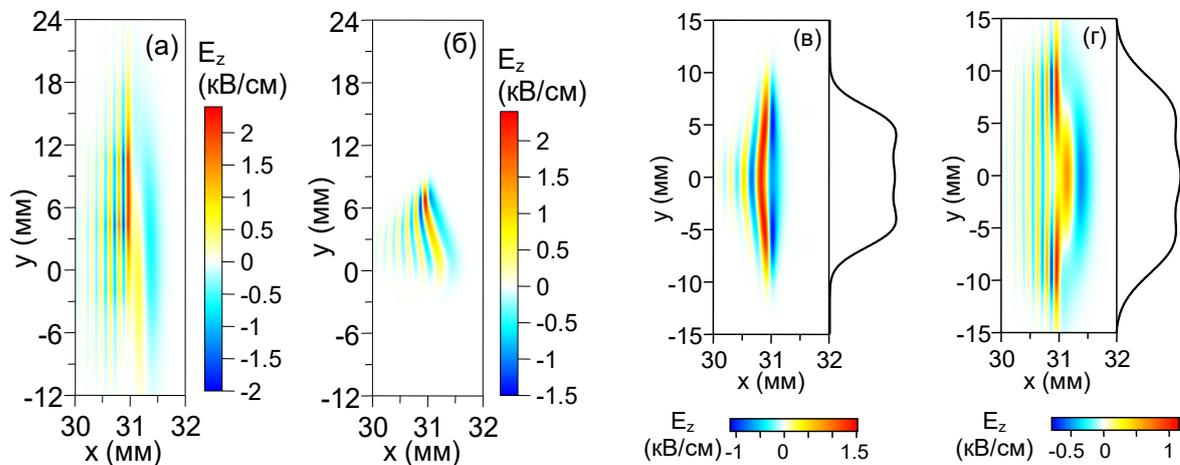


Рисунок 2.24. Структура поля терагерцового излучения вблизи выходной границы кристалла GaAs ($L = 30$ мм) с (а,б) рельефной и (в,г) голографической решетками. Для случая рельефной решетки для $\tau_m^{\text{FWHM}} = 200$ фс, $\alpha = 14^\circ$ и (а) $\ell_{\text{FWHM}} = 15$ мм, (б) $\ell_{\text{FWHM}} = 2$ мм. Для случая голографической решетки $\tau_m^{\text{FWHM}} = 200$ фс и (в) $\ell_{\text{FWHM}} = 5$ мм, $\alpha = 13^\circ$, (г) $\ell_{\text{FWHM}} = 10$ мм, $\alpha = 14^\circ$. Везде $I_0 = 0,1$ ГВт/см². На рисунках (в,г) сбоку показано распределение плотности потока энергии. На рисунках оси x и y имеют разный пространственный масштаб.

Для $\ell_{\perp\text{FWHM}} = 2$ мм (Рисунке 2.24(б)) низкочастотный черенковский полу-клин является существенной частью диаграммы направленности. Наблюдается эффект поперечного ухода для синхронизированной волны. В целом, поперечный профиль терагерцового пучка сильно неоднороден как по интенсивности, так и по частоте.

Расчет для голографической решётки Рисунках 2.24(в,г) демонстрирует два примера генерации плоского терагерцового пучка. Для $\ell_{\perp\text{FWHM}} = 5$ мм и $\alpha = \alpha_{\text{cr}} = 13^\circ$ (Рисунок 2.24(в)) как плотность энергии терагерцового излучения, так и частота распределены равномерно по сечению пучка, несмотря на значительное пространственное разделение оптических пучков ± 1 порядков на выходной границе довольно толстого ($L = 3$ см) кристалла GaAs. Для более широкого пучка $\ell_{\perp\text{FWHM}} = 10$ мм, но с большей отстройкой от критического угла $\alpha = \alpha_{\text{cr}} + 1^\circ = 14^\circ$ (Рисунок 2.24(г)) поперечный профиль плотности энергии имеет плоскую центральную часть, однако пространственное распределение частот более сложное. В центральной части пучка ($|y| \lesssim 5$ мм) относительно сильные низкочастотные черенковские импульсы следуют за 2-ТГц синхронизированной волной. На периферии пучка ($5 < |y| \lesssim 10$ мм) доминирует синхронизированная волна.

Интересный способ улучшения генерации терагерцового излучения с помощью скошенных лазерных импульсов в GaAs заключается в точном подборе длины волны накачки для достижения взаимной компенсации угловой и материальной дисперсии в уравнении (см. выражение (2.59)). Если компенсация достигнута, даже короткий импульс со скошенным фронтом может распространяться в кристалле без дисперсионного уширения, обеспечивая эффективную генерацию широкого терагерцового спектра. Для этого требуемая длина волны лазера составляет $\sim 2,1$ мкм.

2.2. Экспериментальное исследование

В данном параграфе приводятся результаты экспериментальных исследований по генерации терагерцового излучения скошенными лазерными импульсами в классической схеме с использованием кристалла LiNbO₃ в виде призмы, а также в новой схеме, с использованием плоского слоя LiNbO₃ и двумя согласующими призмами для ввода оптического излучения накачки и вывода сгенерированного терагерцового излучения (описанной ранее в п. 2.1.4).

2.2.1. Оптико-терагерцовая конверсия в призме из LiNbO_3

Схема эксперимента показана на Рисунке 2.25. В качестве источника оптического излучения использовалась фемтосекундная титан-сапфировая лазерная система ($\lambda = 795$ нм, 10 Гц, 10 мДж, 70 фс). Ширина пучка по уровню половины интенсивности (FWHM) составляла 9 мм. Лазерный импульс разделялся на импульс накачки и зондирующий импульсы. Импульс накачки проходил через телескоп с увеличением $\times 0.6$ и затем направлялся на дифракционную решётку (плотность штрихов 2000 мм^{-1}). Лазерное излучение, дифрагированное от решётки, фокусировалось сферическим зеркалом ($F = 306$ мм, $D = 50$ мм) в стехиометрический кристалл LiNbO_3 с 1 мол.% MgO , имеющий форму призмы (входная апертура $7,6 \text{ мм} \times 7,6 \text{ мм}$, длина 15 мм). Данная оптическая система позволяла формировать внутри кристалла лазерный импульс с углом скоса фронта интенсивности $\alpha \sim 63^\circ$, оптимальным для терагерцовой генерации (для расчета параметром схемы были использованы формулы (2.27) и (2.28)). Кристалл был помещён в гелиевый криостат с регулировкой температуры от $T = 4$ К до 293 К.

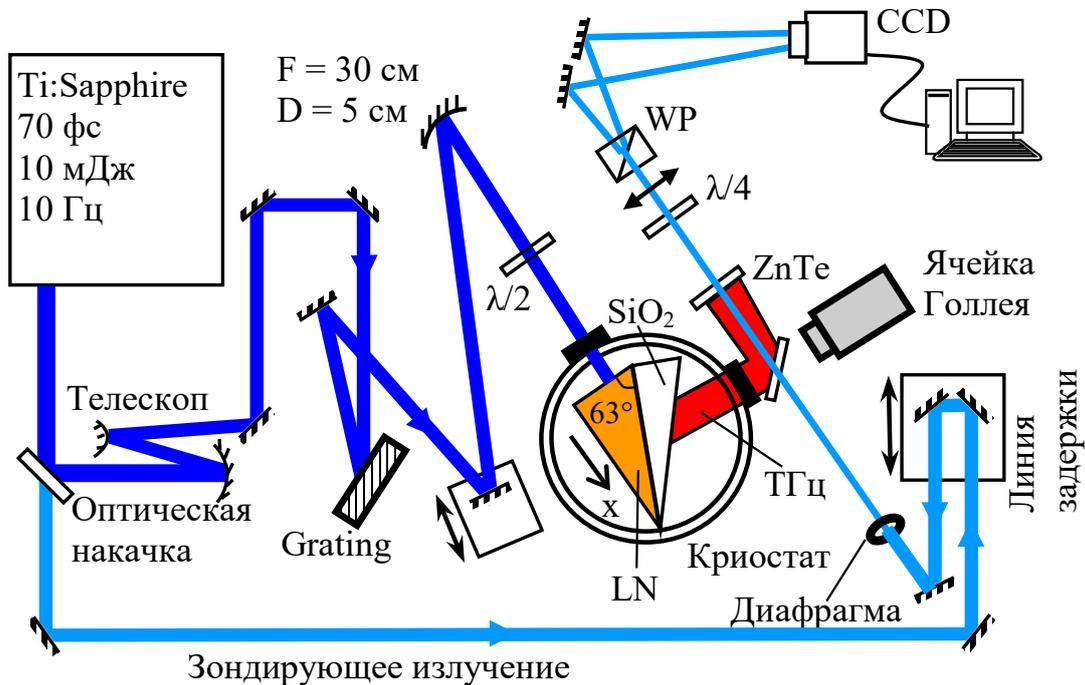


Рисунок 2.25. Схема эксперимента. WP – призма Волластона, LN – кристалл LiNbO_3 .

Диаметр оптического пятна накачки (по уровню половины интенсивности) на входной грани кристалла составлял около 3.3 мм. Пластина $\lambda/2$ перед криостатом использовалась для поворота первоначально горизонтально поляризованного лазерного импульса накачки в вертикальную поляризацию, параллельную оптической оси кристалла LiNbO_3 . При распространении в кристалле скошенные оптические импульсы генерировали терагерцовое излучение перпендикулярно фронту интенсивности накачки, поэтому для вывода терагерцовых импульсов через выходное окно криостата (расположенное под углом 90° относительно входного окна), к выходной грани кристалла LiNbO_3 была прижата кварцевая (SiO_2) прямоугольная призма с углом при вершине 21° .

Энергия терагерцового излучения измерялась с помощью калиброванной ячейки Голя, расположенной на расстоянии ~ 1 см от выходного окна криостата. Также была измерена временная форма терагерцового импульса в центральной части терагерцового пучка. Для этого использовалась техника электрооптического стробирования: ячейка Голя заменялась стеклянной пластиной, отражающей терагерцовый импульс и объединяющей его с зондирующим оптическим импульсом, предварительно прошедшим через линию задержки и диафрагму (Рисунок (2.25)). При распространении обоих импульсов через кристалл ZnTe (толщиной 1 мм и расположенный на расстоянии 6-7 см от кристалла-генератора) терагерцовое поле наводило деполяризацию пробного лазерного импульса, пропорциональное данному полю. Деполяризация зондирующего импульса (разница в интенсивности двух ортогональных поляризаций) измерялась в зависимости от времени задержки с помощью пластины $\lambda/4$, призмы Волластона и CCD камеры.

В ходе эксперимента исследовалось влияние длины кристалла L и длительности импульса τ_{FWHM} на эффективность оптико-терагерцовой конверсии. Для этого оптический пучок фокусировался в различных частях входной грани призмы. Фокусировка пучка вблизи вершины призмы давало $L \approx 5$ мм, а смещение пучка к основанию кристалла давало $L \approx 9$ мм. Для изменения длительности, спектр оптического импульса обрезался в стретчере лазерной системы, что давало $\tau_{FWHM} = 120$ фс и $\tau_{FWHM} = 200$ фс.

На Рисунке 2.26 показана эффективность оптико-терагерцового преобразования η от энергии накачки W_{opt} (и плотности потока энергии F_{opt}) для различных τ_{FWHM} , L и температуры кристалла T . Эффективность измерялась с учётом отражения оптического и

терагерцового излучений от входного и выходного окон кристата, соответственно. Таким образом, η есть отношение энергии терагерцового излучения, излученной из LiNbO_3 через кварцевую призму, к оптической энергии, падающей на входную грань кристалла.

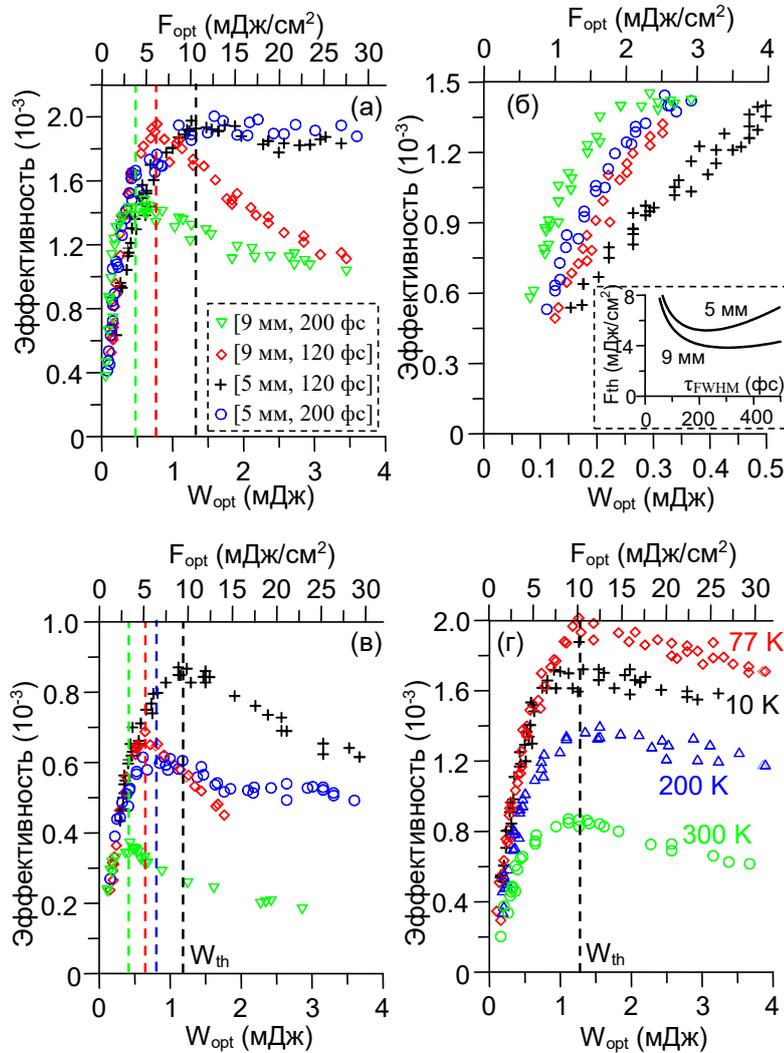


Рисунок 2.26. Эффективность оптико-терагерцовой конверсии в зависимости от оптической энергии W_{opt} (плотности потока энергии F_{opt}) при (а,б) $T = 77$ К и (в) 293 К и разных $[L, \tau_{\text{FWHM}}]$: крестики - [5 мм, 120 фс], кружки - [5 мм, 200 фс], ромбы - [9 мм, 120 фс], треугольники - [9 мм, 200 фс]. На (г) приведены данные при разной температуре (указано около соответствующих точек) при фиксированной $[L, \tau_{\text{FWHM}}] = [5 \text{ мм}, 120 \text{ фс}]$. Во вставке на Рисунке (б) показана теоретически рассчитанная F_{th}^t в зависимости от τ_{FWHM} для разных L .

Из Рисунка 2.26 можно сделать несколько выводов. Существует два режима генерации терагерцового излучения в зависимости от энергии накачки. В слабом-нелинейном режиме генерации, соответствующем низкой энергии накачки, η линейно зависит от W_{opt} . В сильном-нелинейном режиме генерации, когда W_{opt} превышает некоторое пороговое значение W_{th} (соответствующая плотность энергии F_{th}), эффективность насыщается и даже уменьшается. Пороговая плотность энергии зависит от длительности импульса и длины кристалла, но не зависит от температуры (см. Рисунки 2.26 (а,в,г)). Минимальное значение $F_{th} = 3$ мДж/см² получено для $[L, \tau_{FWHM}] = [9$ мм, 200 фс], а максимальное $F_{th} = 10$ мДж/см² - для [5 мм, 120 фс]. В разных режимах генерации максимальная эффективность достигается при разных параметрах $[L, \tau_{FWHM}]$ (при одной энергии накачки). Для охлаждённого кристалла в слабом-нелинейном режиме η максимальна при больших $L = 10$ мм и $\tau_{FWHM} = 200$ фс, и минимальна при малых $L = 5$ мм и $\tau_{FWHM} = 120$ фс (Рисунок 2.25(б)), тогда как в сильно-нелинейном режиме оптимальные параметры инвертируются: максимальная η достигается для [5 мм, 120 фс (200 фс)], а минимальная - для [10 мм, 200 фс] (Рисунок 2.25(а)). Для кристалла при комнатной температуре в слабом-нелинейном режиме большие L и τ_{FWHM} также дают более высокую эффективность, но лишь незначительно. В сильно-нелинейном режиме максимум η также явно наблюдается для малых L и τ_{FWHM} . Эффективность возрастает при понижении температуры и достигает наибольшего значения $\sim 0.2\%$ при $T = 77$ К для $L = 5$ мм, $\tau_{FWHM} = 120$ фс и 200 фс (Рисунки 2.25(а,г)). Увеличение эффективности при понижении температуры наблюдалось также в других работах (см., например, [43]) и объясняется уменьшением поглощения терагерцового излучения в кристалле LiNbO₃. Небольшое снижение эффективности Рисунке 2.25(г) при $T = 10$ К может быть связано с неточной настройкой схемы.

Обсудим полученные особенности генерации терагерцового излучения. Различные наклоны кривых $\eta(W_{opt})$ на Рисунках 2.26 (а,б) для разных L и τ_{FWHM} в слабо-нелинейном режиме хорошо согласуются с теорией, представленной в п. 2.1.2 и п. 2.1.3. Увеличение η с ростом L связано с увеличением длины взаимодействия между оптической накачкой и терагерцовым излучением, в том числе из-за слабого поглощения последнего при криогенном охлаждении. Зависимость η от τ_{FWHM} носит немонотонный характер (см. Рисунок 2.15, а также [65], [144]): увеличение τ_{FWHM} приводит, с одной стороны, к уменьшению интенсивности падающей накачки, что снижает энергию терагерцового

излучения, а с другой - к увеличению дисперсионной длины, что увеличивает энергию терагерцового излучения. В исследуемом случае "побеждает" дисперсия, и максимальная эффективность достигается при большей длительности импульса (200 фс). На основе метода, изложенного в п. 2.1.3, были проведены численные расчеты (с учетом угловой дисперсии и оптимизации положения изображения решетки в кристалле LiNbO_3). В результате было получено соотношение наклонов кривых $\eta(W_{\text{opt}})$ для [9 мм, 200 фс]:[5 мм, 200 фс]:[9 мм, 120 фс]:[5 мм, 120 фс] как 1:0,62:0,67:0,5, что хорошо согласуется с экспериментальными значениями 1:0,74:0,78:0,5.

Насыщение эффективности генерации может быть связано с различными нелинейными эффектами, такими как многофотонное поглощение, самовоздействие из-за Керровской нелинейности, обратное воздействие терагерцового излучения, поглощение на фотоиндуцированных носителях и др. Обсудим здесь возможное проявление эффекта фазовой самомодуляции, которое может приводить к деформации фронта интенсивности лазера (или отстройки от оптимального угла скоса). Нелинейную фазу, приобретаемую лазерным импульсом в кристалле LiNbO_3 , можно оценить как:

$$\varphi_{nl} = \frac{2\pi n_2}{\lambda} \int_0^L dx I_0 \frac{\tau_0}{\tau(x)}, \quad (2.62)$$

где I_0 - интенсивность оптического импульса для спектрально-ограниченного лазерного импульса длительностью $\tau_0 \approx \tau_{FWHM}/1,67$, а $n_2 = 10^{-15} \text{ см}^2/\text{Вт}$ - нелинейный оптический коэффициент LiNbO_3 [41], [146]. В уравнении (2.62) дисперсионное расплывание импульса из-за угловой дисперсии предполагается только вдоль оси x : $\tau(x) = \tau_0 \sqrt{1 + (x - x_0)^2/L_d^2}$, где дисперсионная длина L_d описывается формулой (2.35), x_0 - координата, где импульс становится спектрально-ограниченным. Это не учитывает наклон изображения решетки (точное выражение имеет вид (2.33)), однако из-за сравнительного небольшого размера оптического пучка такое приближение вполне применимо. После вычисления интеграла в (2.62) получаем:

$$\varphi_{nl} = \frac{F_{\text{opt}} \left[\frac{\text{МДж}}{\text{см}^2} \right] \tau_{FWHM} [\text{фс}]}{4,66 \cdot 10^3} \left\{ \text{arcsch} \left(\frac{L - x_0}{L_d} \right) + \text{arcsch} \left(\frac{x_0}{L_d} \right) \right\} \quad (2.63)$$

При комнатной температуре можно предположить $x_0 \approx L$, поскольку из-за сильного поглощения терагерцового излучения в кристалле LiNbO_3 генерация более эффективна, когда более высокая интенсивность накачки достигается вблизи выходной границы кристалла (см. п. 2.1.3, а также Рисунок 2.20). В криогенно охлажденном кристалле

поглощение терагерцового излучения значительно ниже, и можно принять $z_0 = L/2$. При таких предположениях подстановка $F_{opt} = F_{th}$ из Рисунка 2.26 для различных τ_{FWHM} , L и T в уравнение (2.63) даёт φ_{nl} в диапазоне 0.4 – 1. Таким образом, насыщение эффективности происходит, когда нелинейная фаза близка к единице.

Приняв $\varphi_{nl} = 0.5$, можно из уравнения (2.63) выразить F_{opt} через τ_{FWHM} (стоит заметить, что L_d также зависит от τ_{FWHM}) и тем самым получить зависимость $F_{th}^t(\tau_{FWHM}) = F_{opt}(\varphi_{nl} = 0.5, \tau_{FWHM})$, которая показана во вставке на Рисунке 2.26(б). С увеличением (от нуля) длительности импульса значение $F_{th}^t(\tau_{FWHM})$ быстро уменьшается, достигает минимума, а затем медленно возрастает. Минимум $F_{th}^t(\tau_{FWHM})$ достигается при некоторой длительности τ_{mFWHM} , которая увеличивается с ростом L : $\tau_{mFWHM} \sim 200$ фс для $L = 5$ мм и $\tau_{mFWHM} \sim 300$ фс для $L = 9$ мм. Таким образом можно ожидать, что большие значения L и τ_{FWHM} из-за малого F_{th}^t должны приводить к более раннему насыщению эффективности, и, как следствие, менее эффективной генерации при большой энергии накачки. Действительно, это наблюдалось в эксперименте: для [5 мм, 120 фс] с $F_{th} \sim 10$ мДж/см² эффективность была примерно на 40% выше при криогенных температурах и в 2,5 раза выше при комнатной температуре по сравнению с [10 мм, 200 фс] с $F_{th} \sim 3$ мДж/см² (хотя, как было показано выше, в слабо-нелинейном режиме, когда $F_{opt} < F_{th}$, использование длинных кристаллов и больших длительностей предпочтительнее).

На рисунке 2.27 показаны спектры терагерцового излучения, характерные для слабо- и сильно-нелинейного режимов генерации. В слабо-нелинейном режиме наблюдается более широкий спектр со слегка смещённым максимумом в область более высоких частот по сравнению с сильно-нелинейном режимом. Этот эффект можно объяснить деформацией фронта интенсивности при большой энергии накачки как из-за эффектов самовоздействия, так и обратного воздействия терагерцового излучения при котором происходит значительное изменение спектра оптической накачки. При понижении температуры не наблюдалось значительных изменений в генерируемом спектре.

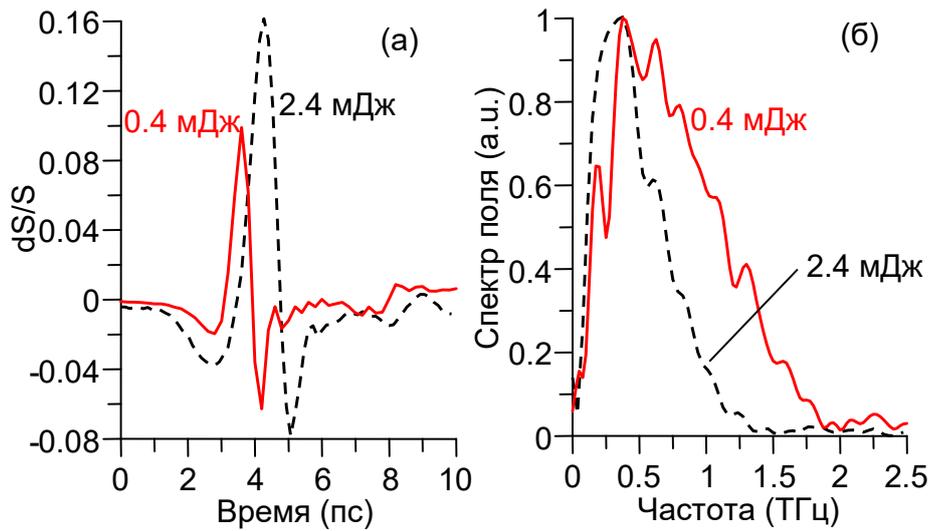


Рисунок 2.27. (а) Временные формы генерируемых терагерцовых импульсов и (б) соответствующие спектры при энергии накачки 0.4 мДж (сплошные кривые) и 2.4 мДж (штриховые кривые). На вертикальной оси Рисунка (а) отложено отношение разницы интенсивности двух ортогональных поляризаций зондирующего импульса dS к их сумме S при измерении деполяризации, наведенной терагерцовым полем. Параметры эксперимента: $T = 293$ К, $\tau_{FWHM} = 200$ фс, $L = 5$ мм.

Следует отметить, что предположение о влиянии на насыщение эффективности за счёт терагерцового поглощения на фотогенерируемых носителях (free-carrier absorption, FCA) [147] не подтверждается в данных экспериментах. Во-первых, эффект FCA должен зависеть от температуры кристалла (из-за зависимости частоты столкновений носителей от температуры), а значит, пороговое поле F_{th} должно зависеть от температуры, чего, однако, в проведенном эксперименте не наблюдалось (см. Рисунок 2.26(г)). Во-вторых, согласно модели Друде, высокочастотные спектральные компоненты меньше поглощаются свободными носителями, что в предположении влияния FCA должно было бы привести к сдвигу терагерцового спектра в коротковолновую область при увеличении энергии накачки, но в эксперименте наблюдался сдвиг в длинноволновую область (см. Рисунок 2.27).

2.2.2. Оптико-терагерцовая конверсия в пластине LiNbO_3 с согласующими призмами

В данном параграфе приведены результаты экспериментального исследования генерации терагерцового излучения лазерными импульсами со скошенным фронтом интенсивности в новой схеме, предложенной и теоретически исследованной в п. 2.1.4. Основная идея схемы состоит в использовании кристалла LiNbO_3 в виде пластины, а не в виде призмы. Ввод оптического излучения в кристалл и вывод сгенерированного излучения осуществляется с помощью призм из соответствующих материалов. Согласно теоретическим расчетам, для достижения максимальной эффективности конверсии (см. Рисунок 2.17), показатель преломления вводящей призмы должен быть довольно большим. Кроме того, необходимо обеспечить хороший оптический контакт между вводящей призмой и кристаллом LiNbO_3 . Для этого в эксперименте было предложено использовать кювету с основанием в виде трапеции, заполненную водой (см. Рисунок 2.28). Три стенки кюветы были изготовлены из пластин плавленого кварца толщиной около 1 мм, четвертой стенкой (основание трапеции) являлась пластина LiNbO_3 размером 10×20 мм толщиной 1 мм. Угол при вершине призмы составлял $\theta = 70^\circ$ (см. также Рисунок 2.15). Со стороны воды пластина LiNbO_3 была покрыта антиотражающим покрытием, благодаря чему потери на отражение на границе вода- LiNbO_3 были снижены до нескольких процентов. К выходной поверхности пластины LiNbO_3 была прижата призма из высокоомного кремния (Tydex) с углом $\psi = 43^\circ$. Формирование лазерного импульса со скошенным фронтом осуществлялось с помощью дифракционной решетки ($\Lambda^{-1} = 2000 \text{ ~мм}^{-1}$) и телескопа (коэффициент уменьшения $M = 1,8$), состоящего из сферического зеркала с фокусным расстоянием 36 см и ахроматической линзы с фокусным расстоянием 20 см. Для сравнения с традиционной схемой, в ходе эксперимента кювета заменялась на призму LiNbO_3 с углом 63° (с входной гранью размером $7,6 \times 7,6 \text{ мм}^2$ и длиной 15 мм), кроме того, устанавливалась другая решетка ($\Lambda^{-1} = 1700 \text{ мм}^{-1}$). Выбор параметров решетки и телескопа для переноса изображения в обеих схемах определяется как оптимальными углом скоса лазерного импульса в кристалле LiNbO_3 ($\alpha \approx 63^\circ$), так и оптимальным углом изображения дифракционной решетки (см. п. 2.1.4).

В качестве источников оптического излучения применялись два титан-сапфировых лазера (длина волны 800 нм): коммерческая система (Astrella, Coherent), генерирующая

импульсы с энергией 3 мДж, длительностью 60 фс, частотой следования 1 кГц, и самодельный лазер, с параметрами 10 мДж, 150 фс, 10 Гц. Ширина лазерного пучка регулировалась с помощью телескопа, установленного перед дифракционной решеткой. Для увеличения длительности импульсов коммерческого лазера Astrella с 60 фс до 120 фс использовался узкополосный (10 нм ширина полосы) оптический фильтр (FB800-10, Thorlabs). Энергия (средняя мощность) генерируемого терагерцового излучения измерялась с помощью ячейки Голя (GC-1P, Tydex), расположенной рядом с выходной гранью Si-призмы. Также в эксперименте измерялся энергетический спектр. Для этого между Si-призмой и ячейкой Голя устанавливались калиброванные терагерцовые полосовые фильтры. Для этого между Si-призмой и ячейкой Голя устанавливались калиброванные терагерцовые полосовые фильтры.

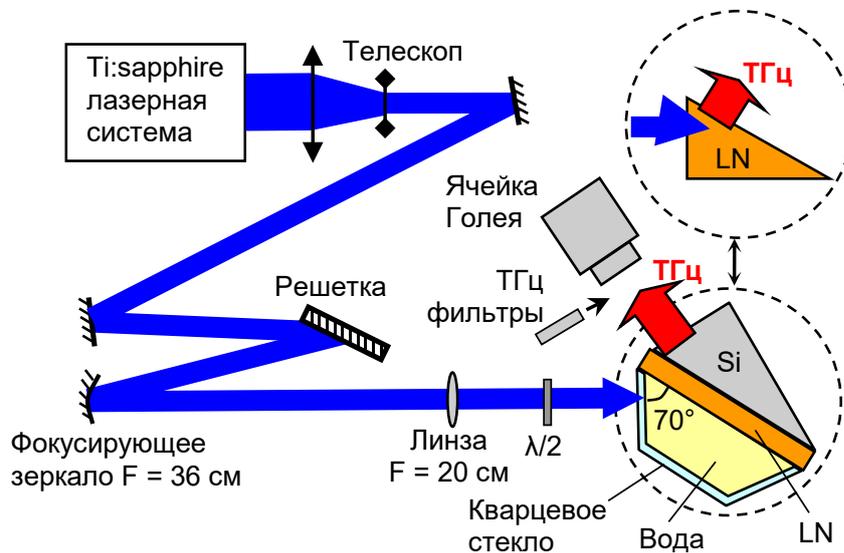


Рисунок 2.28. Схема экспериментальной установки для исследования генерации терагерцового излучения скошенными лазерными импульсами в платине LiNbO_3 .

На Рисунке 2.29 показана эффективность оптико-терагерцовой конверсии в плоском слое LiNbO_3 в зависимости от энергии накачки для различных поперечных размеров лазерного пучка перед решеткой $\ell_{\perp\text{FWHM}}$ и длительностей импульсов τ_{FWHM} . Также, для сравнения, приведены данные для генерации в призме LiNbO_3 . При накачке лазером Astrella с $\ell_{\perp\text{FWHM}} = 5$ мм и $\tau_{\text{FWHM}} = 60$ фс (Рисунок 2.29(a)) новая схема генерации примерно в 5 раз менее эффективен, чем традиционная схема. Однако, в отличие от традиционной схемы, эффективность в новой схеме не насыщается при энергиях до 1 мДж (это была максимальная доступная энергия из-за потерь в оптической

схеме). Энергия 1 мДж соответствует оптической интенсивности 56 ГВт/см² перед дифракционной решеткой и 48 ГВт/см² в призме LiNbO₃. Как отмечалось в предыдущем параграфе данное насыщение может быть связано с искажением импульса накачки из-за нелинейных эффектов: самофазовой модуляции, обратного воздействия терагерцового излучения, многофотонного поглощения и др. (см. также [56]). Отсутствие насыщения в пластине LiNbO₃ можно объяснить снижением оптической интенсивности из-за расширения пучка накачки после преломления на границе вода-LiNbO₃, что дает интенсивность около 22 ГВт/см² при энергии накачки 1 мДж.

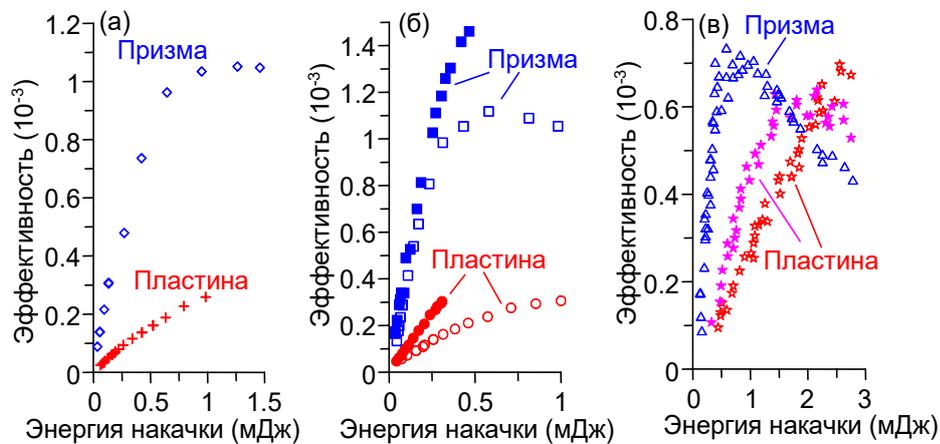


Рисунок 2.29. Эффективность оптико-терагерцовой конверсии в зависимости от энергии импульса накачки для новой схемы с пластиной LiNbO₃ (обозначена как "Пластина") и традиционной схемы с призмой LiNbO₃ (обозначена как "Призма"). Параметры накачки (а) $l_{\perp FWHM} = 5$ мм и $\tau_{FWHM} = 60$ фс, (б) $l_{\perp FWHM} = 3.7$ мм, $\tau_{FWHM} = 60$ фс (незакрашенные кружки и квадраты) и $\tau_{FWHM} = 120$ фс (закрашенные кружки и квадраты), (в) $\tau_{FWHM} = 150$ фс, $l_{\perp FWHM} = 6$ мм (незакрашенные синие треугольники и красные звёзды) и $l_{\perp FWHM} = 4$ мм (закрашенные розовые звёзды).

Уменьшение ширины пучка накачки до $l_{\perp FWHM} = 3,7$ мм (см. Рисунок 2.29(б)) приводит к более крутому начальному линейному участку зависимостей, меньшей энергии насыщения для призмы LiNbO₃ (при практически той же интенсивности насыщения 44 ГВт/см² в LiNbO₃) и появлению насыщения для пластины LiNbO₃. Максимальная эффективность для $l_{\perp FWHM} = 3,7$ мм практически такая же, как для $l_{\perp FWHM} = 5$ мм.

Увеличение длительности импульса накачки до $\tau_{\text{FWHM}} = 120$ фс приводит к повышению эффективности для обеих схем (Рисунок 2.29(б)). Но этот эффект более выражен для пластины LiNbO_3 , разница в эффективностях схем уменьшается до 3 раз при 0,3 мДж, при этом эффективность схемы со слоем LiNbO_3 достигает $\sim 0,03\%$.

Для исследования генерации терагерцового излучения более длинными и энергетическими оптическими импульсами была использована самодельная лазерная система. При $\ell_{\text{LFWHM}} = 6$ мм обе схемы демонстрируют примерно одинаковую максимальную эффективность $\sim 0,07\%$ (см. Рисунок 2.29(в)). Однако этот результат достигается при разных энергиях импульсов накачки: $\sim 0,7$ мДж для призмы LiNbO_3 и $\sim (2,5-3)$ мДж для пластины LiNbO_3 (соответствующие пиковые оптические интенсивности в LiNbO_3 составляют 10 и 30 ГВт/см²). Таким образом, максимальная энергия терагерцового излучения, достигнутая при энергии накачки 3 мДж, оказалась даже выше для плоского слоя LiNbO_3 . При уменьшении ширины пучка накачки до 4 мм был получен более крутой рост эффективности для пластины LiNbO_3 при энергиях накачки менее 1,5 мДж, но с насыщением на уровне 0,06% при 1,5 мДж.

Эффективность генерации четырёх спектральных компонент терагерцового излучения (вблизи 0,3, 0,5, 1 и 2 ТГц) представлена на Рисунке 2.30(а,б) (измерения сделаны при использовании коммерческого лазера Astrella и параметрах накачки, соответствующих Рисунку 2.29(а)). При энергии лазерного импульса $\sim 0,5$ мДж эффективность генерации высокочастотных компонент в призме LiNbO_3 насыщается и даже снижается (см. Рисунке 2.30(б)), в то время как в пластине LiNbO_3 спектральные компоненты продолжают генерироваться с возрастающей эффективностью (см. Рисунок 2.30(б)). Для энергий накачки ниже уровня насыщения энергетические спектры для обеих схем практически совпадают (см. Рисунке 2.30(в)).

Для оценки пространственного качества излучения, генерируемого в схеме со слоем LiNbO_3 , была измерена ширина терагерцового пучка в плоскости Рисунка 2.28 вблизи выходной грани кремниевой призмы и на расстоянии 17 см от неё. Ширина пучка составила $D_{\text{0FWHM}} \approx 2$ мм вблизи призмы и $D_{\text{FWHM}} \approx 2,5$ см на 17-сантиметровом расстоянии. Эти результаты хорошо согласуются с теоретической оценкой $D_{\text{FWHM}} = D_{\text{0FWHM}}[1 + (z/z_R)^2]^{1/2} \approx 2$ см, где рэлеевская длина $z_R = 2\pi(D_{\text{0FWHM}}/1,7)^2/\lambda_{\text{THz}} \approx 1,7$ см рассчитана для терагерцовой длины волны $\lambda_{\text{THz}} = 0,5$ мм. Таким образом, можно заключить, что терагерцовый пучок был близок к коллимированному.

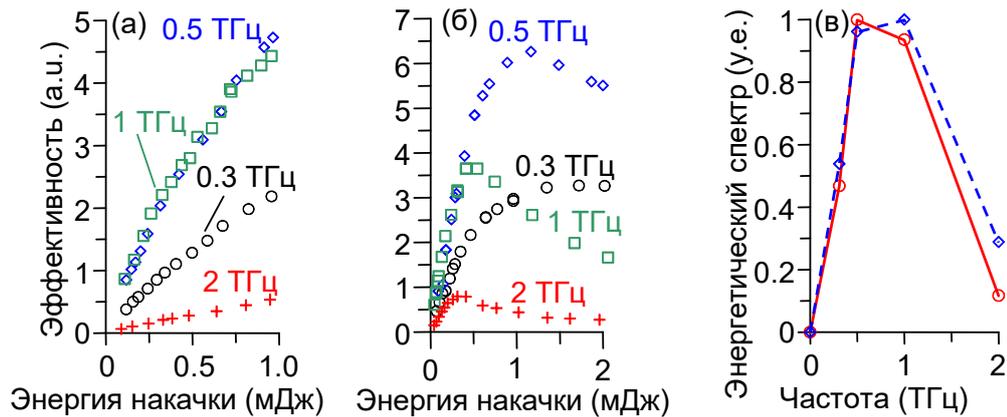


Рисунок 2.30. (а,б) Эффективность генерации на частотах 0.3 ТГц (черные кружки), 0.5 ТГц (синие ромбы), 1 ТГц (зеленые квадраты) и 2 ТГц (красные кресты) в зависимости от энергии импульса накачки для схем с (а) пластиной и (б) призмой LiNbO_3 . (в) Нормированный энергетический спектр для схем с пластиной (красные кружки) и призмой (синие ромбы) LiNbO_3 при энергии накачки ниже уровня насыщения. Параметры накачки $\ell_{\perp\text{FWHM}} = 5$ мм и $\tau_{\text{FWHM}} = 60$ фс (лазер Astrella).

2.3. Выводы по Главе 2

Проведены теоретические и экспериментальные исследования генерации терагерцового излучения лазерными импульсами со скошенным фронтом интенсивности в «сверхсветовых» электрооптических кристаллах, т.е. в кристаллах, где групповая скорость лазерного импульса превышает максимальную фазовую скорость терагерцового излучения.

Развита строгая теория, основанная на решении уравнений Максвелла с заданным источником (движущейся нелинейной поляризацией, формируемой оптической накачкой), которая позволила аналитически описать структуру и динамику формирования терагерцового поля. Теория учитывает такие факторы, как специальная (скошенная) геометрия лазерного импульса, конечный поперечный размер лазерного пучка, дисперсию и поглощение терагерцовых волн. Проведено обобщение характеристических длин (длины нарастания амплитуды и длины разбегания), введенных ранее в главе 1 для описания генерации терагерцового излучения обычными лазерными импульсами. Кроме того, введены новые важные параметры: длина формирования волнового пакета и длина поперечного выбегания. Рассчитаны и проанализированы

картины излучения в терминах введенных характерных длин для кристалла LiNbO_3 при комнатной и криогенной температурах при накачке фемтосекундным излучением титан-сапфирового лазера (длина волны 0,8 мкм), и для кристалла GaAs при комнатной температуре при накачке фемтосекундным излучением на длинах волн 1,8 и 3,5 мкм. Показано, что кристалл GaAs толщиной $\sim 1,5$ см при 1,8 мкм накачке является перспективными для эффективной генерации терагерцового излучения с перестройкой частоты ≥ 1 ТГц, где обычно используемый при комнатной температуре кристалл LiNbO_3 становится неэффективным из-за высокого поглощения терагерцового излучения.

Проведено обобщение теории генерации терагерцового излучения скошенными лазерными импульсами в призма-подобном кристалле LiNbO_3 , на случай произвольного угла переноса в электрооптический кристалл плоскости изображения дифракционной решетки (используемой для формирования скошенного импульса). Показано, что если выходная поверхность кристалла LiNbO_3 остается параллельной фронту интенсивности лазерного импульса, то энергия терагерцового излучения почти не зависит от угла наклона плоскости изображения решетки при условии, что этот угол меньше оптимального угла скоса фронта интенсивности (63°). Одно качество терагерцового пучка несколько ухудшается. Если же выходная поверхность кристалла параллельна плоскости изображения решетки, а не фронту импульса накачки, то качество терагерцового пучка остается неизменным, тогда как энергия терагерцового излучения может быть примерно в два раза выше, чем в стандартной схеме (для импульсов накачки длительностью ~ 400 фс). Это связано с большим эффективным размером нелинейного источника в поперечном, по отношению к распространению терагерцовой волны, направлении.

Предложена, а также экспериментально исследована новая схема оптико-терагерцового преобразования скошенных лазерных импульсов. В отличие от традиционной схемы с кристаллом-преобразователем LiNbO_3 в виде призмы, предлагается использовать преобразователь в виде плоскопараллельной пластины LiNbO_3 , зажатой между двумя диэлектрическими призмами. Одна призма используется для ввода пучка накачки в пластину LiNbO_3 , другая призма выводит сгенерированное терагерцовое излучение из пластины. Теоретические расчеты предсказывают эффективность и спектральные характеристики новой схемы, сравнимые с характеристиками традиционной схемы. Кроме того, возможно высокое качество генерируемого терагерцового пучка. При использовании лазерной накачки тераваттной

мощности преобразователь имеет потенциал масштабирования генерируемой терагерцовой энергии за счет коммерчески доступных пластин LiNbO_3 большого диаметра вместо дорогих призм LiNbO_3 большого размера, необходимых для обычной схемы.

Для предложенной схемы проведен проверочный эксперимент, в котором пластина LiNbO_3 толщиной 1 мм и размером 1 см \times 2 см, была помещена в качестве стенки призма-подобной кюветы с водой, а кремниевая призма была прижата к свободной стороне LiNbO_3 . При накачке структуры фемтосекундными импульсами титан-сапфирового лазера мДж уровня энергии, была продемонстрирована эффективность преобразования $\sim 0.1\%$, сопоставимая с традиционной схемой.

Для традиционной схемы генерации скошенными лазерными импульсами титан-сапфирового лазера в призма-подобном кристалле LiNbO_3 проведено экспериментальное исследование зависимости эффективности оптико-терагерцового конверсии от энергии оптической накачки при различных длительностях лазерного импульса (120 и 200 фс), длин распространения в призме (5 мм и 9 мм) и температурах кристалла (от 10 К до 300 К). Показано, что независимо от температуры кристалла максимальный градиент роста эффективности с увеличением энергии накачки достигается при больших длительности (200 фс) и длины распространения (9 мм), что согласуется с теоретическими предсказаниями. Однако в режиме насыщения предпочтительным является использование более коротких импульсов (120 фс) и длин распространения (5 мм). Приведены оценки нелинейной фазы, показавшие, что одно из возможных объяснений данного эффекта может быть связано с эффектом самовоздействия накачки. Обнаружено, что энергия накачки, при которой происходит насыщение эффективности, не зависит от температуры кристалла. Это демонстрирует слабое влияние на насыщение эффекта поглощения терагерцового излучения носителями, генерируемыми при многофотонном поглощении накачки, в отличие от того, что предполагалось в других работах.

Теоретически исследована схема генерации терагерцового излучения скошенными лазерными импульсами, когда дифракционная решетка (формирующая скошенный импульс) нанесена на входную поверхность электрооптического кристалла. Показана важность выбора оптимальной частотной модуляции лазерного импульса для достижения максимальной эффективности оптико-терагерцовой конверсии. Для кристаллов LiNbO_3 и GaAs проведены расчеты структуры полей и эффективности генерации при различных

параметрах задачи: длины кристалла, ширины и длительности импульса оптической накачки. Предсказаны оптимальные параметры, при которых достигается максимальная эффективность и хорошее качество терагерцового пучка.

Глава 3. Оптико-терагерцовые преобразователи на основе черенковского синхронизма

В данной главе представлены результаты теоретических и экспериментальных исследований оригинальных схем генерации терагерцового излучения, основанных на механизме черенковского синхронизма в геометрии поверхностно-бокового вывода сгенерированного излучения. В этой геометрии сфокусированный оптический импульс распространяется параллельно поверхности электрооптического кристалла, а генерируемое черенковское излучение высвечивается через эту боковую поверхность [54]. На основе такой геометрии в диссертации предлагаются и всесторонне исследуются разные типы оптико-терагерцовых преобразователей, представляющих собой сэндвич-структуры, состоящие из тонкого, толщиной несколько десятков микрон, слоя электрооптического материала (LiNbO_3), прижатого к выводящей призме (или зажатого между двумя призмами) с малым терагерцовым поглощением (Si). Слой электрооптического материала является волноводом для оптического излучения, что уменьшает дифракционное расплывание накачки, а малая (по сравнению с терагерцовой длиной волны) толщина слоя позволяет выводить сгенерированное излучение в свободное пространство с минимальными потерями на поглощение. В экспериментах исследуются в основном сэндвич-структуры, содержащие слой кристалла LiNbO_3 толщиной 30-50 мкм. Также рассматривается возможность использования в поверхностно-боковой геометрии черенковского излучения широкозонного кристалла DKDP (в этом случае слой кристалла является имеет толщину около 10 мм и не является волноводом).

Основные результаты главы опубликованы в работах [A4, A5, A7, A10, A17, A26-A28].

3.1. Теория черенковского излучения терагерцовых волн лазерными импульсами в плоском диэлектрическом волноводе с нелинейной сердцевиной

Рассмотрим вначале задачу черенковского излучения терагерцовых волн при оптическом выпрямлении лазерного импульса, распространяющегося в тонком слое электрооптического материала, окруженного линейной средой для вывода сгенерированного излучения. Геометрия задачи показана на Рисунке 3.1(а).

Рассматриваемая сэндвич-структура состоит из плоского сердечника ($|x| < a/2$) электрооптического материала (например, LiNbO_3) и двух призм ($|x| > a/2$) из материала с низким поглощением в терагерцовом диапазоне (например, высокоомного кремния). Толщина сердечника a предполагается значительно больше длины волны оптического излучения и меньше длины волны терагерцового излучения ($a \sim 10 - 100$ мкм), а длина L структуры значительно превышает длину терагерцовой волны. Торце сердечника освещается по нормали (вдоль оси z) фемтосекундным лазерным импульсом, предварительно сфокусированным цилиндрической линзой. Ширина сфокусированного пучка вдоль оси x равна ℓ_{\perp} , а вдоль оси y пучок считается бесконечно большим (что является хорошим приближением для реальных пучков с размером несколько мм).

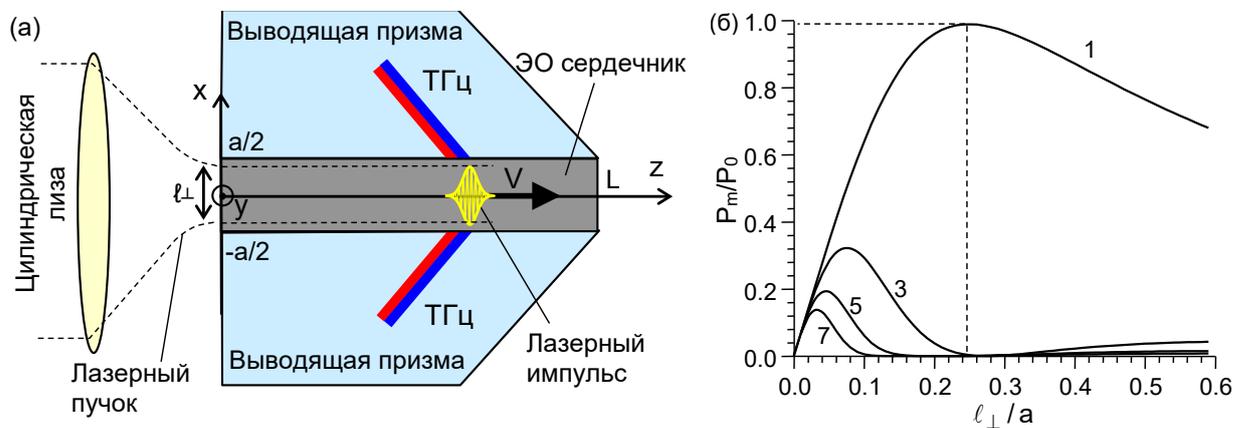


Рисунок 3.1. (а) Геометрия задачи черенковского излучения терагерцовых волн при распространении лазерного импульса в слое электрооптического (ЭО) материала (толщиной a), помещенного между двумя выводящими призмами. (б) Зависимость P_m/P_0 от отношения ℓ_{\perp}/a , где P_m – мощность m -й моды плоского волновода P_m (номер моды m указан около соответствующей кривой), P_0 – мощность падающего на волновод излучения с гауссовым распределением $\sim \exp(-x^2/\ell_{\perp}^2)$.

Оптическое излучение, падающее в центр слоя, может возбуждать в сердечнике множество мод планарного волновода с поперечным профилем поля $\propto \cos(m\pi x/a)$, $m = 1, 3, 5, 7$. Как показывают численные расчеты (см. Рисунок 3.1(б)), возможно добиться почти одномодового режима возбуждения. Для этого поперечный размер гауссова пучка должен быть равен $\ell_{\perp}^{\text{opt}} = a/4$, при этом эффективность возбуждения (по энергии) основной моды ($m = 1$) составит около 98% (без учета потерь на отражение на входной

границы слоя). При отклонении ℓ_{\perp} от $\ell_{\perp}^{\text{opt}}$ происходит более сильное возбуждение высших мод с $m = 3, 5, 7, \dots$, интерференция которых может приводить к изменению поперечного распределения оптической накачки внутри волновода. Далее будем пренебрегать возбуждением высших мод, а также искажениями импульса, вызванными дисперсией, линейным поглощением и нелинейными эффектами, такими как многофотонное поглощение и самофокусировка и др., считая, что лазерный импульс распространяется в слое LiNbO_3 с групповой скоростью V как основная мода диэлектрического планарного волновода с полем $\propto \cos(\pi x/a)$. Поскольку волновод является сверхразмерным для оптического излучения, поля лазерного импульса локализованы преимущественно в пределах сердечника ($|x| < a/2$), а групповая скорость V определяется практически только материальной дисперсией сердечника: $V \approx c/n_g$, где n_g - групповой показатель преломления сердечника, а c - скорость света. Также не будем учитывать переходные эффекты на входной ($z = 0$) и выходной ($z = L$) границах сэндвич-структуры (которые подробно были исследованы в главе 1), а сосредоточимся на стационарном режиме генерации терагерцового излучения в бесконечно длинной структуре.

В указанных приближениях нелинейная поляризация, создаваемая лазерным импульсом при оптическом выпрямлении, является функцией двух переменных: x и $\xi = t - z/V$, т.е. $\mathbf{P}^{\text{NL}} = \mathbf{P}^{\text{NL}}(x, \xi)$. Для расчета терагерцового поля, генерируемого \mathbf{P}^{NL} , воспользуемся методом Фурье преобразования относительно переменной ξ аналогично п. 2.1.1. Тогда фурье-образ нелинейной поляризации запишется в виде

$$\tilde{\mathbf{P}}^{\text{NL}} = \mathbf{p}(\omega) \tilde{F}(\omega) G(x), \quad (3.1)$$

где амплитудный вектор $\mathbf{p}(\omega)$ имеет все три компоненты p_x, p_y, p_z , а его амплитуда $p(\omega) = d_{\text{eff}}(\omega) E_0^2$ учитывает дисперсию нелинейного коэффициента $d_{\text{eff}}(\omega)$ электрооптического материала. Функция $\tilde{F}(\omega)$ - фурье-образ временной огибающей оптического импульса, $G(x) = \cos^2(\pi x/a)$ при $|x| < a/2$, и $G(x) = 0$ при $|x| > a/2$. Для определенности пусть $F(\xi) = e^{-\xi^2/\tau^2}$, тогда $\tilde{F}(\omega) = (\tau/2\sqrt{\pi}) e^{-\omega^2 \tau^2/4}$. После подстановки (3.1) в уравнения Максвелла, записанные в фурье-пространстве (1.3), уравнения для фурье-образов s -поляризованного поля будут иметь вид

$$\tilde{B}_x = -n_g \tilde{E}_y, \quad \tilde{B}_z = -\frac{c}{i\omega} \frac{\partial \tilde{E}_y}{\partial x}, \quad (3.2)$$

$$\frac{\partial^2 \tilde{E}_y}{\partial x^2} + \kappa^2 \tilde{E}_y = -\frac{4\pi\omega^2}{c^2} p_y \tilde{F}(\omega) G(x), \quad (3.3)$$

а для p -поляризованного поля

$$\tilde{E}_x = \frac{n_g}{\varepsilon} \tilde{B}_y - \frac{4\pi p_x}{\varepsilon} \tilde{F} G(x), \quad \tilde{E}_z = \frac{c}{i\omega\varepsilon} \frac{\partial \tilde{B}_y}{\partial x} - \frac{4\pi p_z}{\varepsilon} \tilde{F} G(x), \quad (3.4)$$

$$\varepsilon \frac{\partial}{\partial x} \left(\frac{1}{\varepsilon} \frac{\partial \tilde{B}_y}{\partial x} \right) + \kappa^2 \tilde{B}_y = -\frac{4\pi\omega^2}{c^2} \tilde{F}(\omega) \left\{ p_x n_g G(x) - i p_z \frac{c\varepsilon}{\omega} \frac{\partial}{\partial x} \left[\frac{G(x)}{\varepsilon} \right] \right\}, \quad (3.5)$$

где поперечный волновой вектор $\kappa^2 = (\omega/c)^2 [\varepsilon(\omega, x) - n_g^2]$, $\varepsilon(\omega, x)$ – диэлектрическая проницаемость среды: $\varepsilon = \varepsilon_c(\omega)$ – в слое электрооптического материала и $\varepsilon = \varepsilon_p(\omega)$ – в выводящей призме.

Применяя граничные условия непрерывности тангенциальных компонент электрических и магнитных полей получаем следующие выражения для s -поляризованного поля

$$\tilde{E}_y = \begin{cases} C_1 e^{-i\kappa_p(x-a/2)}, & x > a/2, \\ C_2 e^{-i\kappa_c x} + C_3 e^{i\kappa_c x} + P(x), & |x| < a/2, \\ C_4 e^{i\kappa_p(x+a/2)}, & x < -a/2, \end{cases} \quad (3.6)$$

где

$$P(x) = \frac{2\pi\omega^2 p_y}{i\kappa_c c^2} \tilde{F} \int_{-a/2}^{a/2} dx' G(x') e^{-i\kappa_c |x-x'|}, \quad (3.7a)$$

$$C_2 = C_3 = C_1 e^{-i\kappa_c a/2} (1 - \kappa_p/\kappa_c)/2, \quad (3.7б)$$

$$C_1 = C_4 = \frac{4\pi\omega^2 p_y}{ic^2 \Lambda_s} \tilde{F} \int_{-a/2}^{a/2} dx G(x) e^{i\kappa_c x}, \quad (3.7в)$$

$$\Lambda_s = (\kappa_c + \kappa_p) e^{i\kappa_c a/2} - (\kappa_c - \kappa_p) e^{-i\kappa_c a/2}, \quad (3.7г)$$

и для p -поляризованного поля

$$\tilde{B}_y = \begin{cases} D_1 e^{-i\kappa_p(x-a/2)}, & x > a/2, \\ D_2 e^{-i\kappa_c x} + D_3 e^{i\kappa_c x} + R(x), & |x| < a/2, \\ D_4 e^{i\kappa_p(x+a/2)}, & x < -a/2, \end{cases} \quad (3.8)$$

где

$$R(x) = \frac{2\pi\omega^2}{i\kappa_c c^2} \tilde{F} \int_{-a/2}^{a/2} dx' \left[p_x n_g G(x') - \frac{i p_z c}{\omega} G'(x') \right] e^{-i\kappa_c |x-x'|}, \quad (3.9a)$$

$$D_{2,3} = \left[\frac{D_{4,1}}{2} \left(1 - \frac{\kappa_p \varepsilon_c}{\kappa_c \varepsilon_p} \right) \mp \frac{2\pi\omega p_z}{c\kappa_c} \tilde{F} G_0 \right] e^{-i\kappa_c a/2}, \quad (3.9б)$$

$$D_{1,4} = \frac{4\pi\omega^2}{ic^2\varepsilon_c} \left[\frac{p_x n_g}{\Lambda_p^{(-)}} \mp \frac{p_z c \kappa_c}{\omega \Lambda_p^{(+)}} \right] \tilde{F} \int_{-a/2}^{a/2} dx G(x) e^{i\kappa_c x}, \quad (3.9\text{в})$$

$$\Lambda_p^{(\pm)} = \left(\frac{\kappa_c}{\varepsilon_c} + \frac{\kappa_p}{\varepsilon_p} \right) e^{i\kappa_c a/2} \pm \left(\frac{\kappa_c}{\varepsilon_c} - \frac{\kappa_p}{\varepsilon_p} \right) e^{-i\kappa_c a/2}. \quad (3.9\text{г})$$

В формулах (3.6)-(3.9) $G'(x')$ обозначает производную по x' , $G_0 \equiv G(a/2) = G(-a/2)$ и для используемого модельного распределения $G_0 = 0$, поперечные числа κ_p и κ_c равны κ при $\varepsilon = \varepsilon_p$ и $\varepsilon = \varepsilon_c$, соответственно. Из уравнений (3.6)-(3.7) следует, что s -поляризованное терагерцовое излучение возбуждается компонентой p_y нелинейной поляризации и является симметричным: $C_1 = C_4$. Согласно уравнениям (3.8) и (3.9), p -поляризованное излучение является симметричным ($D_1 = D_4$) при возбуждении компонентой p_x компонентой и антисимметричным ($D_1 = -D_4$) при возбуждении компонентой p_z . Электромагнитные поля в (ξ, x) -пространстве, записываются через обратное Фурье преобразование в виде

$$E_y(\xi, x) = \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \tilde{E}_y(\omega, x) e^{i\omega\xi}. \quad (3.10)$$

Аналогичные формулы используются для других полей.

Энергия терагерцового излучения, излучаемая в выводящие призмы с единицы площади границ раздела сердечник-призма (т.е. терагерцовой поток энергии), вычисляется путем интегрированием $\pm x$ -компоненты вектора Пойнтинга $S_{\pm x} = \pm(c/4\pi)E_y B_z$ и $S_{\pm x} = \mp(c/4\pi)E_z B_y$ для s - и p -поляризаций, соответственно, при $x = \pm a/2$ по бесконечному интервалу $-\infty < \xi < \infty$. Это дает поток энергии для s - и p -поляризаций в $\pm x$ -направлениях:

$$W_{s,p}^{(\pm)} = \int_0^{\infty} d\omega w_{s,p}^{(\pm)}(\omega), \quad (3.11)$$

где $w_{s,p}^{(\pm)}(\omega)$ – спектральная плотность потока энергии:

$$w_s^{(\pm)}(\omega) \equiv w_s(\omega) = c|C_1|^2 \text{Re}(\varepsilon_p - n_g^2)^{1/2}, \quad (3.12\text{а})$$

$$w_p^{(\pm)}(\omega) = c|D_{1,4}|^2 \text{Re}[(\varepsilon_p - n_g^2)^{1/2}/\varepsilon_p], \quad (3.12\text{б})$$

Полный поток энергии через обе границы равен $W = 2W_s + W_p^+ + W_p^-$.

Полезно также представить W в другой форме

$$W = W_x + W_y + W_z, \quad (3.13)$$

где W_x , W_y и W_z – потоки энергии, излучаемые компонентами p_x , p_y и p_z нелинейной поляризации, соответственно, т.е. $W_{x,z} = W_p^+ + W_p^-$ при $p_x \neq 0, p_z = 0$ и $p_x = 0, p_z \neq 0$, соответственно, и $W_y = 2W_s$. Уравнение (3.13) следует из уравнений (3.9в), (3.11) и (3.12) и позволяет сделать вывод, что интерференция между волнами, излучаемыми p_x и p_z , не изменяет полную излучаемую энергию, а влияет только на распределение энергии между верхней ($x > a/2$) и нижней ($x < -a/2$) призмами. Соответственно, спектральную плотность потока энергии $w(\omega)$ можно представить в виде $w(\omega) = w_x(\omega) + w_y(\omega) + w_z(\omega)$. Эффективность оптико-терагерцового преобразования на единицу длины сэндвич-структуры (вдоль оси z) равна $\eta = W/W_{\text{opt}}$, где W_{opt} – энергия оптической накачки на единицу длины вдоль оси y . В используемом приближении когда поперечный профиль $G(x)$ и временная форма $F(\xi)$ определяются выражениями, приведенными после формулы (3.1), энергия $W_{\text{opt}} = \pi^{1/2} I_0 a \tau / 2$, где $I_0 = (c n_{\text{opt}} / 8\pi) E_0^2$ – пиковая оптическую интенсивность в слое, n_{opt} – показатель преломления слоя в оптическом диапазоне.

Для понимания зависимости генерируемого терагерцового спектра и полной энергии от параметров задачи, пренебрежём факторами дисперсии и поглощения в терагерцовом диапазоне, считая ε_p и ε_c вещественными постоянными. Также пренебрежём дисперсией нелинейности. Для удобства анализа введём безразмерные параметры: $\delta_c = |\varepsilon_c - n_g^2|^{1/2}$, $\delta_p = (\varepsilon_p - n_g^2)^{1/2}$, $\sigma = \omega a \delta_c / (2\pi c)$. Для формирования черенковского излучения в призме движущимся в сердечнике лазерным импульсом необходимо выполнение условия $\varepsilon_p > n_g^2$, при этом соотношение между ε_c и n_g^2 может быть произвольным.

После аналитического интегрирования выражения (3.11), получаем выражения для спектральной плотности потока энергии, генерируемой j -компонентой нелинейной поляризации:

$$w_j(\sigma) = \frac{(2\pi c \tau)^2}{a} p_j^2 A_j \Phi_j(\sigma) \exp(-\sigma^2 / \sigma_0^2), \quad (3.14)$$

где $\sigma_0 = a \delta_c / (2^{1/2} \pi c \tau)$, а коэффициенты A_j равны:

$$A_x = \frac{\varepsilon_p n_g^2}{\varepsilon_c^2 \delta_p \delta_c^3}, \quad A_y = \frac{1}{\delta_p \delta_c^3}, \quad A_z = \frac{\delta_p}{\varepsilon_p \delta_c^3}. \quad (3.15)$$

Функция $\Phi_j(\sigma)$ имеет вид:

$$\Phi_j(\sigma) = (1 - \sigma^2)^{-2} [\gamma_j^2 + \text{ctg}^2(\pi\sigma)]^{-1} \quad \text{при} \quad \varepsilon_c > n_g^2, \quad (3.16)$$

$$\Phi_j(\sigma) = (1 + \sigma^2)^{-2} [\gamma_j^2 + \text{ctgh}^2(\pi\sigma)]^{-1} \quad \text{при} \quad \varepsilon_c < n_g^2, \quad (3.17)$$

где

$$\gamma_x = \gamma_z^{-1} = \varepsilon_p \delta_c / (\varepsilon_c \delta_p), \quad \gamma_y = \delta_c / \delta_p. \quad (3.18)$$

Поток энергии выражается через интеграл от спектральной плотности $w_j(\sigma)$ как:

$$W = \int_0^{\infty} d\sigma [w_x(\sigma) + w_y(\sigma) + w_z(\sigma)]. \quad (3.19)$$

Согласно уравнению (3.14), спектральная плотность $w_j(\sigma)$ представляет собой произведение двух функций: гауссова спектра огибающей оптической интенсивности $\exp(-\sigma^2/\sigma_0^2)$ и функции $\Phi_j(\sigma)$. На Рисунках 3.2(а,б) показана нормированная функция $\Phi_j(\sigma)$ для двух случаев ($\varepsilon_c > n_g^2$ и $\varepsilon_c < n_g^2$) и трёх различных значений параметра γ_j . Как видно, в обоих случаях и для всех значений γ_j функция $\Phi_j(\sigma)$ локализована в интервале $0 < \sigma < 2$. Для $\varepsilon_c < n_g^2$ (Рисунок 3.2(б)) ширина функции и положение её максимума слабо зависят от γ_j . Для $\varepsilon_c > n_g^2$ (Рисунок 3.2(а)) влияние этого параметра на форму функции более существенно, при этом максимальная ширина функции наблюдается при $\gamma_j = 1$ (сплошная линия на Рисунке 3.2(а)). Физически это объясняется отсутствием отражения генерируемых в сердечнике терагерцовых волн на границах сердечник-призма. Согласно (3.18), условие $\gamma_j = 1$ выполняется в двух случаях: 1) для любого j (любой поляризации терагерцовых волн) при равенстве диэлектрических постоянных сердечника и призм ($\varepsilon_c = \varepsilon_p$), 2) для $j = x, z$ при условии $\varepsilon_c^{-1} + \varepsilon_p^{-1} = n_g^{-2}$, что соответствует падению p -поляризованной волны на границу сердечник-призма под углом Брюстера. При отклонении γ_j от единицы функция $\Phi_j(\sigma)$ становится уже, что объясняется возникновением многократных отражений терагерцовых волн от границ. Эти отражения увеличивают длительность импульса, прошедшего в призму, уменьшая ширину его спектра. Также параметр γ_j существенно влияет на положение максимума функции: при $\gamma_j = 1$ максимум $\Phi_j(\sigma)$ находится при $\sigma = 0,84$, при $\gamma_j > 1$ максимум смещается в сторону больших σ (штриховая линия), стремясь к $\sigma = 1$ при $\gamma_j \rightarrow \infty$; при $\gamma_j < 1$ основной максимум смещается к меньшим σ , появляется второй пик (штрихпунктирная кривая); при $\gamma_j \rightarrow 0$ основной пик стремится к $\sigma = 0,5$, второй пик – к $\sigma = 1,5$.

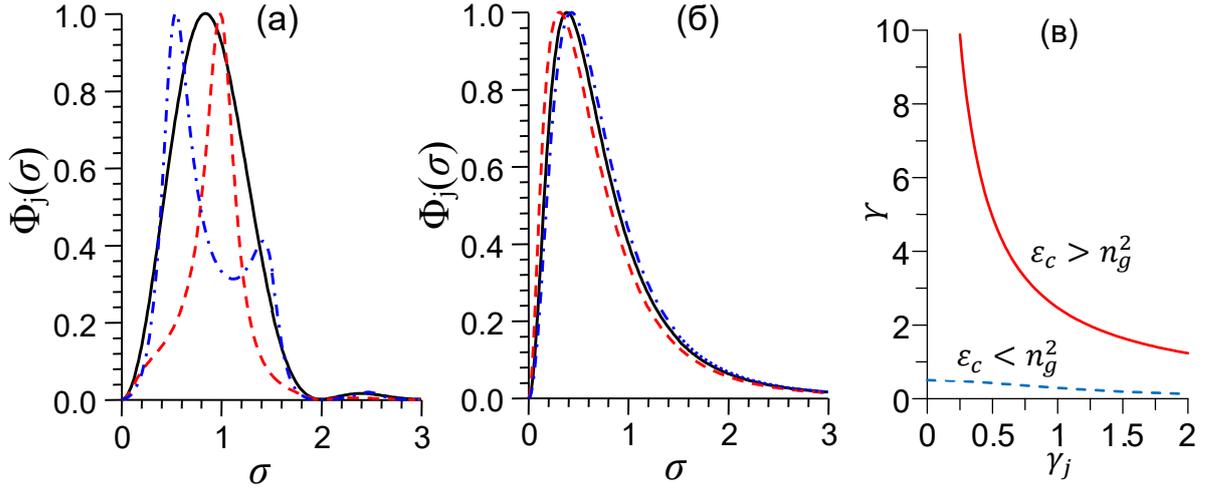


Рисунок 3.2. (а,б) Функция $\Phi_j(\sigma)$ (нормированная на единицу) для случаев (а) $\epsilon_c > n_g^2$, (б) $\epsilon_c < n_g^2$ и различных значениях параметра γ_j : $\gamma_j = 1$ (сплошная линия), $\gamma_j = 0.5$ (штрихпунктирная линия) и $\gamma_j = 2$ (штриховая линия). (в) Зависимость $\Upsilon(\gamma_j)$ (см. выражение 3.20) при $\epsilon_c > n_g^2$ (сплошная кривая) и $\epsilon_c < n_g^2$ (штриховая кривая).

Для короткого оптического импульса с $\tau \ll a\delta_c/(9c)$ (или $\sigma_0 \gg 2$), гауссовый множитель $\exp(-\sigma^2/\sigma_0^2)$ в уравнении (3.14) близок к единице во всем интервале $0 < \sigma < 2$, где функция $\Phi_j(\sigma)$ существенна. Следовательно, спектр $w_j(\sigma)$ определяется в основном функцией $\Phi_j(\sigma)$, а не гауссовым множителем, и поток энергии W пропорционален интегралу от $\Phi_j(\sigma)$. Численные расчеты показали, что этот интеграл может быть аппроксимирован с высокой точностью формулой:

$$\Upsilon = \int_0^{\infty} d\sigma \Phi_j(\sigma) \approx \begin{cases} 2.47\gamma_j^{-1}, & \epsilon_c > n_g^2 \\ 0.5(1 + 0.7\gamma_j^2)^{-1}, & \epsilon_c < n_g^2 \end{cases} \quad (3.20)$$

Из графика на Рисунке 3.2(в) видно, что интеграл (3.20) всегда больше при $\epsilon_c > n_g^2$, чем при $\epsilon_c < n_g^2$ для любых γ_j . Иными словами, в случае коротких импульсов желательно, чтобы в сердцевине выполнялось условие черенковского излучения ($\epsilon_c > n_g^2$). Для наиболее эффективного случая $\epsilon_c > n_g^2$, подставляя (3.20) в (3.19) при учете (3.14)-(3.19), получаем выражение для полного потока энергии в случае коротких оптических импульсов:

$$W \approx \frac{9.9(\pi c \tau)^2}{a\delta_c^4} \left(\frac{n_g^2}{\epsilon_c} p_x^2 + p_y^2 + \frac{\delta_c^2}{\epsilon_c} p_z^2 \right). \quad (3.21)$$

Из уравнения (3.21) можно сделать четыре важных вывода. Во-первых, компонента p_y нелинейной поляризации генерирует терагерцовое излучение эффективнее других компонент (при $\varepsilon_c > n_g^2$). Во-вторых, поток энергии терагерцового излучения не зависит от диэлектрической постоянной призмы ε_p (требуется лишь $\varepsilon_p > n_g^2$ для выполнения условия черенковского излучения). В-третьих, W возрастает при приближении ε_c к n_g^2 (уменьшении δ_c) и может даже стремиться к бесконечности при $\varepsilon_c \rightarrow n_g^2$ для вкладов от p_x и p_y (последний член в (3.21) ограничен сверху условием применимости приближения короткого импульса). Физически это объясняется приближением к условию фазового синхронизма для терагерцовых волн в сердечнике. Однако следует подчеркнуть, что для сохранения применимости приближения короткого импульса при $\varepsilon_c \rightarrow n_g^2$, длительность импульса τ должна одновременно стремиться к нулю. В-четвертых, при фиксированной энергии оптического импульса ($p_j \tau a = \text{const}$) имеем $W \propto a^{-3}$, а значит эффективность $\eta \propto a^{-3}$ (опять же с ограничением на применимость приближения короткого импульса при $a \rightarrow 0$).

Для длинного оптического импульса с $\tau \gg a\delta_c/(9c)$ (или $\sigma_0 \ll 2$), ширина спектра $w_j(\sigma)$ ограничена гауссовым множителем в уравнении (3.14), а не функцией $\Phi_j(\sigma)$. Учитывая, что при $\sigma \ll 1$ функция $\Phi_j(\sigma) \approx \pi^2 \sigma^2$ (независимо от других параметров), получаем $w_j(\sigma) \propto \sigma^2 \exp(-\sigma^2/\sigma_0^2)$. Спектр $w_j(\sigma)$ имеет максимум при $\sigma = \sigma_0$ ($\omega\tau = \sqrt{2}$). Вычисляя интеграл (3.19) от этой функции, получаем:

$$W \approx \left(\frac{\pi}{2}\right)^{3/2} \frac{a^2}{c\tau\delta_p} \left(\frac{\varepsilon_p n_g^2}{\varepsilon_c^2} p_x^2 + p_y^2 + \frac{\delta_p^2}{\varepsilon_p} p_z^2 \right). \quad (3.22)$$

Согласно уравнению (3.22), в случае длинных оптических импульсов компоненты p_x и p_y нелинейной поляризации предпочтительнее для генерации терагерцового излучения. В отличие от случая коротких импульсов, величина W зависит от ε_p ; зависимость от ε_c появляется только при $p_x \neq 0$. При этом не важно, выполняется или не выполняется условие черенковского излучения в самом электрооптическом материале (соотношение между ε_c и n_g^2 , в отличие от случая коротких импульсов, существенно не влияет на результат генерации). Для фиксированной энергии оптического импульса ($p_j \tau a = \text{const}$ в уравнении (3.22)) выполняется соотношение $W \propto \tau^{-3}$ (соответственно, $\eta \propto \tau^{-3}$). Поскольку в пределе длинных импульсов величина τ ограничена снизу, увеличение W (и

частоты максимума спектра) за счёт уменьшения τ требует одновременного уменьшения толщины сердечника a .

В общем случае произвольного значения τ (произвольного σ_0) интеграл (3.19) от $w_j(\sigma)$ не может быть вычислен аналитически. Результаты численного интегрирования приведены на Рисунке 3.3, где построена зависимость $W_j(\sigma_0)$ для различных значений γ_j (кривые нормированы на единицу путем деления на максимальное значение $W_j(\sigma_0)$ при $\sigma_0 \rightarrow \infty$).

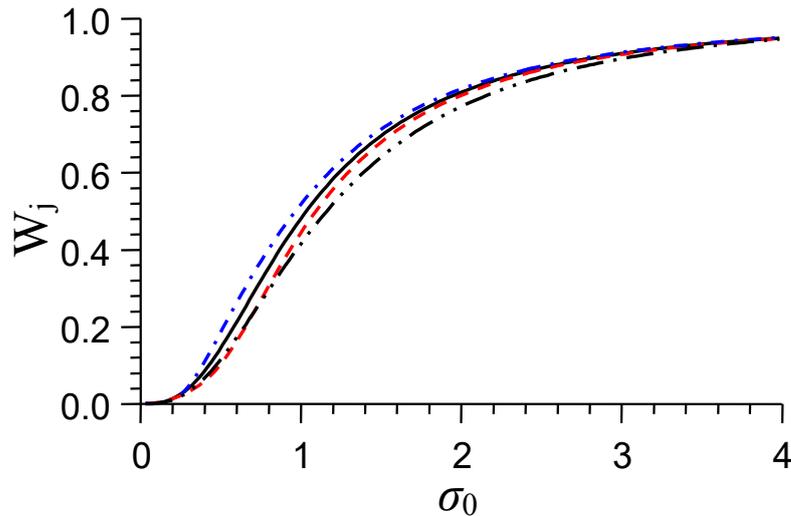


Рисунок 3.3. Нормированный на максимум поток энергии W_j в зависимости от σ_0 для $\gamma_j = 1$ (сплошная линия), $\gamma_j = 0.5$ (штрихпунктирная линия) и $\gamma_j = 2$ (штриховая линия). Штриховая линия с двумя точками показывает нормированную функцию $W_j(\sigma_0)$, заданную уравнением (3.23).

Из Рисунка 3.3 видно, что функция $W_j(\sigma_0)$ лишь слабо изменяется при вариации γ_j в широком диапазоне. Поэтому для аналитической аппроксимации зависимости $W_j(\sigma_0)$ можем ограничиться простым случаем $\varepsilon_p = \varepsilon_c$ ($\gamma_j = 1$). Дополнительно, аппроксимируем поперечный профиль нелинейного источника $G(x) = \cos^2(\pi x/a)$ гауссовой функцией схожей формы $G(x) = \exp(-16x^2/a^2)$. После этих упрощений приходим к рассмотренному ранее случаю черенковского излучения от двумерного гауссова лазерного импульса, распространяющегося в однородной электрооптической среде (см. п. 1.1.1, а также [60]). Согласно работе [60] поток энергии зависит от длительности τ и поперечного размера ℓ_\perp как $W \propto \tau^2 \ell_\perp^2 / [\tau^2 + (\varepsilon - n_g^2) \ell_\perp^2 / c^2]^{3/2}$, где ε - диэлектрическая

проницаемость среды в терагерцовом диапазоне. Заменяя $\ell_{\perp} \rightarrow a/4$ и $\varepsilon \rightarrow \varepsilon_c$, получаем выражение для полного терагерцового потока энергии в нашем случае:

$$W \approx \frac{\pi^{5/2} \tau^2 a^2}{8\sqrt{2} \delta_c c \tau_{eff}^3} \left(\frac{n_g^2}{\varepsilon_c} p_x^2 + p_y^2 + \frac{\delta_c^2}{\varepsilon_c} p_z^2 \right), \quad (3.23)$$

где

$$\tau_{eff} = \sqrt{\tau^2 + (a\delta_c)^2/(4c)^2} = \tau \sqrt{1 + \pi^2 \sigma_0^2/8}. \quad (3.24)$$

В пределе $\sigma_0 \gg 1$ уравнение (3.23) согласуется с (3.21). В противоположном пределе $\sigma_0 \ll 1$ уравнение (3.23) не полностью совпадает с (3.22) (различие между ними зависит от значений ε_c , ε_p и n_g), но дает такую же зависимость W от параметров a и τ , как и (3.22). Аналитическая формула (3.23) удобна для оценки потока энергии и позволяет ввести оптимальные параметры лазерного импульса, максимизирующие эффективность оптико-терагерцового преобразования.

При фиксированной энергии оптического импульса ($p_j \tau a = \text{const}$ в уравнении (3.23)) получаем $W \propto \tau_{eff}^{-3}$. Если фиксировать оптическую интенсивность вместо энергии ($p_j = \text{const}$) и также фиксировать a , то $W \propto \tau^2/\tau_{eff}^3$, и появляется оптимальная длительность импульса

$$\tau_W = a\delta_c/(2^{3/2}c) \approx 0,35a\delta_c/c, \quad (3.25)$$

которая максимизирует W до значения $\propto a$. Если же фиксировать τ вместо a , то $W \propto a^2/\tau_{eff}^3$, и появляется оптимальная толщина сердечника

$$a_W = 2^{5/2}c\tau/\delta_c \approx 5,7c\tau/\delta_c, \quad (3.26)$$

которая максимизирует W до значения $\propto \tau$. Однако оптимальные параметры (2.25) и (3.26) не максимизируют эффективность преобразования η , которая в случае фиксированной оптической интенсивности имеет зависимость $\eta \propto \tau a/\tau_{eff}^3$. Для максимизации η следует использовать вместо (3.25) и (3.26) следующие параметры

$$\tau_{\eta} = a\delta_c/(2^{5/2}c) \approx 0,18a\delta_c/c, \quad (3.27)$$

$$a_{\eta} = 2^{3/2}c\tau/\delta_c \approx 2,8c\tau/\delta_c, \quad (3.28)$$

соответственно.

Применим теперь развитую общую теорию к конкретной структуре, состоящей из слоя кристалла LiNbO_3 , помещенного между призмами из высокоомного кремния. Накачка такой структуры пусть осуществляется излучением титан-сапфирового лазера

(длина волны 800 нм). Стоит заметить, что оптический показатель преломления кремния 3.67 больше, чем в LiNbO_3 ($n_{\text{opt}} = 2.16$), поэтому, строго говоря, оптический импульс будет распространяться в структуре как слабо-вытекающая мода. Это может приводить к нежелательной генерации свободных носителей в кремнии. Однако в реальном эксперименте в случае прижатия или склейки Si и LiNbO_3 обычно присутствуют буферные слои (воздушные или клеевые) с показателем преломления ниже n_{opt} , что обеспечивает полное отражение накачки от границы без проникновения в Si.

В расчетах будем учитывать слабое поглощение терагерцового излучения в высокоомном кремнии, используя диэлектрическую функцию: $\varepsilon_p = 11,68 - i2 \times 10^{-4}\nu$, где частота ν выражена в ТГц (аппроксимации получена из экспериментальных данных работы [148]). Для LiNbO_3 в терагерцовом диапазоне будем использовать экспериментальные данные для легированного 0.68 мол.% MgO стехиометрического LiNbO_3 при комнатной температуре (взяты из работы [50]). Эти данные дают для показателя преломления $n_{\text{THz}} = \text{Re}\sqrt{\varepsilon_c}$ и коэффициента поглощения (по амплитуде) $\beta = (\omega/c)\text{Im}\sqrt{\varepsilon_c}$ следующие приближенные выражения $n_{\text{THz}} = 4,94 + 2,1 \times 10^{-2}\nu^2 + 1,2 \times 10^{-3}\nu^4$ и $\beta[\text{см}^{-1}] = 24,83 - 12,68\nu + 15,91\nu^2$ в области частот до 4 ТГц.

Будем полагать, что оптическая ось кристалла LiNbO_3 направлена вдоль оси y , а лазерный импульс поляризован вдоль оптической оси и создает нелинейную поляризацию в том же направлении с $p_y = d_{\text{eff}}E_0^2$, где $d_{\text{eff}} = d_{33}$. Согласно проведенным выше теоретическим расчетам данная геометрия является оптимальной: компонента p_y нелинейной поляризации генерирует терагерцовое излучение эффективнее других компонент, и величина p_y максимальна именно при такой ориентации. Для нелинейного коэффициента d_{33} используем выражение, учитывающее электронный и ионный (фононный) вклады [64]: $d_{33}[\text{пм/В}] = 25 + 158|1 - \omega^2/\omega_{\text{TO}}^2 - i\gamma\omega/\omega_{\text{TO}}^2|^{-1}$, где $\omega_{\text{TO}}/(2\pi) = 7,68$ ТГц и $\gamma/(2\pi) = 0,1$ ТГц.

На Рисунке 3.4 показано пространственное распределение электрического поля E_y , рассчитанное численно на основе уравнений (3.6)-(3.7) и (3.10) для структуры Si- LiNbO_3 -Si с толщиной сердечника $a = 40$ мкм. Из рисунка видно, что ближнее поле нелинейного источника хорошо локализовано внутри сердечника. Следовательно, черенковское излучение в призмах возникает за счет излучения, генерируемого в сердечнике, прошедшего затем через границу раздела сердечник-призма. Половинный угол раскрытия

черенковского конуса в призмах составляет $\alpha_p \approx 41^\circ$, что соответствует теоретической формуле

$$\sin \alpha_p = n_g / \sqrt{\epsilon_p}. \quad (3.29)$$

Постепенно затухающие осцилляции поперек черенковского конуса объясняются многократными отражениями генерируемого в сердечнике излучения на границах раздела сердечник-призма. Подобные осцилляции отсутствуют для черенковского конуса, генерируемого лазерным импульсом в однородной бездисперсионной (или слабодисперсионной) среде (см. Рисунок 1.8 в п. 1.4.1).

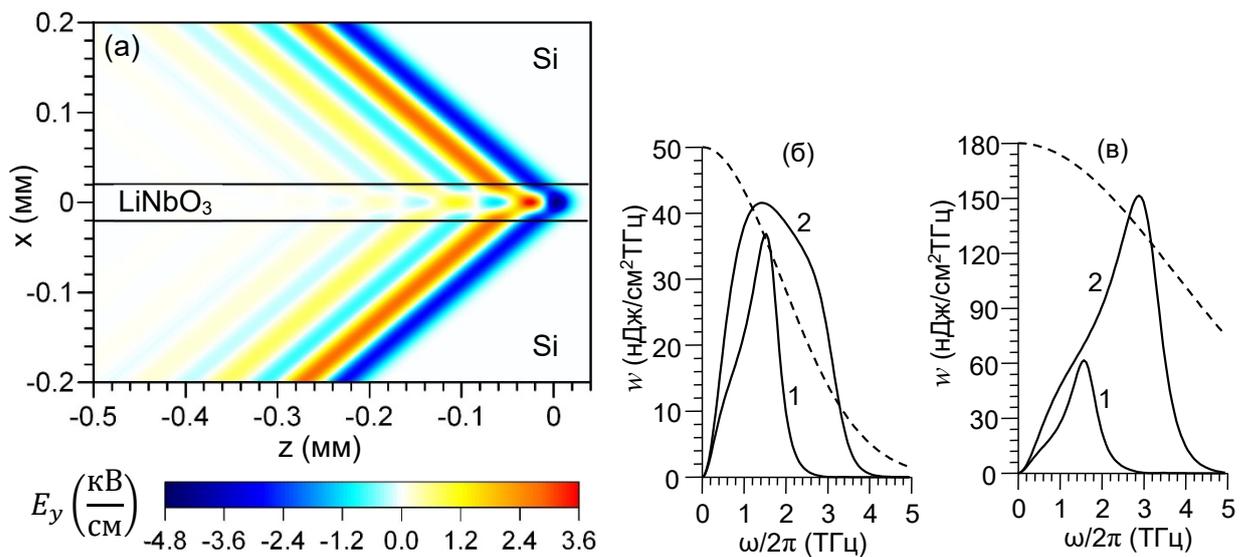


Рисунок 3.4. (а) Мгновенный снимок электрического поля $E_y(x, z, t)$ при $t = 0$, генерируемого в структуре Si-LiNbO₃-Si толщиной $a = 40$ мкм лазерным импульсом с $\tau_{\text{FWHM}} = 200$ фс и пиковой интенсивностью $I_0 = 20$ ГВт/см². (б, в) Спектральные плотности $w(\omega)$ при $a = 40$ мкм (кривые 1), $a = 20$ мкм (кривые 2) для лазерных импульсов с (б) $\tau_{\text{FWHM}} = 200$ фс, (в) $\tau_{\text{FWHM}} = 100$ фс. Спектр огибающей оптической интенсивности $\tilde{F}(\omega)$ показан пунктирной линией для соответствующих значений τ_{FWHM} . На всех рисунках энергия оптического импульса (на единицу длины) фиксирована на уровне $W_{\text{opt}} = 8,5$ мкДж/см.

Спектральная плотность $w(\omega)$, рассчитанная с помощью уравнения (3.12а), представлена на Рисунках 3.4(б,в) для двух толщин сердечника и двух длительностей лазерного импульса. Кривая 1 на Рисунке 3.4(б) и кривые 1, 2 на Рисунке 3.4(в) аналогичны безразмерной функции $\Phi_j(\sigma)$ с $\gamma_j = 2$ на Рисунке 3.2(а), что согласуется с

общей теорией для случая коротких импульсов, когда форма спектра определяется в основном функцией $\Phi_j(\sigma)$. Действительно, для указанных на Рисунке 3.2 параметрах σ_0 лежит в диапазоне от 1 до 2, а значит гауссов множитель $\tilde{F}(\omega)$ (показан пунктирной кривой на Рисунках 3.4(б,в)) почти не оказывает влияние на спектр. Для кривой 2 на Рисунке 3.4(б) $\sigma_0 \approx 0,55$, поэтому гауссов множитель $\tilde{F}(\omega)$ уже существенен и обрезает пик функции $\Phi_j(\sigma)$ при $\omega/(2\pi) \approx 3$ ТГц, что приводит к формированию П-образного спектра.

На Рисунках 3.5(а,б) и 3.5(в) представлена эффективность преобразования на единицу длины структуры η и поток энергии W , вычисленные с помощью уравнений (3.11) и (3.12а), в зависимости от толщины сердечника a и длительности импульса τ_{FWHM} . При фиксированной энергии (Рисунок 3.5(а)) эффективность растет с уменьшением a и τ_{FWHM} , что соответствует уравнениям (3.21)-(3.23). Например, даже для умеренных параметров $a = 20$ мкм, $\tau_{\text{FWHM}} = 100$ фс и $W_{\text{opt}} = 8,5$ мкДж/см ($I_0 = 80$ ГВт/см²)

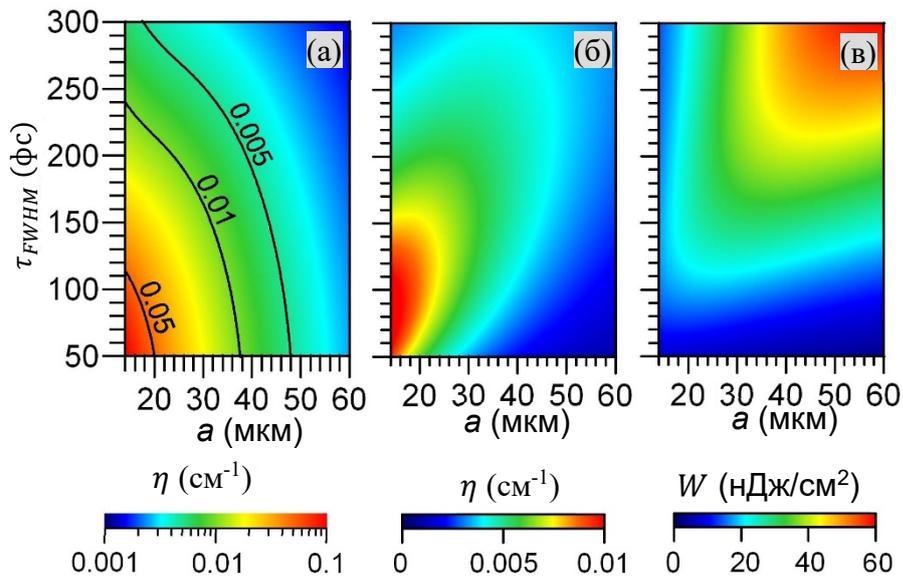


Рисунок 3.5. (а,б) Эффективность оптико-терагерцового преобразования η на единицу длины структуры Si-LiNbO₃-Si в зависимости от a и τ_{FWHM} при (а) фиксированной энергии оптического импульса $W_{\text{opt}} = 8,5$ мкДж/см и (б) фиксированной оптической интенсивности $I_0 = 20$ ГВт/см². (в) Терагерцовый поток энергии W в зависимости от a и τ_{FWHM} при фиксированной $I_0 = 20$ ГВт/см².

достигается погонная эффективность $\eta \approx 0,03 \text{ см}^{-1}$, что хорошо согласуется с оценкой по приближенной формуле (3.23) $\eta \approx 0,04 \text{ см}^{-1}$. При фиксированной интенсивности (Рисунки 3.5(б,в)) наблюдаются оптимальные значения a (при фиксированном τ) и τ (при фиксированном a), соответствующие уравнениям (3.25)-(3.28). Например, для $\tau_{\text{FWHM}} = 200 \text{ фс}$ формула (3.28) предсказывает оптимальную толщину $a_\eta = 24 \text{ мкм}$, что хорошо согласуется с Рисунок 3.5(б).

Полная эффективность преобразования для структуры конечной длины L может быть приближенно оценена как ηL , а значит эффективность можно увеличить за счет использования более длинных структур. Однако существуют ограничения сверху на длину структуры L , связанные как с линейным эффектом дисперсионного расплывания, так и с нелинейными эффектами самовоздействия оптического импульса. При учете дисперсионного расплывания, длина L должна быть меньше дисперсионной длины $L_d = \tau^2/k_2$, где $k_2 \approx 370 \text{ фс}^2/\text{мм}$ для LiNbO_3 , что дает

$$L_d [\text{см}] \approx 10^{-4} \tau_{\text{FWHM}}^2 (\tau_{\text{FWHM}} \text{ в фс}). \quad (3.30)$$

Оценку нелинейных эффектов провести довольно сложно. Приведем оценку для самофокусировки при сравнительно небольших интенсивностях $I_0 < 100 \text{ ГВт}/\text{см}^2$. При таких интенсивностях трехфотонное поглощение можно не учитывать. Действительно согласно данным работы [149] коэффициент трех-фотонного поглощения (при $100 \text{ ГВт}/\text{см}^2$) составляет $2,6 \times 10^{-5} \text{ см}^3/\text{ГВт}^2$, что дает эффективную нелинейную длину поглощения около 4 см , что больше длины структуры 1 см . Однако необходимо учитывать филаментацию, так как оптическая мощность значительно превышает критическую мощность самофокусировки ($P_{\text{cr}} \approx 400 \text{ кВт}$, что дает $P_{\text{opt}}/P_{\text{cr}} \sim 200$ для $\tau_{\text{FWHM}} = 100 \text{ фс}$ и $W_{\text{opt}} = 8,5 \text{ мкДж}/\text{см}$). Длина развития филаментации составляет $L_f = \lambda_{\text{opt}} K / (2\pi n_2 I_0)$ [150], где $\lambda_{\text{opt}} = 800 \text{ нм}$ – длина волны оптического излучения в вакууме, $n_2 = 9,5 \times 10^{-16} \text{ см}^2/\text{Вт}$ – нелинейный показатель преломления LiNbO_3 [146], а K – численный коэффициент порядка от 3 до 10. Выбирая промежуточное значение коэффициента $K \approx 6$ получаем выражение

$$L_f [\text{см}] \approx 80 I_0^{-1} (I_0 \text{ в ГВт}/\text{см}^2). \quad (3.31)$$

В зависимости от параметров a , τ_{FWHM} и I_0 , допустимая длина L ограничивается минимальным значением из определенных выше длин L_d или L_f .

На Рисунке 3.6 показана эффективность преобразования ηL для структуры Si-LiNbO₃-Si в зависимости от a и τ_{FWHM} при максимально допустимой длине L (L принимается как $L = \min\{L_a, L_f\}$ и показана пунктирными линиями). Фактически $L = L_a(\tau_{FWHM})$ на горизонтальных участках линий уровня и $L = L_f(a, \tau_{FWHM})$ на других участках кривых. Для заданной толщины сердечника a существует оптимальная длительность импульса τ_{FWHM} которая максимизирует эффективность (и, следовательно, выход терагерцового излучения). Например, для $a = 40$ мкм максимум $\eta L \approx 0,02$ достигается при $\tau_{FWHM} \approx 200$ фс (соответствующая длина структуры составляет $L \approx 3,5$ см). Аналогично, для заданного τ_{FWHM} существует оптимальная толщина a , например, для $\tau_{FWHM} = 150$ фс максимум $\eta L \approx 0,03$ достигается при $a \approx 18$ мкм ($L \approx 1,3$ см). Полученная выше из Рисунка 3.5(а) оценка $\eta = 0,03$ см⁻¹ для $a = 20$ мкм и $\tau_{FWHM} = 100$ фс соответствует почти точно максимальной длине $L \approx 1$ см на Рисунке 3.6, что дает $\eta L \approx 0,03$.

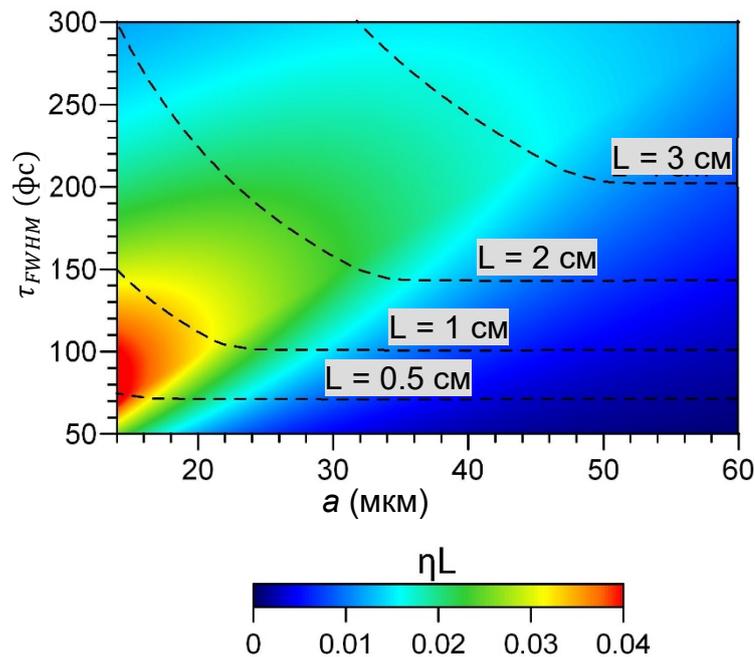


Рисунок 3.6. Эффективность преобразования ηL для структуры Si-LiNbO₃-Si длиной $L = \min\{L_a, L_f\}$ в зависимости от a и τ_{FWHM} . Линии уровня $L(a, \tau_{FWHM})$ показаны пунктирной линией. Энергия оптического импульса (на единицу длины линейного источника) фиксирована на уровне $W_{opt} = 8,5$ мкДж/см.

3.2. Экспериментальные исследования оптико-терагерцовой конверсии в сэндвич-структурах со слоем LiNbO_3

В данном параграфе приведены результаты экспериментальных исследований генерации терагерцового излучения в сэндвич-структуре с сердцевиной из LiNbO_3 и кремниевой выводящей призмой. Рассматриваются различные модификации этой структуры, а также исследуется влияние длительности и центральной длины волны лазерных импульсов на эффективность конверсии.

Исследуемые сэндвич-структуры были изготовлены в ИПФ РАН г. Нижний Новгород. Процедура изготовления состояла из нескольких этапов. Вначале толстый слой полированного кристалла LiNbO_3 (толщиной около 1 мм) приклеивался к подложке или кремниевой призме (в зависимости от типа структуры). Затем слой шлифовался и полировался до толщины 30-50 мкм. К свободной поверхности приклеивалась кремниевая призма (или временная подложка) и полировались входные и выходные грани LiNbO_3 через которые вводилось и выводилось лазерное излучение. Затем, в случае склейки с временной подложкой, последняя отклеивалась.

Первый эксперимент для проверки теоретических предсказаний по высокоэффективной генерации терагерцового излучения был проведен в сэндвич-структуре, показанной на Рисунке 3.7(б). Для создания структуры пластина конгруэнтного LiNbO_3 была приклеена к стеклянной подложке К8, а призма из высокоомного кремния (с углом 45° при основании, близким к оптимальному углу 41°) прижималась к свободной поверхности слоя LiNbO_3 . Были изготовлены две структуры с толщинами слоя LiNbO_3 $a = 30$ мкм и 50 мкм. Длина обеих структур составляла 8 мм.

Схема экспериментальной установки показана на Рисунке 3.7(а). В качестве оптического источника использовалась титан-сапфировая фемтосекундная лазерная система Tsunami, Spitfire Pro (50 фс, 780 нм, 1 кГц, 1 мДж). Лазерное излучение делилось на импульсы накачки и зондирующие импульсы. Энергия накачки регулировалась в диапазоне 0-130 мкДж с помощью поляризационного аттенюатора (полуволновой пластины $\lambda/2$ и поляризатора П). В эксперименте использовались импульсы с длительностью 50 и 200 фс, причем последнее значение получалось путем дисперсионного уширения 50 фс импульсов в стеклянной пластине толщиной 6.5 см.

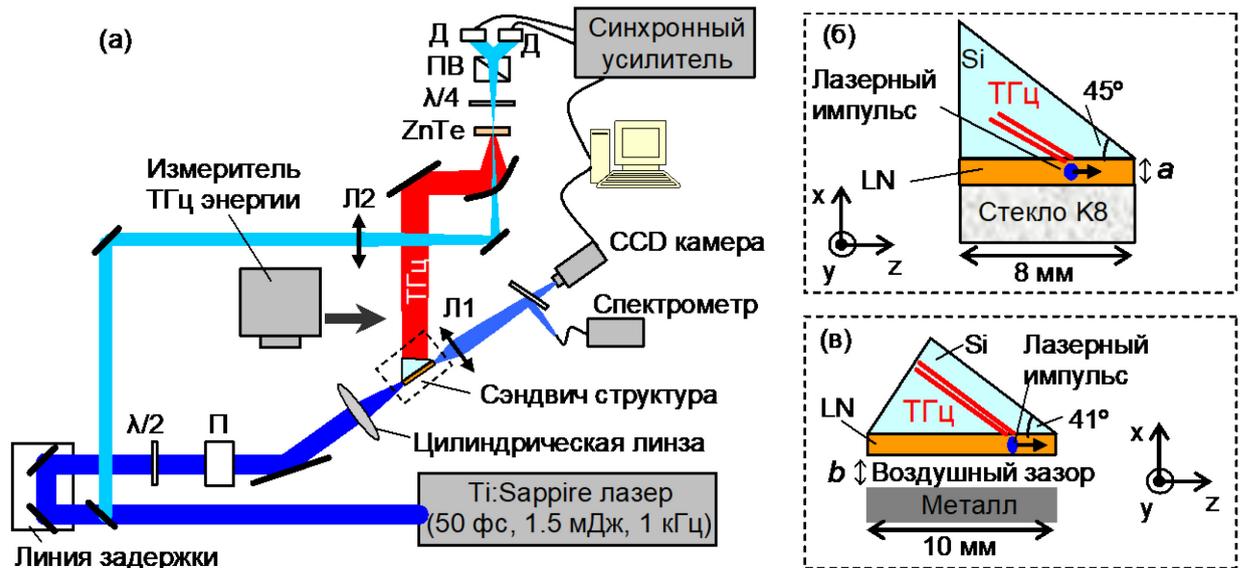


Рисунок 3.7. (а) Схема экспериментальной установки (П – поляризатор, Л1,Л2 – сферические линзы, ПВ – призма Волластона, Д – фотодиод). (б) и (в) Различные типы сэндвич-структур с сердцевинкой из LiNbO_3 (ТГц – терагерцовый импульс).

Диаметр лазерного пучка составлял 5.3 мм по уровню половины интенсивности, фокусировка на торец LiNbO_3 осуществлялась цилиндрической линзой. Фокусное расстояние линз для структур с 30 мкм и 50 мкм слоями LiNbO_3 выбиралось для оптимального возбуждения основной моды планарного волновода (см. Рисунок 3.1), так что ширина сфокусированного оптического пучка (вдоль оси x) составляла около 13 и 21 мкм, соответственно. Точность формирования основной моды волновода контролировалась путем переноса (с увеличением ~ 10) распределения оптической интенсивности с выходного торца сердечника на CCD камеру с помощью короткофокусной линзы (Л1). Поляризация оптического излучения была ориентирована вдоль оси y (перпендикулярная плоскости Рисунка 3.7) и сонаправлена с оптической осью кристалла для максимальной эффективности преобразования (см. п. 3.1). Оптический спектр после прохождения структуры измерялся спектрометром S150 (Solar Laser Systems).

Для характеристики генерируемого излучения были проведены измерения энергии и временной формы терагерцового импульса. Для измерения энергии в данном эксперименте использовался болометр, охлаждаемый жидким гелием (QMS Instruments Ltd.), при этом терагерцовое излучение фокусировалось во входное окно болометра тефлоновой линзой. Важной особенностью измерения энергии терагерцового излучения

является абсолютная калибровка детектора. Поскольку болометр был откалиброван производителем только для непрерывного излучения, была проведена его калибровка для коротких терагерцовых импульсов (длительностью около пс). Для этого использовались достаточно короткие СВЧ импульсы (длительность ~ 30 нс, меньше времени отклика болометра ~ 300 нс) на центральной частоте около 100 ГГц, полученные модуляцией непрерывного источника СВЧ излучения импульсным генератором напряжения. При известной частоте повторения и средней мощности данных импульсов, была определена импульсная чувствительность болометра ~ 3 В/нДж. Для проверки калибровки была измерена энергия терагерцового излучения, генерируемая в 2 мм кристалле ZnTe с ориентацией $\langle 110 \rangle$ при возбуждении 50 фс импульсами титан-сапфирового лазера, и проведено сравнение результатов с данными работы [26]. В указанной работе использовался 0,5 мм кристалл ZnTe $\langle 110 \rangle$ и 30 фс импульсы лазерной накачки, а терагерцовая энергия измерялась калиброванным пироэлектрическим детектором (Coherent-Molelectron). При одинаковом оптическом потоке энергии 100 мкДж/см² измеренная эффективность преобразования в ZnTe составила $\sim 2 \times 10^{-5}$, в хорошем соответствии с данными работы [26] $\sim 1.5 \times 10^{-5}$. Небольшое расхождение (в 1,3 раза) может быть объяснено разной толщиной кристаллов (см. п. 1.5.1).

Для измерения временного профиля терагерцовых импульсов, использовался классический метод электрооптического стробирования с применением кристалла (110) ZnTe толщиной 3 мм. Деполяризация зондирующего излучения, наведенная терагерцовым поле в кристалле ZnTe, измерялась четвертьволновой пластинкой ($\lambda/4$), призмой Воссластона (ПВ) и пары фотодиодов (Д), подключенных к синхронному усилителю.

Перед тем как представить результаты экспериментальных измерений приведем результаты численных расчетов генерируемого терагерцового излучения в данной сэндвич-структуре. Расчеты основываются на модели, изложенной в п. 3.1 и адаптированы на случай несимметричного окружения слоя LiNbO₃ (параметры подложки в расчетах составляли: показатель преломления $n_{k8} = 2,62 + 0,017v + 0,03v^2$ и поглощение $\alpha_{k8}[\text{см}^{-1}] = 24v^2$, где v выражено в ТГц). На Рисунке 3.8(а) показано пространственное распределение электрического поля E_y , рассчитанное при $a = 50$ мкм и $\tau_{\text{FWHM}} = 100$ фс. Видно, что диаграмма направленности излучения сильно асимметрична. Половинный угол раскрытия черенковского конуса в кремнии составляет

$\theta_{\text{Si}} = \arcsin(n_g/n_{\text{Si}}) \approx 41^\circ$, в подложке $\theta_{\text{BK7}} = \arcsin(n_g/n_{\text{K8}}) \approx 58^\circ$ в BK7. В подложке терагерцовое поле быстро затухает с расстоянием от сердечника из-за сильного поглощения, тогда как в Si-призме поле формирует протяженный черенковский клин. На Рисунке 3.8(б) сплошной кривой показан соответствующий Рисунку 3.8(а) спектр терагерцового поля в призме (при $x = a/2 + 0$). Спектр имеет максимум на частоте 1,2 ТГц и простирается от 0,1 до 2,5 ТГц. Максимальная частота (2,5 ТГц) ограничена прежде всего толщиной слоя. Действительно, при выбранной длительности импульса имеем $\tau = 60 \text{ фс} < a\delta_c/(9c) = (1,7a[\text{мкм}]) \text{ фс} = 85 \text{ фс}$, и согласно теории развитий в п. 3.1, спектр определяется функцией $\Phi_j(\sigma)$, который имеет ширину до $\sigma = 2$, что соответствует частоте $2c/(a\delta_c) = (133/a[\text{мкм}]) \text{ ТГц} = 2,6 \text{ ТГц}$ в хорошем соответствии точным численным расчетом.

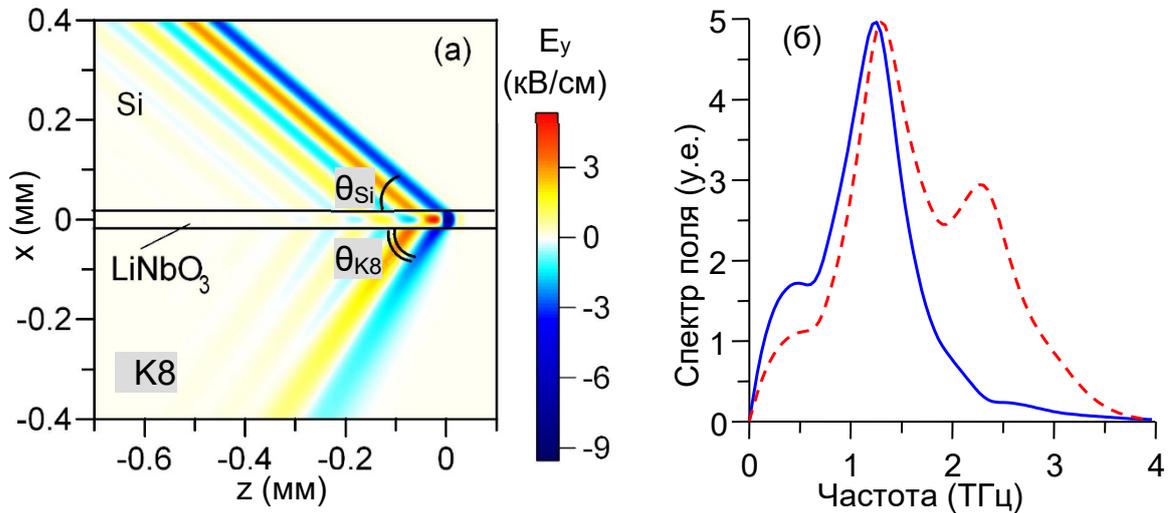


Рисунок 3.8. (а) Пространственная структура и (б) спектр поля при $x = a/2 + 0$ (сплошная линия), рассчитанные для Si-LiNbO₃-K8 структуры при длительности лазерного импульса 50 фс и интенсивности 100 ГВт/см². Поперечный размер оптического пучка определяется основной модой волновода. Пунктирная линия на Рисунке (б) показана при оптическом пучке гауссовой формы с размером в 2 раза меньшем, чем основная мода волновода.

Для моделирования эффекта самофокусировки, которая может развиваться при высоких оптических интенсивностях, на Рисунке 3.8(б) пунктирной линией построен терагерцовый спектр, генерируемый в структуре с $a = 50 \text{ мкм}$ лазерным импульсом с гауссовым поперечным профилем и $\ell_{\perp\text{FWHM}} = 10 \text{ мкм}$, что в 2 раза меньше ширины

основной моды планарного волновода (~ 21 мкм). Из Рисунке 3.8(б) видно, что уменьшение поперечного размера оптического импульса приводит к расширению спектра. Провалы в данном спектре при 0.65 ТГц и 2 ТГц можно объяснить деструктивной интерференцией терагерцовых волн, отраженных от границ сердечника. Положение провалов (интерференционных минимумов) определяется формулой:

$$\nu_k[\text{ТГц}] = \frac{c}{2an_{\text{LN}} \cos \theta_{\text{LN}}} (2k - 1) = \frac{33}{a[\text{мкм}]} (2k - 1), \quad (3.32)$$

где $\theta_{\text{LN}} \approx 26^\circ$ - половинный угол раскрытия черенковского клина в LiNbO_3 , а $k = 1, 2, \dots$

На Рисунке 3.9 представлены спектры терагерцового поля, измеренные экспериментально при различных параметрах оптической накачки. Многочисленные узкие провалы в спектрах на Рисунке 3.9(а) являются линиями поглощения водяного пара (это в том числе приводит к длительным спадающим колебаниям в хвосте терагерцового импульса, см. вставку на Рисунке 3.9(а)). Для $a = 50$ мкм положение главного максимума спектра находится в диапазоне 0,8-1,2 ТГц, что хорошо согласуется с теоретическими расчетами (см. Рисунок 3.8(б)). Для $a = 30$ мкм максимум спектра смещается к $\sim 1,5$ ТГц, что также соответствует теоретическим предсказаниям (см. Рисунок 3.4(в)). Для $a = 30$ мкм заметен минимум около 0.9 ТГц, что приближенно согласуется с формулой (3.32) для интерференционного минимума. Однако теоретические расчеты не предсказывают наличие второго максимума спектра в области 2-2.5 ТГц на Рисунке 3.9(а). Аналогичный максимум наблюдается в спектрах для 200 фс лазерных импульсов (Рисунок 3.9(б)). Величина этого максимума заметно растет с увеличением энергии лазерного импульса накачки (Рисунок 3.9(б)), что позволяет связать данный факт с дополнительными нелинейными эффектами, возникающими при распространении лазерного импульса в кристалле. Одним из возможных объяснений роста высокочастотных компонент является самофокусировочная неустойчивость оптического импульса. Действительно, при энергии 30 мкДж и длительности 200 фс, соответствующим штриховой кривой на Рисунке 3.9(б), интенсивность импульса составляет около 80 ГВт/см^2 , что согласно оценочной формуле (3.31) может приводить к развитию самофокусировки на длине слоя LiNbO_3 8 мм. Из-за уменьшения поперечного размера пучка спектр генерируемого излучения должен испытывать смещение в высокочастотную область, со согласуется с ростом спектральной плотности при частотах 2-2,5 ТГц на Рисунке 3.9(б). Дополнительным фактором, усиливающим генерацию высокочастотного терагерцового излучения, может являться

фотогенерация свободных носителей за счет многофотонного поглощения накачки. Как было показано в работе [58], за счет присутствия выпрямленного поля оптического импульса такие носители могут создавать дополнительный терагерцовый источник в виде всплеска фототока. Подробнее данный эффект будет рассмотрен в конце данного параграфа.

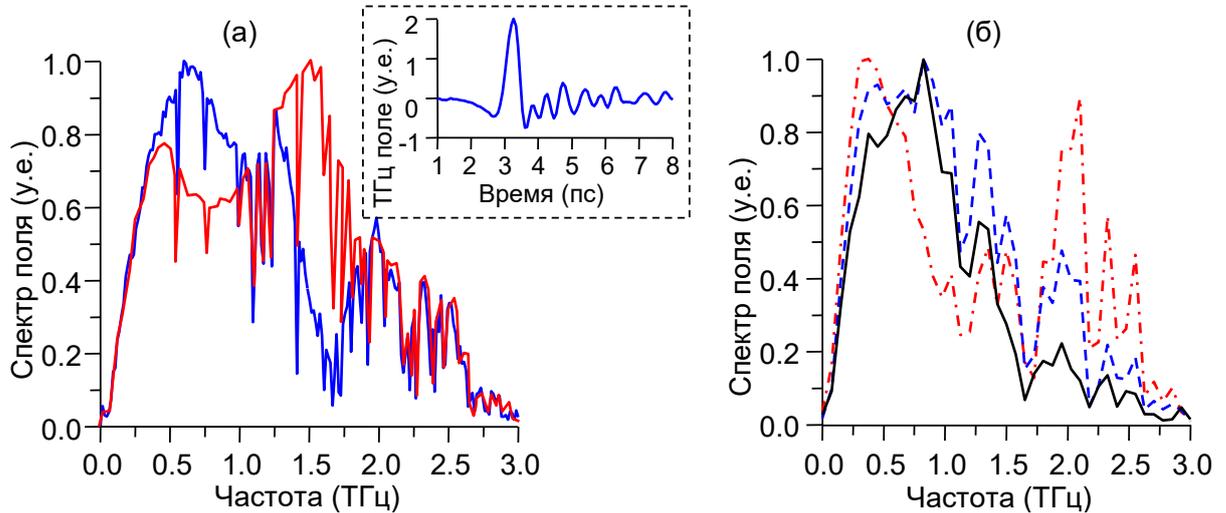


Рисунок 3.9. (а) Нормированные спектры терагерцового излучения, генерируемого в Si-LiNbO₃-K8 структуре с $a = 50$ мкм (синяя линия) и 30 мкм (красная линия) лазерными импульсами длительности 50 фс и энергиями 17 мкДж и 10 мкДж, соответственно. Во вставке показана соответствующая временная форма терагерцового импульса для $a = 50$ мкм. (б) Нормированные спектры терагерцового излучения (полученные с меньшим частотным разрешением), генерируемые в структуре с $a = 50$ мкм лазерными импульсами длительностью 200 фс и энергиями 9 мкДж (сплошная линия), 30 мкДж (штриховая линия) и 130 мкДж (штрихпунктирная линия).

На Рисунке 3.10(а) показана эффективность оптико-терагерцового преобразования в зависимости от энергии импульса накачки для двух толщин слоя LiNbO₃ (30 мкм и 50 мкм) и двух длительностей лазерного импульса (50 фс и 200 фс). При низких энергиях накачки эффективность растет линейно, а затем насыщается. В режиме линейной зависимости полученные результаты можно сравнить с расчётной эффективностью (полученной в рамках изложенной выше модели), которая показана пунктирной прямой для $a = 30$ мкм и $\tau_{\text{FWHM}} = 200$ фс. Видно, что теория предсказывает эффективность примерно в 3 раза больше, чем наблюдалось в эксперименте. Расхождение между

экспериментальными и теоретическими зависимостями можно объяснить следующими причинами. Во-первых, в эксперименте только 30% падающей оптической энергии проходило через сэндвич-структуру при низких энергиях накачки, что примерно в 2,5 раза меньше ожидаемых 75% (последнее значение обусловлено отражениями на входной и выходной гранях сердечника). Дополнительные оптические потери, которые можно объяснить неидеальной фокусировкой лазера на входную грань и рассеянием света на дефектах сердечника, очевидно уменьшают эффективность преобразования. Во-вторых, вероятно, существовал воздушный зазор между сердечником и кремниевой призмой, что увеличивало отражение генерируемых в сердечнике терагерцовых волн от границы $\text{LiNbO}_3\text{-Si}$ и их последующее поглощение в LiNbO_3 и подложке стекла К8.

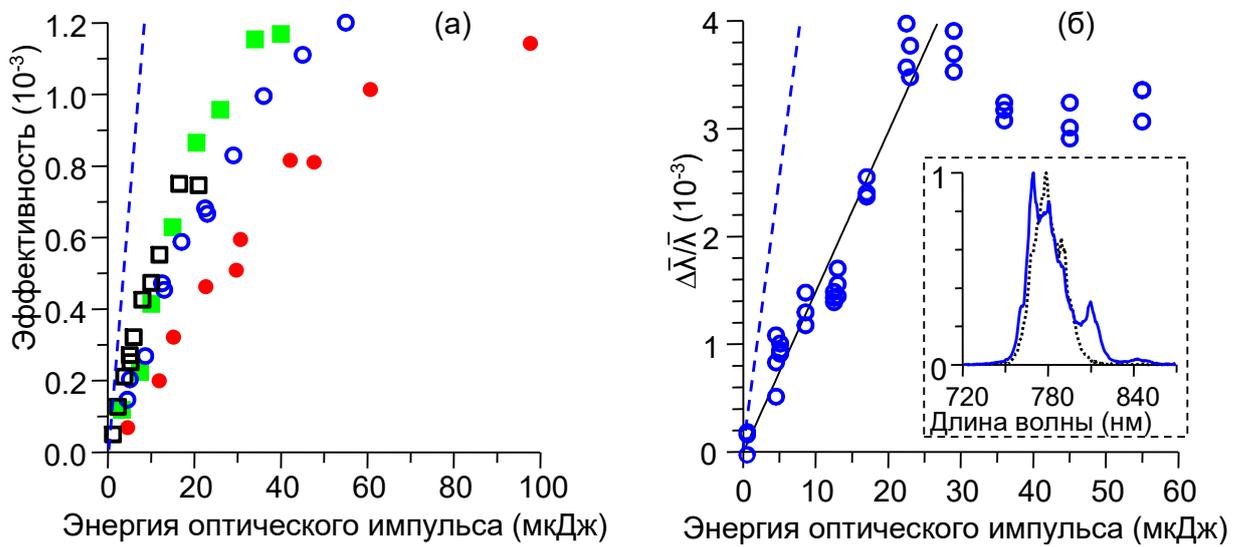


Рисунок 3.10. (а) Эффективность оптико-терагерцового преобразования в зависимости от энергии лазерного импульса для следующих параметров $[a, \tau_{\text{FWHM}}]$: [50 мкм, 200 фс] (закрашенные красные кружки), [30 мкм, 200 фс] (незакрашенные синие кружки), [50 мкм, 50 фс] (закрашенные зеленые квадраты), [30 мкм, 50 фс] (незакрашенные черные квадраты). (б) Относительное красное смещение спектра оптической накачки в зависимости от энергии лазерного импульса для $a = 30$ мкм и $\tau_{\text{FWHM}} = 200$ фс. Сплошная линия - линейная аппроксимация экспериментальных точек для энергий < 30 мкДж. Во вставке показан выходной оптический спектр $S(\lambda)$ для энергии накачки 29 мкДж (сплошная линия) и 0.5 мкДж (пунктирная линия). Пунктирные прямые линии на (а) и (б) показывают теоретические зависимости для $a = 30$ мкм и $\tau_{\text{FWHM}} = 200$ фс.

Энергия оптической накачки, при которой эффективность насыщается, как видно из Рисунка 3.10(а), зависит от a и τ_{FWHM} . Чем меньше значения a и τ_{FWHM} , тем меньше эта энергия насыщения. Максимальная эффективность преобразования $\sim 0,12\%$ достигается для трех комбинаций a и τ_{FWHM} : [50 мкм, 50 фс], [30 мкм, 200 фс] и [50 мкм, 200 фс] при энергиях около 30 мкДж, 50 мкДж и 80 мкДж, соответственно. Для $a = 30$ мкм и $\tau_{FWHM} = 50$ фс эффективность насыщается на более низком уровне $\sim 0,075\%$ при энергии 20 мкДж. Значения падающей на кристалл интенсивности накачки, при которых происходит насыщение, лежат в диапазоне 250-400 ГВт/см². Причина насыщения может быть обусловлена суммарным действием различных нелинейных факторов, таких как самовоздействие за счет керровской нелинейности, трехфотонное поглощение, обратное воздействие терагерцового излучения (см. далее обсуждение экспериментальных результатов для других типов сэндвич-структур).

Эффективное преобразование оптического излучения в терагерцовое должно приводить к красному смещению спектра накачки [120]: фотон из высокочастотного крыла спектра оптического импульса распадается на терагерцовый фотон и фотон с красным смещением, соответствующий низкочастотному крылу спектра. Такое смещение действительно наблюдалось и в проведенных экспериментах (при генерации терагерцового излучения скошенными лазерными импульсами аналогичный эффект был зарегистрирован во многих работах, см., например, [151], [152], [153], [154]). На Рисунке 3.10(б) показано относительное смещение центральной длины волны оптического излучения, прошедшего через LiNbO₃, $\Delta\bar{\lambda}/\bar{\lambda}$ ($\Delta\bar{\lambda} = \bar{\lambda} - \lambda_{opt}$) в зависимости от энергии импульса накачки ($a = 30$ мкм и $\tau_{FWHM} = 200$ фс). Центральная длина волны $\bar{\lambda}$ вычислялась по формуле [152]:

$$\bar{\lambda} = \frac{\int \lambda S(\lambda) d\lambda}{\int S(\lambda) d\lambda}, \quad (3.33)$$

где $S(\lambda)$ - измеренный оптический спектр после прохождения сэндвич-структуру. Спектр $S(\lambda)$ показан на вставке к Рисунку 3.10(б) для двух энергий накачки: 0,5 мкДж и 29 мкДж. При меньшей энергии (0,5 мкДж) спектр лишь незначительно искажен по сравнению со спектром падающего лазерного импульса (не показан на рисунке), его центральная длина волны практически не смещена. При большей энергии (29 мкДж) искажение более выражено и наблюдается значительное усиление спектральных компонент в красной области спектра, что и приводит к красному смещению $\bar{\lambda}$. Согласно Рисунку 3.10(б),

относительное красное смещение линейно зависит от энергии импульса накачки при энергиях < 30 мкДж. Эта зависимость соответствует квадратичной природе оптико-терагерцового преобразования (т.е. энергия терагерцового излучения пропорциональна квадрату оптической энергии) при отсутствии других потерь оптической накачки. При ~ 30 мкДж линейный рост смещения $\Delta\bar{\lambda}/\bar{\lambda}$ прекращается, что может быть обусловлено проявлением дополнительных нелинейных эффектов, в частности трехфотонным поглощением накачки и соответствующей фотогенерацией свободных носителей в LiNbO_3 . Действительно, лазерный импульс испытывает синее смещение при распространении через плазму с растущей во времени плотностью (см., например [155]), что может компенсировать линейный рост красного смещения.

В случае отсутствия других потерь отношение $\Delta\bar{\lambda}/\bar{\lambda}$ можно рассматривать, как внутреннюю эффективность оптико-терагерцового преобразования (без учета потерь терагерцового излучения на поглощение и прохождение границ в структуре). Данная эффективность очевидно должна быть больше, чем эффективность, рассчитанная из измеренной терагерцовой энергии. Действительно, на участке линейного роста на Рисунке 3.10(б) $\Delta\bar{\lambda}/\bar{\lambda}$ примерно в 3-4 больше, чем эффективность на Рисунке 3.10(а). Теоретическая зависимость красного смещения (пунктирная линия на Рисунке 3.10 (б)), рассчитанная как отношение излученной из сердечника (в призму и подложку) терагерцовой энергии к оптической энергии внутри сердечника, также испытывает расхождение с экспериментом, как и эффективность на Рисунке 3.10(а). Расхождение между теорией и экспериментом частично можно объяснить упомянутыми выше дополнительными оптическими потерями.

Некоторым недостатком исследованной $\text{Si-LiNbO}_3\text{-K8}$ структуры является потери терагерцового излучения, связанные с черенковским излучением в подложку К8. Такие потери могут быть исключены (или минимизированы) при использовании подложки, с полным отражением соответствующей части черенковского клина. В качестве такой подложки может быть использован материал с показателем преломления в терагерцовой области частот меньше, чем групповой показатель преломления оптического импульса в LiNbO_3 (2.23 на длине волны 800 нм), например воздух. Вторым возможным вариантом является металлическая подложка. На Рисунке 3.7(в) показана структура, которая комбинирует оба варианта: пластина LiNbO_3 приклеена к кремниевой призме, а около свободной поверхности расположена металлическая пластина с варьируемым воздушным

зазором шириной b . Для данной структуры (с толщиной слоя LiNbO_3 $a = 35$ мкм и оптимальным углом кремниевой призмы 41°) также были проведены экспериментальные исследования. Схема эксперимента аналогична схеме, приведенной на Рисунке 3.7(а), с небольшими изменениями: для измерения энергии терагерцового излучения вместо болометра использовалась калиброванная ячейка Голя (с кремниевым окном для блокировки оптического излучения), при электрооптическом детектировании использовался кристалл ZnTe толщиной 50 мкм, измерение спектра прошедшего оптического излучения не проводилось. Численные расчеты проводились на основе теории, изложенной в п. 3.1 и модифицированной на случай наличия металлической подложки с воздушным зазором.

Основные результаты представлены на Рисунке 3.11. Экспериментальный терагерцовый спектр на Рисунке 3.11(а) демонстрирует два пика около 0,8 ТГц и 2,5 ТГц (независимо от величины воздушного зазора), что является результатом интерференции двух квазиплоских волн черенковского клина: первая волна излучается непосредственно в кремниевую призму через верхнюю грань слоя LiNbO_3 (верхняя волна), а вторая волна полностью отражается от нижней грани (нижняя волна). При перемещении металлической пластины из бесконечности к слою LiNbO_3 спектр изменяется следующим образом: низкочастотные компоненты спектра усиливаются около 0,8 ТГц и ослабляются около 2,5 ТГц, провал в спектре около 1,5 ТГц смещается в сторону более высоких частот. Этот эффект обусловлен различным фазовым сдвигом нижней волны, отраженной от нижней грани слоя LiNbO_3 , для разных величин воздушного зазора. Действительно, первая осцилляция терагерцового поля (см. Рисунок 3.11(б)), соответствующая верхней волне, не зависит от положения металлической пластины, тогда как вторая изменяется при разных значениях b (длинный шумовой хвост на осциллограмме связан с поглощением в парах воды, содержащихся в воздухе). Теоретический спектр поля на Рисунке 3.11(в) хорошо согласуется с экспериментальными результатами на Рисунке 3.11(а). Следует отметить, что продемонстрированная перестройка спектра довольно ограничена, но может быть полезной для некоторых спектроскопических применений, где требуется непрерывный диапазон частот. Если перестройка спектра не требуется, можно использовать более простую сэндвич-структуру, состоящую из Si-призмы и слоя LiNbO_3 с металлическим покрытием или без него, в зависимости от предпочтительного спектра.

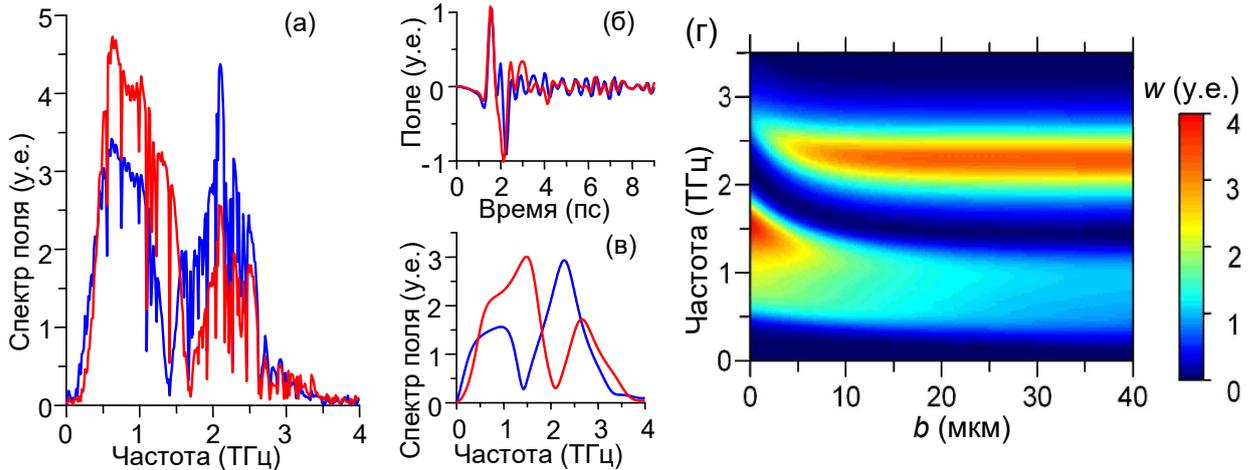


Рисунок 3.11. (а) Спектры и (б) осциллограммы терагерцовых полей, генерируемых в Si-LiNbO₃-воздух-металл структуре (см. Рисунок 3.7(в) с $a = 35$ мкм) при $\tau_{\text{FWHM}} = 50$ фс, энергии импульса 5 мкДж, ширине воздушного зазора $b = 0$ (красные кривые) и $b \rightarrow \infty$ (синие кривые). (в) Теоретические спектры поля при $b = 0$ (красная кривая) и $b \rightarrow \infty$ (синяя кривая). (г) Теоретический спектр плотности потока терагерцовой энергии в зависимости от ширины воздушного зазора.

Помимо изменений в терагерцовом спектре, при уменьшении воздушного зазора наблюдалось также увеличение энергии терагерцового излучения. Как видно из Рисунка 3.12(а), энергия возрастает на $\sim 30\%$, преимущественно в малом (по сравнению с длиной терагерцовой волны) интервале $b = 0 - 20$ мкм. Физически этот интервал соответствует величине локализации затухающего терагерцового поля в воздухе $E_y \propto \exp[\kappa_v(x + a/2)]$ ($\kappa_v = \omega/c[n_g^2 - 1]^{1/2}$), которая составляет 24 мкм для частоты 1 ТГц. На этом же интервале происходит и изменение энергетического спектра (см. численный расчет на Рисунок 3.11(г)). Теоретическая кривая на Рисунке 3.12(а) хорошо согласуется с экспериментальными результатами. Небольшое расхождение при $b \sim 10$ мкм может быть следствием непараллельности слоя LiNbO₃ и металлической пластины в эксперименте. Увеличение энергии терагерцового излучения при уменьшении воздушного зазора объясняется меньшим поглощением терагерцового излучения в LiNbO₃ на низких частотах и более эффективным возбуждением низкочастотных компонент при малых значениях b (см. Рисунки 3.11(а,в,г)).

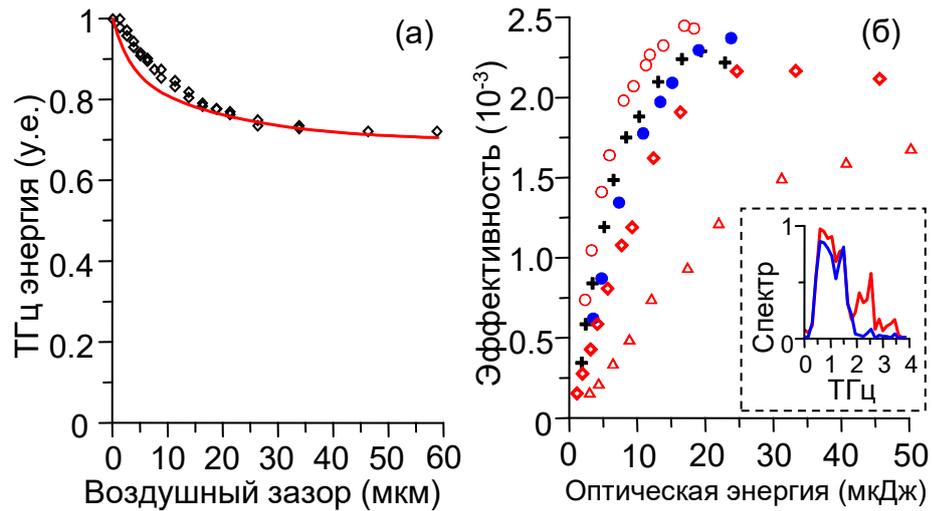


Рисунок 3.12. (а) Нормированная энергия терагерцового излучения в зависимости от ширины воздушного зазора (ромбики – эксперимент, сплошная линия – теория). (б) Эффективность оптико-терагерцового преобразования в зависимости от энергии лазерного импульса при разных длительностях лазерного импульса: $\tau_{FWHM} = 50$ фс (крестики), $\tau_{FWHM} = 150$ фс с положительным и отрицательным чирпами (заполненные и пустые кружочки, соответственно), $\tau_{FWHM} = 220$ фс (ромбики) и $\tau_{FWHM} = 400$ фс (треугольники) с отрицательным чирпом. Во вставке показаны спектры терагерцового поля с положительным чирпом (синяя кривая) и отрицательным (красная кривая) чирпом при $\tau_{FWHM} = 150$ фс.

На Рисунке 3.12(б) представлена эффективность оптико-терагерцового преобразования в зависимости от энергии накачки для различных длительностей чирпованных импульсов. В отличие от первого эксперимента здесь были использованы импульсы с разным знаком частотной модуляции (такие импульсы получались при перестройке компрессора лазерной системы). Как и в первом эксперименте (см. Рисунок 3.10), эффективность преобразования растет линейно с оптической энергией, а затем насыщается. Уровень насыщения слабо зависит от чирпа при длительностях импульса менее 200 фс и уменьшается для более длинных импульсов. Максимальная эффективность преобразования достигает 0,25 % для длительностей импульса 50-150 фс и энергии накачки 15-20 мкДж (интенсивности 200-300 ГВт/см²), что примерно в 2 раза больше, чем для Si-LiNbO₃-K8 структуры. Это объясняется однонаправленным излучением терагерцовых волн без потерь в подложке, а также оптимальным выбором знака чирпа. Максимальный наклон линейного участка наблюдается для лазерных

импульсов с отрицательным чирпом и длительностью 100-150 фс (см. также Рисунок 3.13(а)). Во всем диапазоне энергий эффективность для отрицательного чирпа превышает эффективность для положительного чирпа (см. незакрашенные и закрашенные кружки на Рисунке 3.12(б)).

Более детальное влияние длительности чирпованного импульса на эффективность преобразования показано на Рисунке 3.13. При низкой энергии накачки (Рисунок 3.13(а)) для положительного чирпа эффективность монотонно уменьшается с увеличением длительности импульса, тогда как для отрицательного чирпа наблюдается рост эффективности на 30-40 % около 100 фс с последующим монотонным уменьшением. В интервале длительностей 100-400 фс эффективность для отрицательного чирпа примерно в два раза выше, чем для положительного чирпа при той же длительности импульса. При высокой энергии накачки (Рисунок 3.13(б)) эффективность практически не зависит от знака чирпа и длительности импульса до 150 фс, а для более длинных импульсов монотонно уменьшается независимо от знака чирпа.

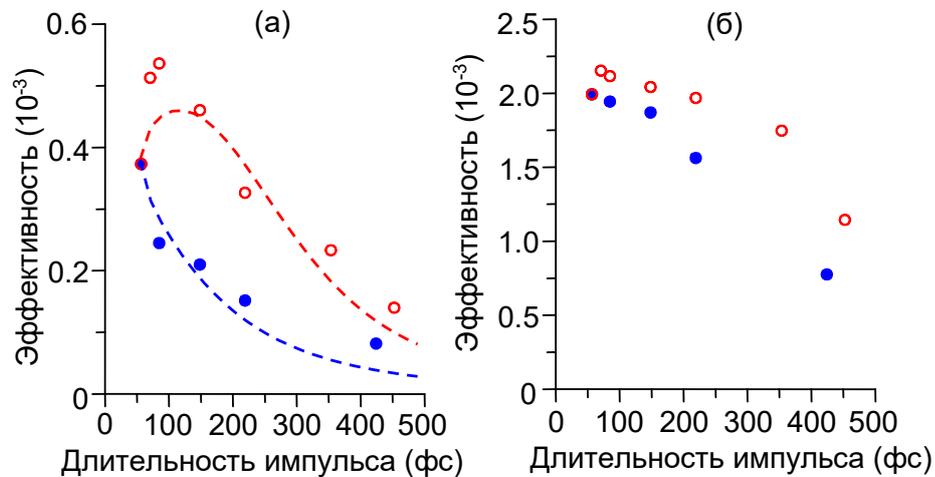


Рисунок 3.13. Эффективность оптико-терагерцовой конверсии в зависимости от длительности лазерного импульса (τ_{FWHM}) с положительным (заполненные кружочки) и отрицательным (пустые кружочки) чирпами при энергиях лазерного импульса (а) 2 мкДж и (б) 18 мкДж. Пунктирные кривые – теоретические расчеты.

Для объяснения зависимостей на Рисунке 3.13(а) можно использовать теорию, приведенную в п. 3.1 для симметричной Si-LiNbO₃-Si структуры (несимметричность исследуемой структуры не влияет существенно на энергию излучения). Из выражений (3.23), (3.24) следует, что энергия терагерцового излучения, излучаемая с единицы длины

слоя LiNbO_3 , определяется как $W_l \sim (\tau^2 + (a\delta/2.4c)^2)^{-3/2}$. Интегрирование W_l по длине слоя при учёте изменения длительности импульса τ вследствие материальной дисперсии в LiNbO_3 (волноводной дисперсией можно пренебречь) позволяет получить кривые на Рисунке 3.13(а) для разных знаков чирпа. Четко видно, что для отрицательного чирпа (верхняя кривая) максимум эффективности наблюдается около 100 фс, а для положительного чирпа эффективность монотонно уменьшается с ростом τ , что хорошо согласуется с экспериментальными результатами. Физически увеличение энергии терагерцового излучения можно объяснить уменьшением длительности импульса с отрицательным чирпом при распространении в среде с нормальной дисперсией.

Также в данном эксперименте было исследовано влияние чирпа оптического импульса на спектр терагерцового излучения. Было обнаружено, что высокочастотные спектральные компоненты терагерцового излучения подавляются при длительности импульса более 200 фс для обоих знаков чирпа. В результате генерируемый спектр приобретал более равномерную форму с одним доминирующим пиком, что может быть предпочтительным для некоторых приложений. Для импульсов короче 200 фс положительно чирпированные оптические импульсы генерировали высокочастотные терагерцовые компоненты с меньшей эффективностью по сравнению с отрицательно чирпированными импульсами (см. вставку на Рисунке 3.12(б)). С физической точки зрения оба эффекта обусловлены сужением спектральной полосы нелинейного терагерцового источника ($P^{NL}(\omega)$) с увеличением длительности лазерного импульса.

Рассмотрим теперь влияние длины волны накачки на генерацию терагерцового излучения в сэндвич-структуре. Можно заметить, что, если групповой индекс оптического излучения в нелинейной сердцевине сэндвич-структуры заметно отличается от терагерцового показателя преломления (как в случае LiNbO_3), эффективность черенковского излучения слабо зависит от длины волны накачки (см. формулу (3.23)). С другой стороны, варьирование длины накачки может существенно влиять на эффект насыщения, прежде всего из-за изменения порядка многофотонного поглощения. Так, с увеличением длины волны можно ожидать уменьшение многофотонного поглощения из-за уменьшения энергии кванта, и, как следствие, повышение эффективности конверсии.

Для проверки этого предположения был проведен эксперимент с использованием оптического параметрического усилителя (ОПА) с перестраиваемой длиной волны от 1300 до 2100 нм. Для исследования использовалась Si- LiNbO_3 сэндвич-структура с

толщиной сердечника 40 мкм. Излучение от ОРА или непосредственно от титан-сапфирового лазера фокусировалось на образец цилиндрической линзой с фокусным расстоянием 40 мм для излучения ОРА или 100 мм для излучения титан-сапфирового лазера. Длительность импульсов излучения ОРА примерно равнялась длительности возбуждающего титан-сапфирового лазера и составляла около 60 фс. Профиль оптического пучка и оптическая мощность на выходной грани слоя LiNbO_3 контролировались с помощью CCD камеры и измерителя мощности. Энергия терагерцового излучения измерялась ячейкой Голлея. Для блокировки оптического излучения использовались кремниевая пластина и специальный оптический фильтр (Tydex). Также проводились измерения энергетического спектра терагерцового излучения. Для этого использовались терагерцовые полосовые фильтры (с шириной полосы около 10% от центральной частоты фильтра), которые устанавливались перед ячейкой Голея.

На Рисунке 3.14 показана эффективность оптико-терагерцового преобразования в зависимости от энергии импульса накачки (на единицу длины фокальной линии вдоль оси u , см. Рисунок 3.1(a)) при различных центральных длинах волн накачки (пересчет энергии на единицу длины структуры обусловлен разными размерами оптического пучка для 800 нм и более длинных волн). Верхняя шкала на Рисунке 3.14 показывает соответствующие значения интенсивности падающей накачки, которые были существенно ниже порога повреждения для LiNbO_3 [156], [157]. Видно, что наклон начального линейного участка кривых немного меньше для более длинных волн. Это можно объяснить уменьшением нелинейного коэффициента $|d_{33}|$ при увеличении длины волны [158], [159], [160]. Для длины волны накачки 800 нм эффективность насыщается на уровне $\sim 0,4\%$ при энергии импульса накачки (на единицу длины) ~ 50 мкДж/см (или ~ 20 мкДж полной энергии импульса), что согласуется с предыдущими экспериментами. Для более длинноволновой накачки, эффективность насыщается при больших энергиях накачки на единицу длины и достигает более высоких максимальных значений. В частности, эффективность до $1,2\%$ достигается при энергии импульса ~ 300 мкДж/см (или ~ 30 мкДж) для накачки на 2100 нм. Размещение металлической пластины на свободной поверхности слоя LiNbO_3 (противоположной Si призме), позволяет увеличить эффективность примерно на 10% (звездочки на Рисунке 3.14) в согласии с описанным ранее экспериментом при накачке на длине волны 800 нм.

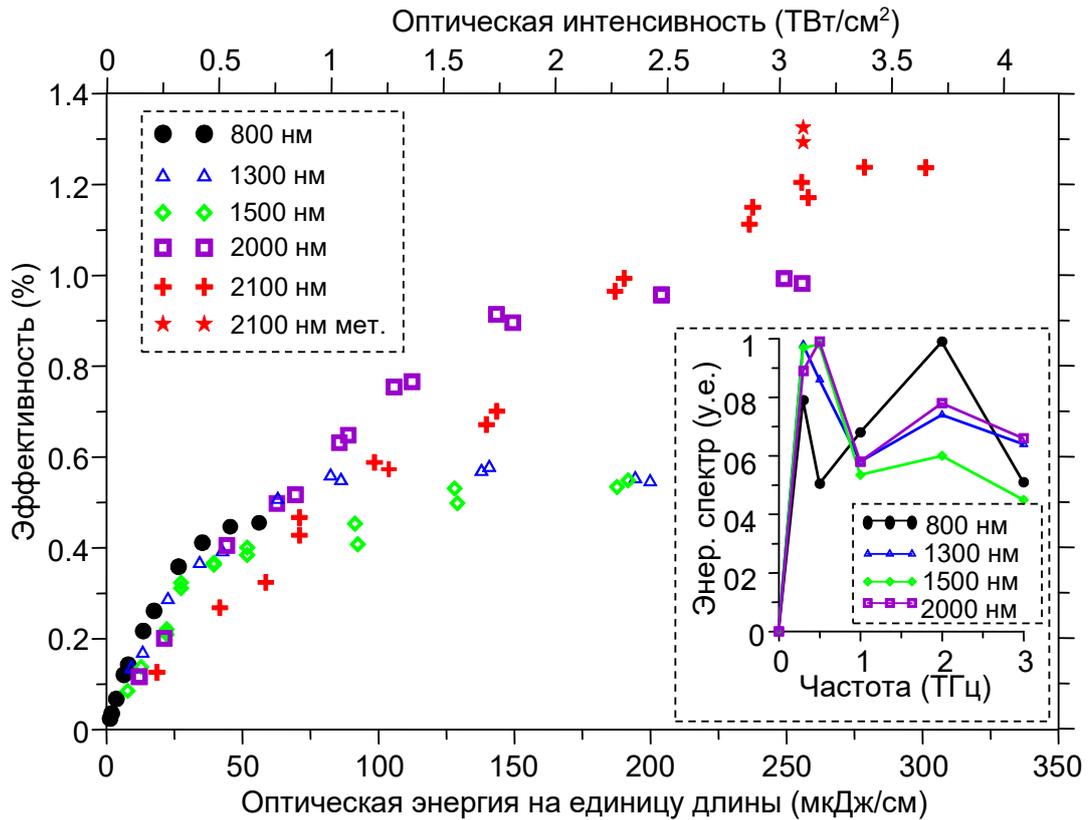


Рисунок 3.14. Эффективность оптико-терагерцовой конверсии в Si-LiNbO₃ структуре ($a = 40$ мкм) в зависимости от энергии лазерного импульса на единицу длины (вдоль оси y , см. Рисунок 3.1) при различных длинах волн оптической накачки (указаны на графике). Звездочки (при 2100 нм) получены при наличии металлической подложки. На верхней шкале графика отложена интенсивность лазерного импульса, падающего на слой LiNbO₃. Во вставке показаны энергетические спектры для разных длин волн оптической накачки.

Рисунок 3.15 подтверждает причину насыщения эффективности нелинейными искажениями оптической накачки из-за самовоздействия и многофотонного поглощения в LiNbO₃. Рисунок 3.15(а) демонстрирует корреляцию между насыщением эффективности преобразования и изгибом кривой зависимости прошедшей оптической энергии от падающей (при длине волны накачки 1500 нм). И насыщение, и изгиб происходят при ~ 100 мкДж/см. Эта корреляция указывает, что многофотонное поглощение (а именно, 5-фотонное поглощение для 1500 нм) и, возможно, другие потери, связанные с нелинейными искажениями оптического пучка в слое LiNbO₃, действительно играют роль в насыщении эффективности. Рисунки 3.15(б-д) показывают, что оптический пучок действительно испытывает сильные нелинейные искажения в слое LiNbO₃ при

высоких энергиях накачки. При низкой энергии (Рисунок 3.15(б)) пучок имеет ширину ~ 20 мкм, и близкое к основной моде планарного волновода поперечное распределение. При повышении энергии формируются периодические «горячие области» вдоль оси y (Рисунок 3.15(в)). Присутствие горячих пятен в профиле пучка является следствием нелинейных эффектов, таких как самофокусировка и фазовая самомодуляция. Период модуляции 50-60 мкм согласуется с периодом максимального инкремента неустойчивости плоской волны ~ 50 мкм для интенсивности 200 ГВт/см² [150], соответствующий падающей энергии накачки ~ 30 мкДж/см. При более высокой энергии накачки (Рисунки 3.15(г,д)) оптический пучок заполняет всю апертуру слоя LiNbO₃. Это указывает на возбуждение более высоких мод плоского волновода.

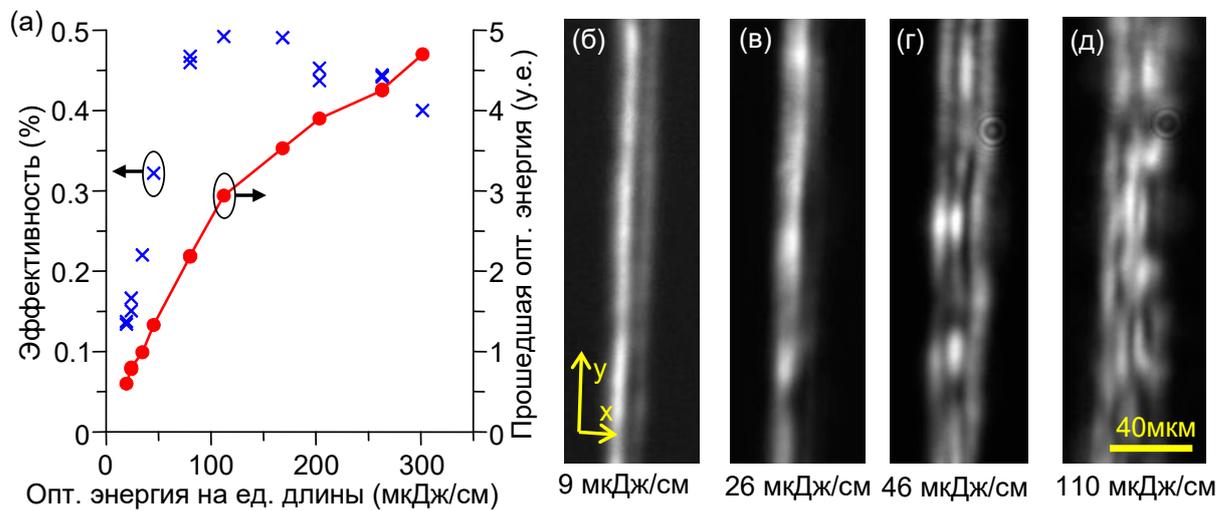


Рисунок 3.15. (а) Эффективность оптико-терагерцовой конверсии (крестики) и прошедшая оптическая энергия через слой LiNbO₃ (кружочки) в зависимости от падающей энергии лазерного импульса на единицу длины (вдоль оси y). (б-д) Фотографии оптического пучка на выходной грани слоя LiNbO₃ при различных энергиях лазерного импульса. Данные для Si-LiNbO₃ структуры с $a = 40$ мкм и длине волны оптической накачки 1500 нм.

Во вставке на Рисунке 3.14 показаны энергетические спектры терагерцового излучения, измеренные при различных длинах волн накачки. Энергия накачки на единицу длины была выбрана близкой к насыщению (30 мкДж/см для 800 нм, 90 мкДж/см для 1300 нм, 220 мкДж/см для 1500 нм и 200 мкДж/см для 2000 нм). Для всех длин волн спектры простираются от $\sim 0,2$ до ~ 3 ТГц. Присутствие двух пиков в целом согласуется со

спектром поля, измеренным методом электрооптического стробирования для накачки на 800 нм (Рисунок 3.11(а)). Соотношение спектральных пиков различается для 800 нм и более длинных волн (1300-2000 нм). Для 800 нм основной пик находится на ~ 2 ТГц. Для более длинных волн основные пики расположены на $\sim 0,5$ ТГц; также присутствуют пики на ~ 2 ТГц, но они менее выражены. Уменьшение величины высокочастотного пика можно объяснить уменьшением амплитуды дополнительного источника терагерцового излучения – всплеска тока, формируемого при ускорении фотогенерируемых (за счет многофотонного поглощения накачки) носителей в выпрямленном поле лазерного импульса (обсуждение этого эффекта приведено в конце данного параграфа). Действительно, при более длинноволновой накачке увеличивается степень многофотонной ионизации, и концентрация носителей уменьшается. Это приводит к уменьшению величины индуцированного тока.

Резюмируя основные результаты проведенных выше исследований можно сказать, что Si-LiNbO₃ сэндвич-структура является довольно эффективным преобразователем оптического излучения в терагерцовое. При накачке излучением с длиной волны около 1 мкм эффективность конверсии достигает 0,2-0,4 % (в зависимости от параметров лазерного импульса), что сравнимо или даже превышает эффективность конверсии в призме LiNbO₃ с применением скошенных лазерных импульсов (см. главу 2). При использовании стандартных оптических пучков размером порядка 5 мм, для достижения такой высокой эффективности достаточно оптической накачки с энергией в импульсе всего несколько десятков микроджоулей. С одной стороны, это потенциально позволяет использовать лазерные источники с мкДж уровнем энергии и высокой (на уровне сотни кГц) частотой следования импульсов, например, фемтосекундные иттербиевые лазеры со средней мощностью несколько десятков или сотен ватт [161]. На основе таких лазеров могут быть созданы терагерцовые источники со средней мощностью более 100 мВт. С другой стороны, небольшая энергия накачки ограничивает энергию генерируемого терагерцового излучения и, как следствие, напряженность терагерцового поля.

Для увеличения энергии терагерцовых импульсов могут быть использованы широкие сэндвич-структуры (удлиненные вдоль оси y , см., например, Рисунок 3.7(в)). Несмотря на кажущуюся простоту данного решения, в техническом и практическом плане возникают дополнительные вопросы, связанные с изготовлением широкомасштабной сэндвич-структуры, качества фокусировки лазерного излучения, коллимации и

фокусировки терагерцового излучения. Для решения этих вопросов была изготовлена широкомасштабная Si-LiNbO₃-SiO₂ сэндвич-структура со следующими параметрами: ширина (вдоль оси *y*) 50 мм, длина структуры 25 мм, толщина слоя LiNbO₃ 50 мкм, подложка – плавненный кварц (SiO₂) (см. вставку на Рисунке 3.16(a)). Некоторая особенность данной структуры состояла в малой, около 1-2 мкм, толщине клеевого слоя между LiNbO₃ и Si призмой. В исследованных ранее Si-LiNbO₃ структурах толщина клеевого слоя составляла 5-10 мкм, что связано с довольно большой вязкостью используемого оптического клея ОК72 ФТ15. Для изготовления широкомасштабной сэндвич-структуры был использован фотополимеризуемый клей (60-L, фирма Спектр) с меньшей вязкостью, что позволило добиться меньшей толщины клея. Как будет показано ниже, малая толщина клеевого слоя важна для генерации высокочастотных компонент терагерцового спектра.

Для накачки широкомасштабной Si-LiNbO₃-SiO₂ сэндвич структуры использовался титан-сапфировый лазер Astrella, Coherent (800 нм, 60 фс, 5 мДж, 1 кГц). Пучок накачки (с начальным диаметром 6,7 мм) расширялся в 6 раз в направлении оси *y* с помощью телескопа из цилиндрических линз, а затем фокусировался в ортогональном направлении (вдоль оси *x*) до приблизительно 20 мкм цилиндрической линзой с фокусным расстоянием 30 см. В результате на входной грани слоя LiNbO₃ создавался оптический пучок в виде линии с размерами ~ 4 см × 20 мкм. Энергия терагерцового излучения измерялась пиродетектором (Gentec), электрооптическое детектирование теагерцового поля проводилось с помощью кристалла GaP толщиной 50 мкм.

На Рисунке 3.16(a) приведена зависимость энергии терагерцового излучения от энергии оптической накачки при разных длительностях оптического импульса (чирп растянутых импульсов выбран отрицательным в соответствии с предыдущими исследованиями). Эффективность конверсии (не показана на рисунке) для всех кривых демонстрируют в начале линейный рост в области низких энергий, за которым, при энергиях ~100-200 мкДж (в зависимости от длительности импульса), следует насыщение на уровне ~0,2-0,25%. Таким образом, можно сказать, что использование широких сэндвич-структур (шириной 50 мм) позволяет добиться таких же высоких эффективностей, что и в сэндвич-структурах стандартных размеров (см. Рисунки 3.12(б) и 3.14). Максимальная терагерцовая энергия достигает значения 1,2 мкДж при энергии импульса накачки около 600 мкДж и длительности 450 фс. Заметим, что данная величина

генерируемой энергии сравнима с энергией, генерируемой в традиционной схеме с применением скошенных оптических импульсов титан-сапфирового лазера при энергии накачки 1-2 мДж (см. Рисунок 2.29(а,б) в главе 2, а также работы [119], [154]).

Рисунок 3.16(б) демонстрирует падение коэффициента прохождения накачки в 3-4 раза с увеличением энергии лазерных импульсов из-за трех-фотонного поглощения. Столь сильное, по сравнению с Рисунок 3.15(а), падение обусловлено меньшим порядком многофотонного поглощения из-за меньшей длины волны накачки (800 нм на Рисунок 3.16(б) по сравнению с 1500 нм на Рисунок 3.15(а)), а также большей длиной структуры (25 мм по сравнению с 10 мм).

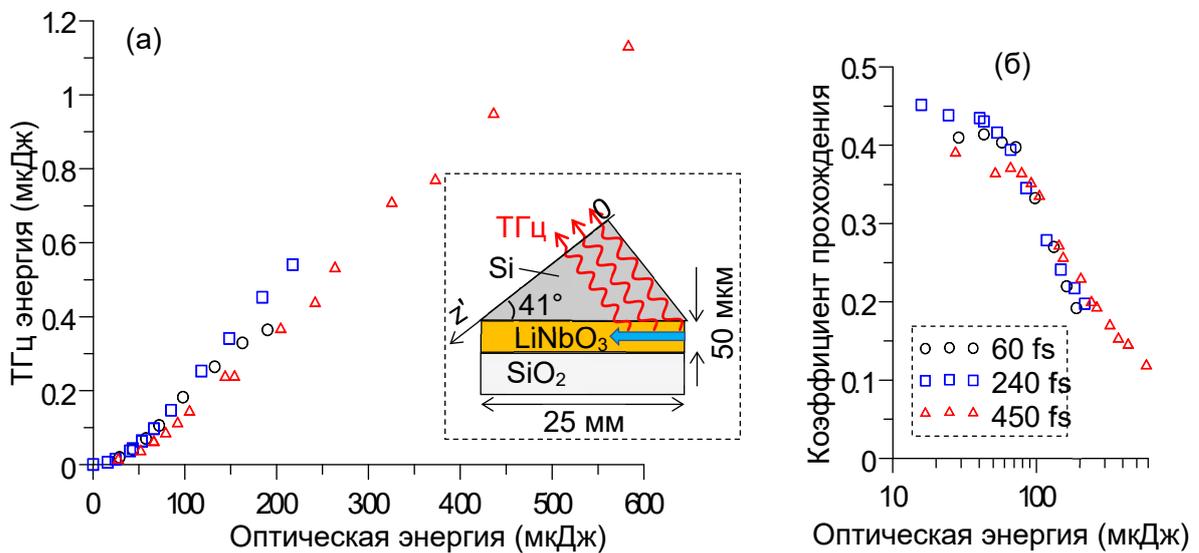


Рисунок 3.16. (а) Энергия генерируемых терагерцовых импульсов и (б) коэффициент прохождения оптического излучения в зависимости от энергии оптических импульсов с длительностями 60 фс (кружочки), 240 фс(квадратики), 450 фс (треугольники) (последние два варианта имеют отрицательный chirp). Во вставке на Рисунке (а) показана геометрия широкомасштабной Si-LiNbO₃-SiO₂ сэндвич-структуры.

Трёхфотонное поглощение влияет не только на эффективность конверсии, но и на распределение энергии по сечению терагерцового пучка. На Рисунке 3.17 приведены профили терагерцового пучка, измеренные с помощью щели шириной 1 мм, перемещаемой в направлении вдоль выходной грани кремниевой призмы (вдоль оси z' , см. вставку на Рисунке 3.16(а)). При энергии накачки 50 мкДж, что ниже порога

насыщения 100-200 мкДж, спектрально-ограниченный (60 фс) и умеренно chirпированный (150 фс) лазерные импульсы генерируют терагерцовое излучение в основном с первого сантиметра пути их распространения в слое LiNbO_3 (из-за наклона оси z' относительно оси z вдоль которой происходит распространение накачки, длины связаны соотношением $z' = \cos(41^\circ)z = 0.75z$). Более сильная начальная частотная модуляция импульса приводит к перераспределению терагерцовой эмиссии по длине пути. Эмиссия распределена почти равномерно (с некоторыми колебаниями) при длительности 300 фс и сконцентрирована на конечном участке пути при длительности 600 фс. Перераспределение объясняется дисперсионным сжатием сильно chirпированных лазерных импульсов при их распространении в слое LiNbO_3 . Действительно, в LiNbO_3 (с дисперсией групповой скорости $k_2 \approx 350 \text{ фс}^2/\text{мм}$) дисперсионная длина оценивается $L_d \approx 4 \text{ мм}$ при длительности лазерного импульса 60 фс. Это означает, что chirпированный импульс длительностью 600 фс должен испытывать сжатие на расстоянии 40 мм, что превышает длину слоя LiNbO_3 . Наличие пика при $z' \approx 16 \text{ мм}$ на Рисунке 3.17(а) указывает на существенность нелинейных искажений импульса накачки вследствие фазовой самомодуляции (В-интеграл оценивается $\sim \pi$ для лазерного импульса длительностью 60 фс и энергией 50 мкДж после прохождения им расстояния L_d).

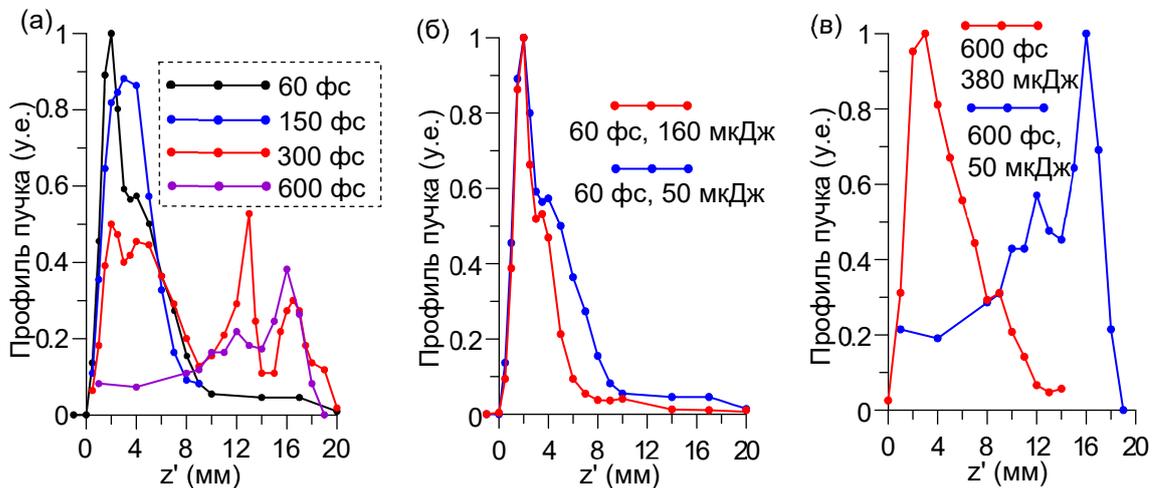


Рисунок 3.17. Профили терагерцовых пучков на выходе из кремниевой призмы при разных энергиях и длительностях лазерного импульса накачки (координата z' отсчитывается от прямого угла Si призмы вдоль ее выходной грани, см. вставку на Рисунке 3.16(а)). На рисунке (а) энергия импульса накачки равна 50 мкДж.

Увеличение энергии импульса накачки выше порога насыщения приводит к уменьшению дистанции, с которой происходит эмиссия терагерцового излучения, и, как следствие, уменьшению ширины терагерцового пучка (с 8 до 6 мм на Рисунке 3.17(б)) из-за более сильного трёхфотонного поглощения. Для сильно chirпированных импульсов (600 фс) увеличение их энергии смещает область эмиссии от задней части слоя LiNbO_3 к его передней части (Рисунок 3.17(в)). Таким образом, можно заключить, что при больших энергиях накачки, которые наиболее интересны для целей генерации сильных терагерцовых полей, терагерцовое излучение эмитируется преимущественно с первого сантиметра длины сэндвич-структуры независимо от chirпа (длительности) импульса накачки. Вследствие этого нет смысла делать сэндвич-структуру длиннее 1 см.

Накачка сэндвич-структуры широким лазерным пучком приводит к сильной эллиптичности генерируемого терагерцового пучка. Его размер вдоль оси z' составляет около 3-4 мм (по полувысоте интенсивности), тогда как размер в перпендикулярном направлении (вдоль оси y) равен примерно 30 мм (в $\sqrt{2}$ раз меньше размера пучка накачки). При фокусировке такого пучка параболическим зеркалом, расположенным вблизи выхода конвертора, образуется сильно эллиптическое (с размерами $\sim 0,15 \times 0,9$ мм²) фокальное пятно (Рисунок 3.18(а)), что нежелательно для достижения сильных терагерцовых полей. Чтобы добиться лучшей фокусировки, в эксперименте параболическое зеркало располагалось на большем расстоянии (~ 50 см) от выхода Si

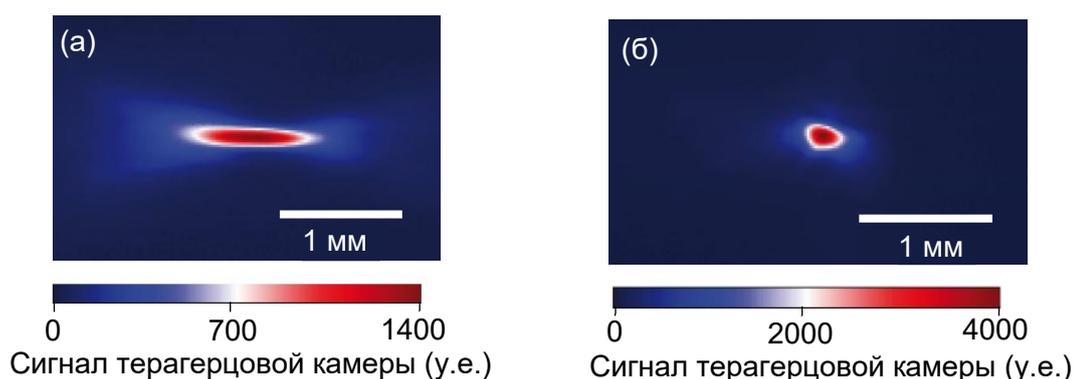


Рисунок 3.18. Распределение интенсивности терагерцового излучения в фокальной плоскости параболического зеркала, расположенного на расстояниях (а) 6 см и (б) 50 см от выходной грани кремниевой призмы. Энергия и длительность импульса накачки составляют 150 мкДж и 60 фс, соответственно.

призмы. Из-за большей дифракционной расходимости терагерцового пучка вдоль оси z' первоначально эллиптический пучок на пути к зеркалу трансформировался в пучок более круглого сечения, что позволило сфокусировать его в почти круглое пятно с размерами $\sim 0,2 \times 0,25 \text{ мм}^2$ (Рисунок 3.18(б)). Более острая фокусировка терагерцового пучка дает в 4 раза более сильный сигнал на терагерцовой камере в центре фокального пятна.

На Рисунке 3.19(а) приведена временная форма терагерцового импульса, измеренная в фокальной области внеосевой параболы при накачке Si-LiNbO₃-SiO₂ сэндвич-структуры нечирпированными лазерными импульсами с энергией 200 мкДж (во вставке показан соответствующий спектр). Видно, что пиковое терагерцовое поле достигает 500 кВ/см. Недостатком осциллограммы является наличие эхо-импульсов, возникающих вследствие многократного отражения генерируемых терагерцовых волн от границ слоя LiNbO₃ (терагерцовый показатель преломления подложки из плавленого кварца, равный 1,96, меньше группового оптического индекса 2,23, а значит одна часть черенковского клина испытывает полное внутренне отражение от границы LiNbO₃-SiO₂). Соответственно, в терагерцовом спектре присутствуют паразитные осцилляции (вставка на Рисунке 3.19(а)), которые нежелательны для спектроскопических приложений. Данные провалы могут быть минимизированы или даже полностью исключены при использовании в качестве подложки материала с терагерцовым показателем преломления близким к показателю преломления LiNbO₃ (например, теллуридного стекла, с терагерцовым показателем преломления ~ 5 [162]).

Для генерации более плавного терагерцового спектра была изготовлена Si- LiNbO₃ сэндвич-структура со слоем LiNbO₃ толщиной 500 мкм (ширина структуры составляла также 50 мм, а длина – 13 мм, см. вставку на Рисунке 3.19(б)). Для минимизации терагерцовых потерь из-за линейного поглощения, фокусировка оптической накачки осуществлялась вблизи границы LiNbO₃-Si (как показано синей стрелкой на вставке Рисунка 3.19(б)). Угол падения накачки на слой LiNbO₃ оптимизировался для максимизации энергии терагерцового излучения и составлял около 1° (относительно нормали), что согласуется с работой [163] (см. также следующий параграф). Для данной LiNbO₃-Si сэндвич-структуры терагерцовое поле приведено на Рисунке 3.19(б). Пиковое значение поля несколько меньше, чем на Рисунке 3.19(а), и достигает 370 кВ/см. Из-за большей толщины слоя LiNbO₃ первый эхо-импульс приходит с задержкой 15 пс. В результате выделения соответствующего временного окна можно исключить импульс и

получить гладкий терагерцовый спектр (вставка на Рисунке 3.19(б)). Стоит заметить, что в спектрах на Рисунке 3.19 отсутствуют узкие провалы, которые присутствовали в предыдущих измерениях (см. Рисунки 3.9 и 3.11). Это было достигнуто путем осушения воздуха (до относительной влажности 7-10%) в части экспериментальной установки, где происходила генерация и детектирование терагерцового поля.

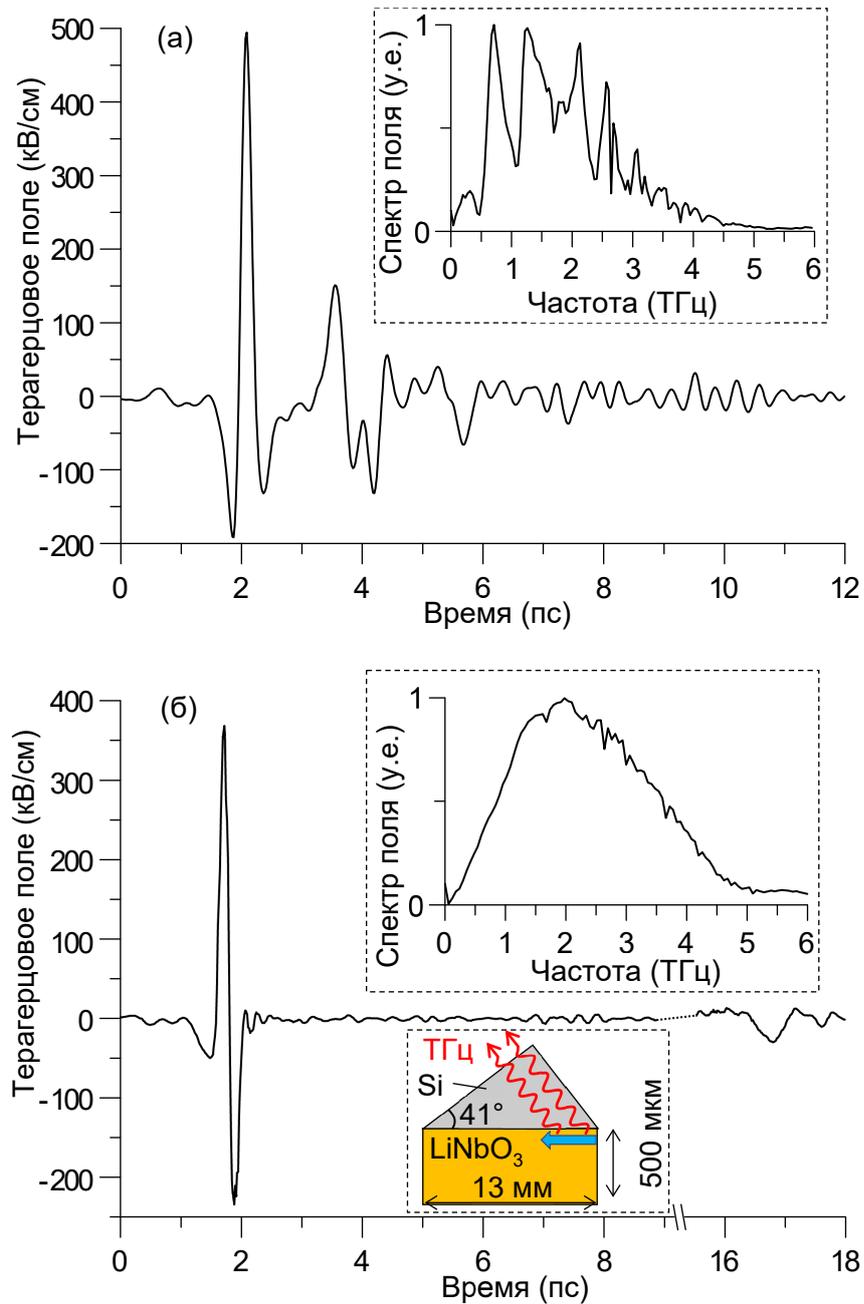


Рисунок 3.19. Осциллограммы терагерцового поля и их спектры (во вставках) для (а) Si-LiNbO₃-SiO₂ и (б) Si-LiNbO₃ широкоапертурных сэндвич-структур. Энергия и длительность импульса накачки равны соответственно 200 мкДж и 60 фс.

Сравнивая спектры на Рисунке 3.19 со спектрами, полученными на Рисунках 3.9 и 3.11(а) для рассмотренных ранее сэндвич-структур стандартных размеров, можно отметить заметное увеличение амплитуды высокочастотных компонент спектра. Это можно объяснить двумя факторами. Во-первых, из-за наличия клеевого слоя, у которого диэлектрическая проницаемость ε_g меньше n_g^2 , терагерцовое излучение испытывает частичное отражение с коэффициентом, пропорциональным фактору $\exp(-\omega d \sqrt{\varepsilon_g - n_g^2} / c)$, где d – толщина клеевого слоя. Для широкомасштабных структур с $d = 1-2$ мкм, данный фактор равен единице в широком диапазоне частот (свыше 10 ТГц), когда как для исследованных ранее сэндвич-структур с $d = 5-10$ мкм этот фактор уже начинает сказываться на частотах около 3 ТГц и ограничивать спектр генерации. Во-вторых, как уже было отмечено ранее при обсуждении Рисунка 3.9, одной из причин увеличения высокочастотных компонент спектра при насыщении эффективности может являться возбуждение дополнительного терагерцового источника, обусловленного ускорением выпрямленным полем лазерного импульса электронов, генерируемых при многофотонной ионизации [58]. Для более тонкого клеевого слоя этот эффект должен проявляться сильнее и его можно проверить экспериментально.

Для этого была использована Si-LiNbO₃ сэндвич-структура, показанная во вставке на Рисунке 3.19. Перед фокусировкой в данную структуру оптический пучок предварительно не расширялся, и имел сфокусированный размер 20 мкм x 6,7 мм. Часть выходящей поверхности кремниевой призмы была закрыта металлической пластиной, и только часть терагерцового пучка, генерируемая с первых 3 мм распространения накачки излучалась из структуры. Это позволило минимизировать влияния линейных эффектов дисперсионного сжатия/растяжения импульса накачки, а также возбуждения высших мод волновода из-за эффектов самовоздействия.

На Рисунке 3.20 приведены осциллограммы терагерцовых импульсов и их спектры при различных значениях энергии и знаках чирпа лазерного импульса накачки. Из Рисунков 3.20(б) и 3.20(г) видно, что терагерцовый спектр становится шире с увеличением энергии импульса накачки, причем как при положительном, так и отрицательном чирпе импульса. Это говорит о том, что возможное дисперсионное сжатие (или расширение) импульса при распространении в LiNbO₃ существенно не влияет на сам эффект. Наиболее сильно спектр уширяется при увеличении энергии импульса в интервале от 5 мкДж до 20 мкДж. При более высоких энергиях (>25 мкДж), когда

происходит насыщение эффективности, ширина спектра почти не изменяется. При энергиях < 5 мкДж спектр практически не зависит от энергии импульса накачки.

Чтобы подтвердить эффект уширения спектра были проведены дополнительные исследования. Во-первых, были проведены измерения энергии терагерцовых импульсов в узких спектральных интервалах вблизи пяти различных частот. Для этого перед пиродетектором устанавливались терагерцовые полосовые фильтры. На Рисунке 3.21(а) приведены зависимости эффективности конверсии в эти спектральные интервалы от энергии импульса накачки. Видно, что, начиная с ~ 10 мкДж, эффективность конверсии в высокочастотные интервалы вблизи 3.3 и 4 ТГц растет с увеличением энергии импульса накачки быстрее, чем в низкочастотные интервалы вблизи 0.5 и 1 ТГц. Это говорит об увеличении ширины спектра излучения. Полная эффективность генерации (без полосовых фильтров и металлического экрана) составила в насыщении около 0.25% при энергии накачке 30 мкДж.

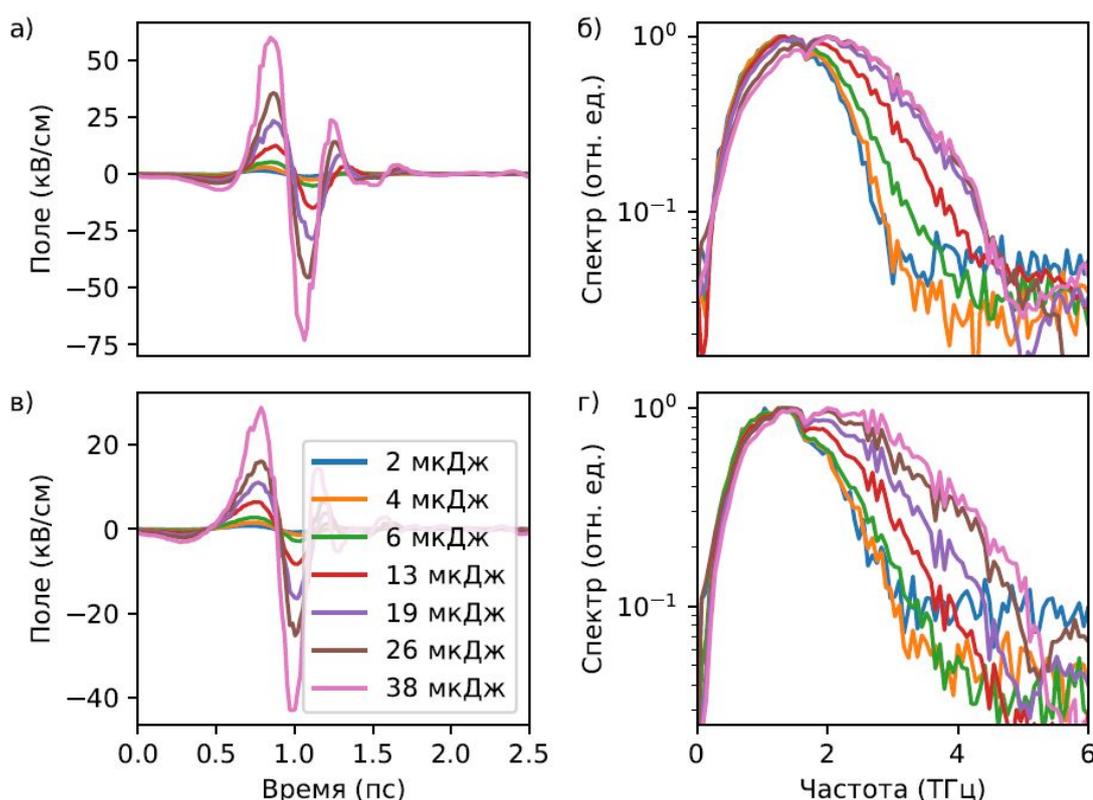


Рисунок 3.20. Осциллограммы и соответствующие им спектры терагерцового импульса при различных энергиях накачки (указаны на рисунке). На рисунках (а) и (б) длительность лазерного импульса равна 300 фс, чирп отрицательный. На рисунках (в) и (г) длительность лазерного импульса равна 220 фс, чирп положительный.

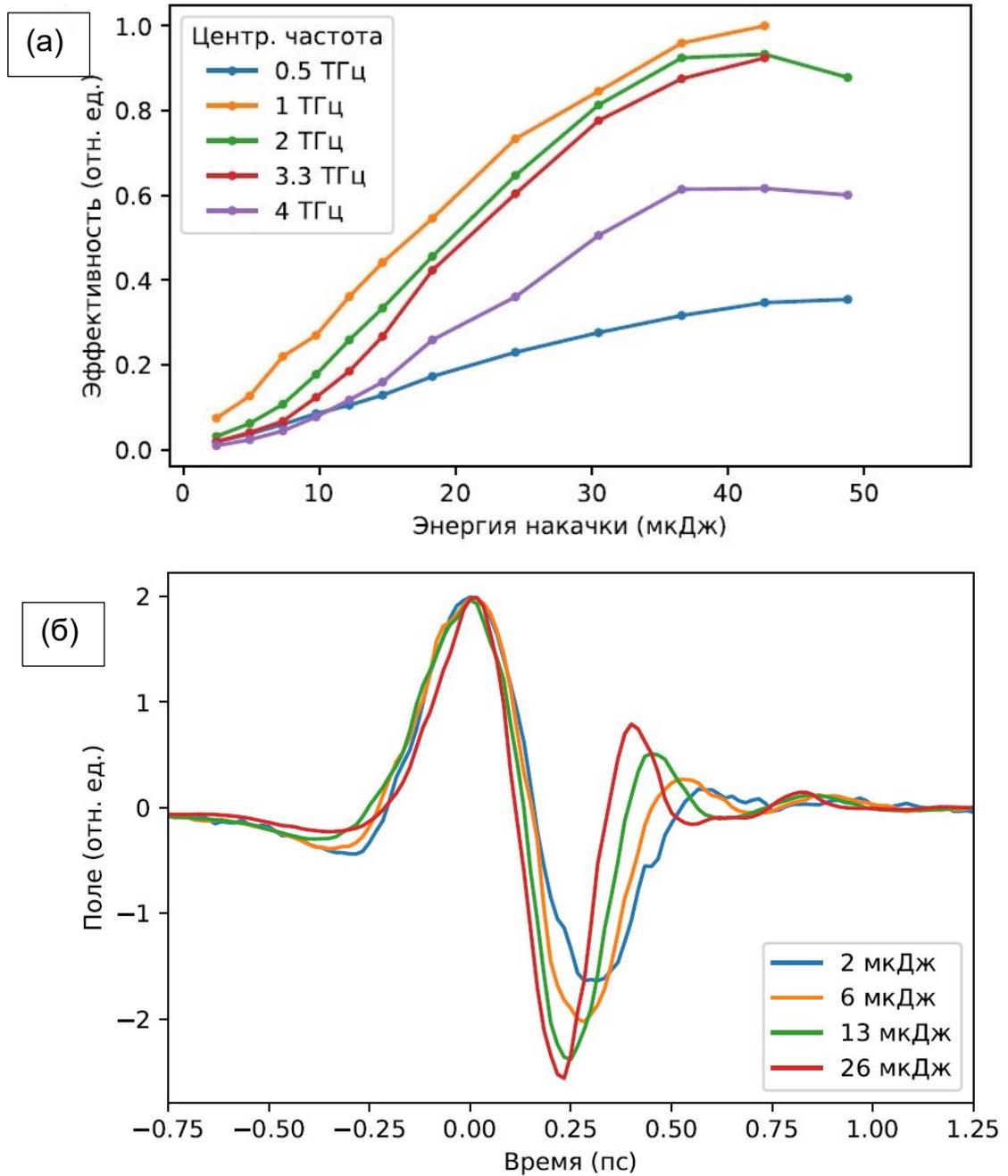


Рисунок 3.21. (а) Эффективность конверсии в узкие спектральные интервалы вблизи указанных на рисунке частот. (б) Нормированные осциллограммы при различных значениях энергии импульса накачки.

Во-вторых, были более детально проанализированы временные формы терагерцовых импульсов. Из нормированных осциллограмм, показанных на Рисунке 3.21(б), видно, что первые два полупериода терагерцового импульса почти не изменяются при увеличении энергии лазерной накачки, тогда как третий полупериод, следующий на основной максимумом, заметно укорачивается. Это согласуется с теоретической моделью излучения дополнительного токового источника [58]. Действительно, ток

свободных носителей под действием выпрямленного поля лазерного импульса появляется с некоторой задержкой по отношению к началу лазерного импульса [58], поэтому вызванная излучением от этого тока модификация терагерцового импульса не должна затрагивать его переднюю часть, которая генерируется исключительно нелинейной поляризацией, что и наблюдается на Рисунке 3.21(б).

3.3 Оптико-терагерцовая конверсия в кристалле DKDP с сильным терагерцовым поглощением

Важной особенностью черенковского механизма генерации терагерцового излучения является боковой вывод генерируемого излучения. При распространении накачки вблизи боковой границы кристалла и наличии выводящей призмы с малым терагерцовым поглощением, такой боковой вывод минимизирует поглощение терагерцового излучения, что расширяет круг возможных электрооптических кристаллов-генераторов. В качестве таких кристаллов-генераторов могут быть использованы кристаллы дигидрофосфата калия (KH_2PO_4 или KDP) и дейтерированного дигидрофосфата калия (KD_2PO_4 или DKDP), которые широко используются в нелинейной оптике в качестве генераторов второй и третьей гармоник лазерного излучения. Высокий порог повреждения и возможность изготовления крупногабаритных кристаллов KDP и DKDP делает их перспективными для использования в высокомошных лазерных системах (например, для параметрического усиления в суб-петаваттных фемтосекундных лазерных системах [164]). Однако потенциал кристаллов KDP и DKDP в качестве генераторов терагерцового излучения до последнего времени оставался неисследованным, несмотря на довольно высокую нелинейность второго порядка этих кристаллов. Наибольшие компоненты их электрооптических тензоров, а именно $r_{63} \sim 11$ пм/В и 26 пм/В для KDP и DKDP, соответственно, сопоставимы с электрооптическим коэффициентом $r_{33} \sim 31$ пм/В кристалла LiNbO_3 [150]. (Благодаря этому кристаллы KDP и DKDP наряду с LiNbO_3 широко используются в ячейках Погкельса.) Ещё одно преимущество кристаллов KDP и DKDP для генерации терагерцового излучения является их широкая запрещённая зона (~ 7 эВ, против 3,8 эВ у LiNbO_3). Широкая запрещённая зона подавляет многофотонное поглощение низких порядков, предотвращая истощение накачки. Таким образом, потенциально можно

использовать накачку высокоинтенсивными (на уровне ТВт/см²) лазерными импульсами, что благоприятно для эффективного оптического выпрямления.

Недостатки кристаллов KDP и DKDP как потенциальных генераторов терагерцового излучения аналогичны недостаткам LiNbO₃ и включают сильное различие в скоростях оптической накачки и терагерцового излучения, а также сильное поглощение в терагерцовом диапазоне. Использование техники скошенных лазерных импульсов (как в случае LiNbO₃) является не эффективным для кристаллов KDP и DKDP из-за существенно большего (на порядок) терагерцового поглощения в этих кристаллах (~200 см⁻¹ при 1 ТГц [165]) по сравнению с LiNbO₃ (~20 см⁻¹ при 1 ТГц [50]). В тоже время использование схемы черенковского механизма излучения с поверхностным выводом позволяет минимизировать поглощение и тем самым максимально раскрыть потенциал применения данных кристаллов для генерации терагерцового излучения.

Для исследования генерации терагерцового излучения в кристалле DKDP была использована экспериментальная схема, приведенная на Рисунке 3.22. Нелинейный тензор кристалла DKDP отличается от тензора кристалла LiNbO₃, в связи с этим оптимальная ориентация кристаллографических осей, а также поляризация накачки имеют другую геометрию. Поскольку DKDP имеет точечную группу симметрии $\bar{4}2m$, его нелинейной тензор второго порядка d_{ij} содержит только три ненулевых компоненты: d_{14} , $d_{25} = d_{14}$ и d_{36} . Нелинейные коэффициенты d_{14} и d_{36} чаще всего измеряются в экспериментах по генерации второй гармоники и неизвестны для оптического выпрямления на терагерцовых частотах. В низкочастотном пределе коэффициенты могут быть вычислены через электрооптические коэффициенты r_{41} и r_{63} как [166], [167]:

$$d_{kl}^{(0)} = -(n_i^2 n_j^2 / 4) r_{lk}, \quad (3.34)$$

где n_i и n_j - главные показатели преломления (обыкновенный или необыкновенный волн), а индексы i, j связаны с сокращённым индексом $l = l\{i, j\}$ способом, приведенным в книге [150].

На частотах ниже пьезоэлектрического резонанса, который находится в МГц диапазоне частот [168], $r_{63} \approx 26$ пм/В [169], [170] почти в три раза больше $r_{41} \approx 9$ пм/В [169]. Предполагая, что r_{63} значительно превышает r_{41} и на терагерцовых частотах, можно ожидать, что коэффициент нелинейного оптического выпрямления d_{36}^{OR} существенно больше d_{14}^{OR} по абсолютной величине. Следовательно, целесообразно

осуществлять оптическое выпрямление с использованием коэффициента d_{36}^{OR} . Это обеспечивается кристаллографической ориентацией, показанной на Рисунке 3.22: кристалл DKDP вырезан таким образом, что его оптическая ось $[001]$ сонаправлена с осью z , а две другие оси сонаправлены с осями x и y , поляризация лазерного излучения (распространяющегося вдоль оси z) наклонена под углом θ к оси y . Компоненты огибающей оптического поля E_x и E_y индуцируют в кристалле нелинейную поляризацию $P_z^{\text{NL}} = 2d_{36}^{\text{OR}} E_x E_y$ с амплитудным значением

$$p_z = d_{36}^{\text{OR}} E_0^2 \sin 2\theta, \quad (3.35)$$

где E_0 – максимальное значение огибающей оптического поля. Согласно уравнению (3.35), нелинейная поляризация достигает максимума при $\theta = 45^\circ$.

Оптический пучок в кристалле DKDP распространяется как обыкновенная волна (вырожденная конфигурация) с $n_g = n_g^o = 1,52$ и генерирует необыкновенные терагерцовые волны с $n_{\text{THz}} = 2,48$ [165]. Множитель $\delta_c^2/\epsilon_c = 1 - n_g^2/n_{\text{THz}}^2$ в уравнении (3.23) составляет $\approx 0,6$, то есть сравним с единицей. Таким образом, в DKDP продольная нелинейная поляризация p_z может служить эффективным источником терагерцового излучения, аналогично p_y в LiNbO_3 . Половинный угол раствора черенковского клина в кристалле DKDP, определяется как $\gamma_{\text{DKDP}} = \arcsin(n_g/n_{\text{THz}}) \approx 38^\circ$. После преломления на границе DKDP-Si угол черенковского конуса изменяется до $\gamma_{\text{Si}} = \arcsin(n_g/n_{\text{Si}}) \approx 26^\circ$, где $n_{\text{Si}} = 3,418$ – показатель преломления кремния в терагерцовом диапазоне. Угол при вершине кремниевой призмы может быть выбран $\psi = 26^\circ$ для обеспечения нормального падения терагерцового излучения на выходную грань. Альтернативные значения $\psi = 10^\circ$ и $\psi = 42^\circ$ позволяют минимизировать френелевские потери за счёт падения под углом Брюстера.

В эксперименте использовался кристалл DKDP размерами $8 \text{ мм} \times 16 \text{ мм} \times 13,5 \text{ мм}$ вдоль осей x, y, z , соответственно. Кремниевая призма с углом при вершине 24° , близким к рассчитанному значению $\psi = 26^\circ$, была прижата к боковой поверхности кристалла. Вариант с нормальным падением терагерцового излучения на выходную грань призмы был выбран для упрощения юстировки установки. В качестве источника оптического излучения использовалась лазерная система Astrella, Coherent (800 нм, 1 кГц, 60 фс, 5 мДж). Пучок оптической накачки фокусировался на входную грань кристалла DKDP цилиндрической линзой с фокусным расстоянием 40 см. В результате фокусировки

формировался пучок в виде линии размером $6,7 \text{ мм} \times 30 \text{ мкм}$. Оптический пучок вводился в кристалл вблизи границы раздела DKDP-Si под небольшим углом α к нормали входной грани. Из-за некоторой неровности контактирующих поверхностей кристалла и призмы между ними оставался воздушный зазор толщиной в несколько микрон. Этот зазор обеспечивал полное внутреннее отражение лазерного пучка на границе раздела, предотвращая генерацию свободных носителей в кремнии и их экранирующее влияние на терагерцовое излучение. Угол поляризации θ пучка накачки изменялся с помощью полуволновой пластины перед кристаллом.

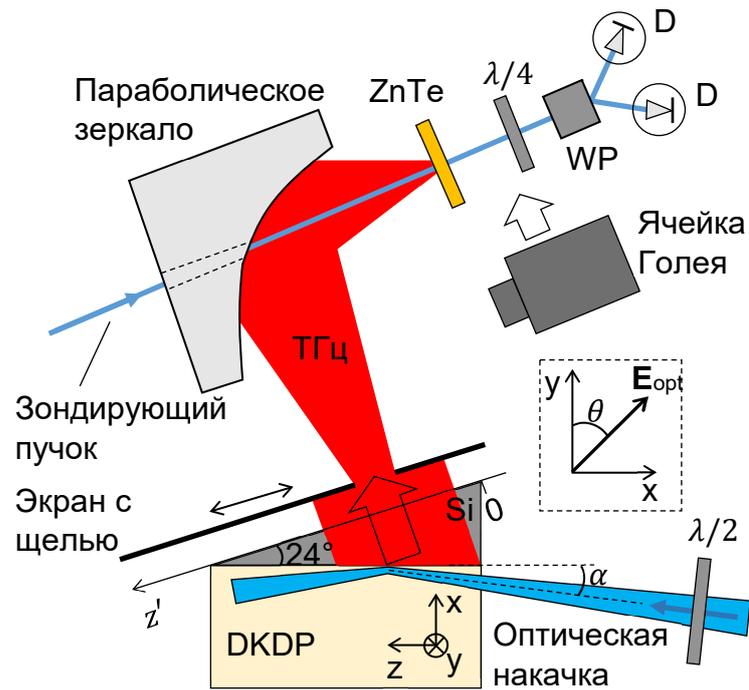


Рисунок 3.22. Схема эксперимента для исследования генерации терагерцового излучения в кристалле DKDP.

Терагерцовое излучение, выходящее из кремниевой призмы, собиралось параболическим зеркалом (фокусное расстояние 5 см), расположенным на расстоянии ~ 12 см от выходной грани призмы, и фокусировалось на детекторный кристалл ZnTe толщиной 1 мм. Для измерения временной формы терагерцовых импульсов использовалась стандартная эллипсометрическая схема, включающая четвертьволновую пластину ($\lambda/4$), призму Волластона (WP) и пару фотодиодов (D). Зондирующие оптические импульсы падали на кристалл ZnTe через отверстие в параболическом зеркале с переменной временной задержкой. Мощность терагерцового излучения измерялась с

помощью калиброванной ячейки Голя (Tydex), установленной в позиции кристалла ZnTe. Профиль выходного терагерцового пучка (в плоскости Рисунка 3.22) измерялся путем перемещения щели шириной 1 мм вдоль выходной грани кремниевой призмы (в направлении z').

На Рисунке 3.23(a) представлены терагерцовые импульсы, генерируемые при накачке чирпированными импульсами длительностью 500 фс с отрицательным чирпом для различных углов падения α . Видно, что максимальное поле терагерцового излучения достигается при $\alpha \approx 1^\circ$ (см. также квадраты пиковых полей на Рисунке 3.23(б)). Тот же оптимальный угол следует из измерений энергии (см. Рисунок 3.23(б)). Для импульсов накачки длительностью 260 фс максимальное терагерцовое поле генерируется при несколько другом угле $\alpha \approx 1,4^\circ$.

Оптимальный угол α (с точки зрения амплитуды терагерцового поля) соответствует положению фокальной области пучка накачки в непосредственной близости от границы раздела DKDP-Si. При $\alpha \sim 1^\circ - 1,4^\circ$ угол скольжения относительно границы DKDP-Si примерно равен углу схождения сфокусированного пучка накачки ($\sim 1^\circ$). Следовательно, сходящаяся часть пучка распространяется по касательной к границе раздела DKDP-Si с фокусом в непосредственной близости от границы, а расходящаяся часть пучка испытывает полное внутреннее отражение на границе после фокуса. Это оптимальная конфигурация. При уменьшении α фокус смещается от границы, что увеличивает длину распространения терагерцового излучения в сильно поглощающем кристалле. При увеличении α фокус остается у границы, но сходящаяся и расходящая части пучка удаляются от границы, что усиливает поглощение терагерцового излучения.

Важно отметить, что приближение терагерцово-излучающей области к границе раздела DKDP-Si за счет скользящего падения должно в основном уменьшить затухание сильно поглощаемых высоких терагерцовых частот, что приводит к уширению генерируемого спектра. Это подтверждается данными на Рисунка 3.23(г). Аналогичный эффект наблюдался при генерации разностной частоты монохроматического терагерцового излучения в геометрии черенковского излучения с поверхностным выводом в кристалле LiNbO_3 , покрытом слоем SiO_2 и кремниевой призмой [163].

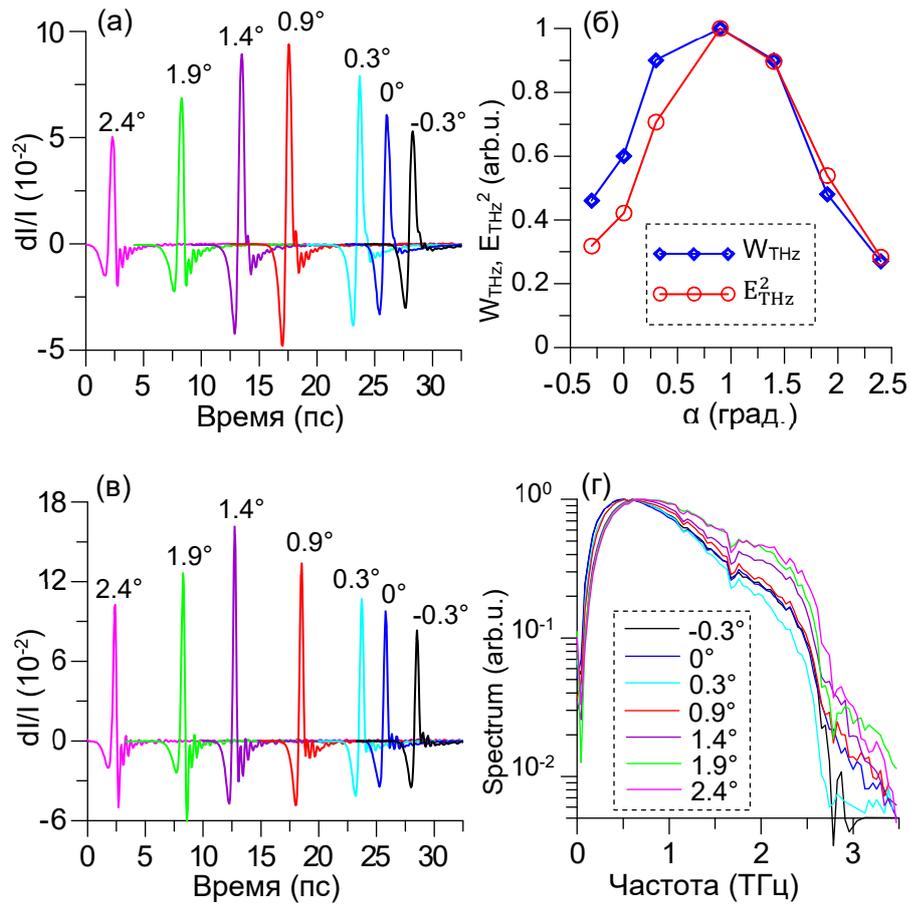


Рисунок 3.23. (а,в) Терагерцовые импульсы, генерируемые chirпированными импульсами накачки (с отрицательным chirпом) длительностью (а) 500 фс и (в) 260 фс для различных углов падения α (указаны рядом с кривыми). (б) Зависимости энергии терагерцового излучения (синие ромбы) и квадрата пикового терагерцового поля (красные круги) от угла α для импульсов накачки длительностью 500 фс. (г) Нормированные спектры терагерцового поля, соответствующие импульсам на рисунке (в). Энергия импульсов накачки составляет 230 и 170 мкДж для длительностей 500 и 260 фс, соответственно. Угол наклона плоскости поляризации накачки $\theta = 54^\circ$.

На Рисунке 3.24(а) представлены экспериментальные зависимости энергии генерированного терагерцового излучения от угла поляризации θ для накачки высокоэнергетическими (230 мкДж) и низкоэнергетическими (55 мкДж) импульсами. Для низкоэнергетической накачки зависимость хорошо согласуется с теоретической кривой, определяемой уравнением (3.35). Для высокоэнергетической накачки зависимость имеет

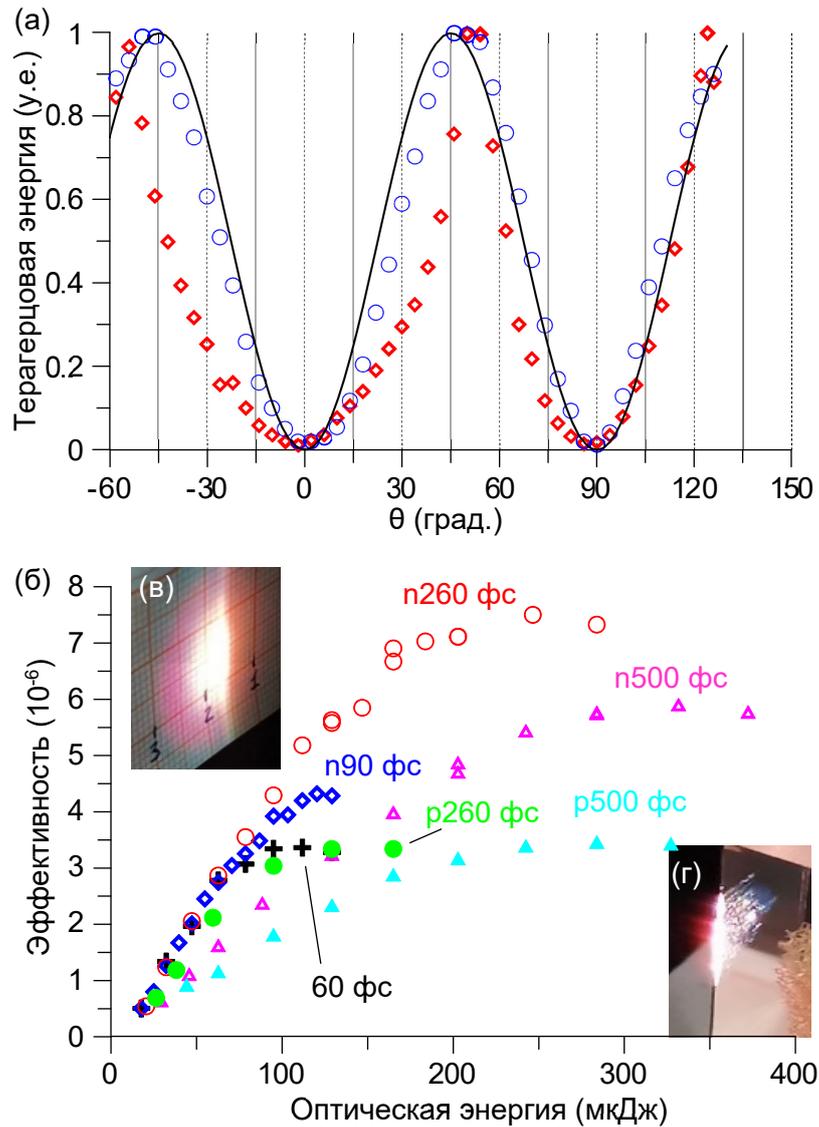


Рисунок 3.24. (а) Нормированная энергия терагерцового излучения в зависимости от угла поляризации θ оптической накачки для двух энергий импульса: 230 мкДж (красные ромбы) и 55 мкДж (синие кружки). Угол падения $\alpha = 1,4^\circ$, длительность импульса накачки 500 фс (отрицательный чирп). Сплошная линия показывает теоретическую зависимость $\sin^2 2\theta$ (см. уравнение (3.35)). (б) Эффективность преобразования в зависимости от энергии импульса накачки для $\alpha = 1,4^\circ$, $\theta = 54^\circ$ и различных длительностей импульса (указаны рядом с кривыми, с префиксами "n" и "p" для отрицательной и положительной частотной модуляции, соответственно). (в) Фотография пятна белого света на экране на расстоянии 15 см от кристалла DKDP. (г) Фотография излучения белого света с задней грани кристалла DKDP. Для (в) и (г) энергия импульса накачки составляет 250 мкДж, длительность 500 фс (отрицательный чирп).

нули при $\theta = 0^\circ$ и 90° , что полностью соответствует теории. Однако при других углах наблюдается значительное отклонение от теоретической кривой. В частности, максимум достигается при $\theta \approx 54^\circ$ вместо предсказанных уравнением (3.35) угла 45° . Возможное объяснение этого эффекта - влияние генерированного терагерцового излучения на поляризацию оптической накачки через эффект Погкельса.

На Рисунке 3.24(б) показана эффективность оптико-терагерцового преобразования от оптической энергии для различных длительностей импульсов с разным значением чирпа. Все кривые демонстрируют линейный рост в области низких энергий с последующим насыщением при более высоких энергиях. Энергия насыщения увеличивается с ростом длительности импульса накачки независимо от знака чирпа, что указывает на доминирующую роль оптической интенсивности в насыщении.

Накачка импульсами с отрицательным чирпом примерно в два раза эффективнее, чем импульсами с положительным чирпом. Это можно объяснить дисперсионным сжатием отрицательно чирпированных импульсов в кристалле. Максимальная эффективность ($\sim 7,5 \times 10^{-6}$) достигается для отрицательно чирпированных импульсов длительностью 260 фс и энергией 250 мкДж. Однако соответствующая энергия терагерцового импульса (~ 2 нДж) может быть также достигнута при использовании более длинных (~ 500 фс) импульсов накачки с энергией 350 мкДж.

Насыщение эффективности можно объяснить проявлением нелинейных эффектов высшего порядка, таких как самомодуляция фазы, самофокусировка, многофотонное поглощение и влияние генерированного терагерцового излучения на оптическую накачку. Сильно нелинейный режим распространения импульсов накачки наблюдался при энергиях, превышающих половину энергии насыщения.

В ходе эксперимента наблюдалась генерация белого света [171], интенсивность которого возрастала по мере приближения к энергии насыщения (Рисунки 3.24(в,г)). В частности, для 60 фс импульсов накачки генерация белого света начиналась при энергии импульса 50-60 мкДж. Соответствующая пиковая оптическая мощность примерно в 700 раз превышает критическую мощность для самофокусировки в DKDP, которая оценивается как ~ 1.3 МВт для нелинейного показателя преломления DKDP $n_2 \sim 5 \times 10^{-7}$ см²/ГВт [172].

При столь высокой мощности развитие модуляционной неустойчивости в оптическом пучке приводит к множественной филаментации, что видно на Рисунке

3.24(г). Излучение белого света из филаментов формировало пучок с угловой расходимостью в плоскости Рисунка 3.22 в несколько раз большей, чем у пучка накачки. В результате на экране на расстоянии 15 см от кристалла наблюдалось пятно белого света размером несколько сантиметров с красной каймой (Рисунок 3.24(в)). Генерация белого света не вызывала видимых повреждений кристалла.

Белый свет излучался из задней половины кристалла DKDP, тогда как терагерцовое излучение генерировалось в его передней половине (Рисунок 3.25(а)). Таким образом, процессы генерации белого света и терагерцового излучения были пространственно разделены. Это позволяет предположить, что основным механизмом насыщения эффективности является многофотонное поглощение оптической накачки.

Действительно, при энергиях импульсов, близких к насыщению, пиковая оптическая интенсивность в кристалле достигает 0.3-0.6 ТВт/см² (в зависимости от длительности импульса). Филаментация может дополнительно увеличивать интенсивность в несколько раз. При таких интенсивностях пятифотонное поглощение накачки (энергия кванта 1.55 эВ) в DKDP (ширина запрещённой зоны 7~эВ) может становиться существенным фактором.

Согласно Рисунку 2.25(а), поперечный профиль выходного терагерцового пучка слабо зависит от длительности импульса накачки при сравнимых оптических интенсивностях (кривые для 90, 160 и 230 мкДж). Для одинаковой длительности импульсов (500 фс) ширина пучка меньше при энергии импульса 230 мкДж по сравнению с 50 мкДж. Это подтверждает предположение о существенном многофотонном поглощении оптической накачки при высоких интенсивностях.

На Рисунках 3.25(б) и 3.25(в) сравниваются формы терагерцовых импульсов и их спектры для различных длительностей импульсов накачки. Для каждой длительности энергия импульса выбиралась близкой к значению насыщения. Наибольшая амплитуда электрооптического отклика $dI/I \sim 0.15$ достигается для импульсов длительностью 260 фс, что согласуется с Рисунком 3.24(б). Соответствующее пиковое терагерцовое поле можно оценить примерно 10 кВ/см.

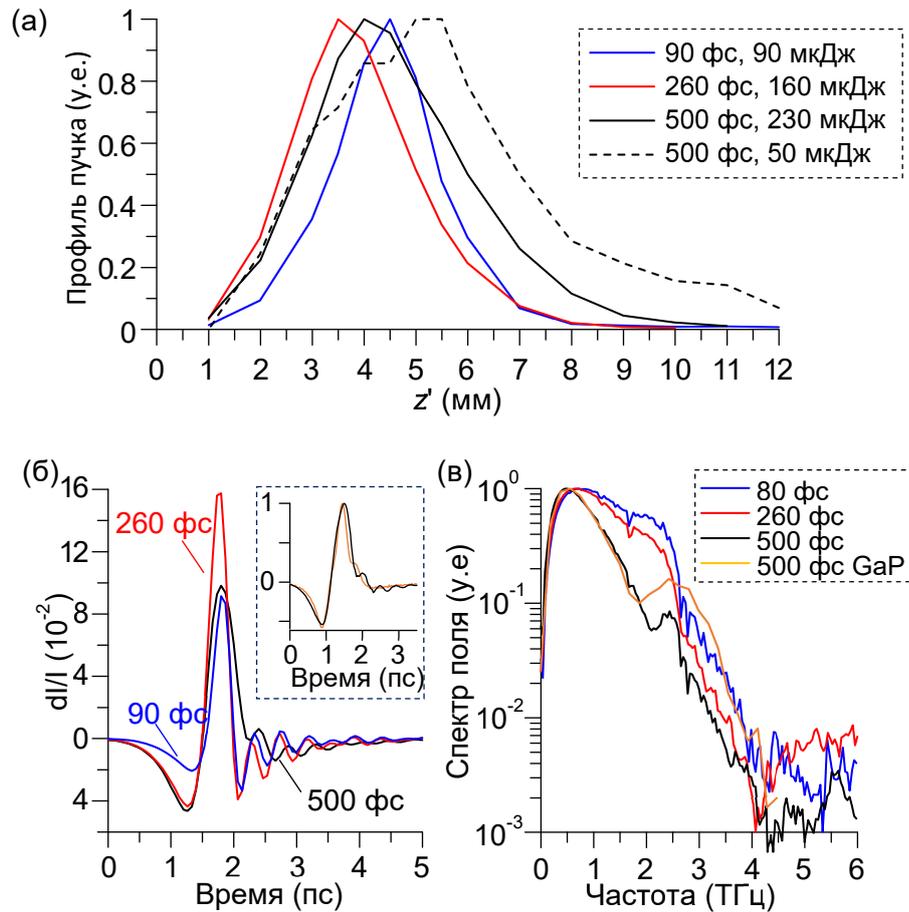


Рисунок 3.25. (а) Нормированные профили терагерцового пучка вдоль оси z' (см. схему на Рисунке 3.22) при различных параметрах импульса накачки. (б) Терагерцовые импульсы, генерируемые импульсами накачки длительностью 90, 260 и 500 фс с энергиями, близкими к насыщению: 90, 180 и 250 мкДж, соответственно. (в) Соответствующие нормированные спектры. Во вставке на рисунке (б) показаны терагерцовые импульсы для накачки длительностью 500 фс, зарегистрированные с использованием: 1-мм кристалла ZnTe (чёрная кривая) и 200-мкм кристалла GaP (оранжевая кривая). Во всех случаях использовались импульсы с отрицательным chirпом, угол падения $\alpha = 1.4^\circ$ и угол поляризации $\theta = 54^\circ$.

Спектры терагерцовых импульсов простираются до 4 ТГц для всех длительностей накачки (рисунок 3.25(в)). Однако спектры, генерируемые более короткими импульсами накачки (90 и 260 фс), доминируют на частотах выше 1 ТГц, особенно в области 1-2.5 ТГц. При использовании детекторного кристалла GaP толщиной 200 мкм вместо 1-мм ZnTe спектр для 500-фс импульсов усиливался на частотах выше 2 ТГц. В форме импульса (вставка на Рисунке 3.25(б)) слабые осцилляции после основного биполярного

импульса исчезали. Это позволяет предположить, что эти осцилляции, наблюдаемые также и для более коротких импульсов (Рисунок 3.25(б)), связаны с согласованием скоростей оптического и терагерцового излучения при ~ 2 ТГц в детектирующем кристалле ZnTe [173], а не с процессом генерации. Учитывая достаточно сильный электрооптический отклик $dl/I \sim 0.15$, широкую полосу частот (до 4 ТГц), большой динамический диапазон [174], около 10^3 (Рисунок 3.25(в)), а также хорошую воспроизводимость измерений, можно заключить, что кристалл DKDP может использоваться в качестве генератора для терагерцовой спектроскопии во временной области (THz-TDS).

Сравнивая измерения эффективности преобразования с данными для LiNbO₃, можно оценить нелинейный коэффициент d_{36}^{OR} DKDP. В качестве эталона используем результаты исследований черенковской генерации в геометрии с поверхностным выводом в кристалле LiNbO₃ с кремниевой призмой, приведенные в п. 3.2. Для LiNbO₃ была получена примерно в 1000 раз более высокая эффективность преобразования при сравнимых интенсивностях накачки. Учитывая различие в френелевских потерях и поглощении терагерцового излучения в двух схемах генерации и используя уравнения (3.35) и (3.23), получаем отношение $d_{36}^{OR}/d_{33}^{OR} \sim 0.02$, где d_{33}^{OR} -- нелинейный коэффициент LiNbO₃. Принимая $d_{33}^{OR} = 168$ пм/В (полученного из сжатого электрооптического коэффициента r_{33} [63], а также других расчетов [175], [176] и экспериментальных данных [175]), получаем $d_{36}^{OR} \sim 3$ пм/В. Это значение значительно меньше величины $d_{36}^{OR} \sim 30$ пм/В, рассчитанной из зажатого электрооптического коэффициента $r_{63} = 24$ пм/В [169] для МГц диапазона (выше пьезоэлектрического резонанса). В то же время полученное значение существенно превышает нелинейный коэффициент $d_{36}^{SH} = 0.4$ пм/В, измеренный в экспериментах по генерации второй гармоники [169].

Повышенная нелинейность в процессе оптического выпрямления может быть объяснена ионным вкладом, который незначителен для процесса генерации второй гармоники. Действительно, на терагерцовых частотах нелинейный коэффициент может быть представлен как сумма электронного и ионного вкладов:

$$d_{36}^{OR} = d_{36}^{el} + d_{36}^{ion} \quad (3.36)$$

(пьезоэлектрический вклад в этом частотном диапазоне пренебрежимо мал [177]). Электронный член можно оценить как $d_{36}^{el} = d_{36}^{SH}$, предполагая слабую дисперсию d_{36}^{el} на частотах, значительно ниже резонанса валентных электронов. Рассматривая ионные

колебания как ангармонический осциллятор и предполагая применимость правила Миллера [150], [175], [176], отношение ионных вкладов на терагерцовых и мегагерцовых частотах можно оценить как:

$$\frac{d_{36}^{\text{ion}}(\text{ТГц})}{d_{36}^{\text{ion}}(\text{МГц})} = \frac{\varepsilon_{\text{ion}}(\text{ТГц}) - 1}{\varepsilon_{\text{ion}}(\text{МГц}) - 1} = \frac{n_{\text{ТГц}}^2 - n_{\text{opt}}^2 - 1}{n_{\text{МГц}}^2 - n_{\text{opt}}^2 - 1} \approx 0.08, \quad (3.37)$$

где $\varepsilon_{\text{ion}}(\text{ТГц})$, $\varepsilon_{\text{ion}}(\text{МГц})$ - ионные вклады в диэлектрическую проницаемость на терагерцовых и мегагерцовых частотах, а $n_{\text{МГц}} \approx 7$ [178], $n_{\text{opt}} \approx 1,5$ - показатели преломления на мегагерцовых и оптических частотах. Рассчитанное отношение хорошо согласуется со значением, следующим из экспериментального результата $d_{36}^{\text{OR}} \sim 3$ пм/В:

$$\frac{d_{36}^{\text{OR}}(\text{ТГц}) - d_{36}^{\text{SH}}}{d_{36}^{\text{OR}}(\text{МГц}) - d_{36}^{\text{SH}}} = \frac{3 - 0.4}{30 - 0.4} \approx 0.09. \quad (3.38)$$

3.4 Выводы по главе 3

Предложены, теоретически описаны и экспериментально исследованы высокоэффективные оптико-терагерцовые преобразователи на основе механизма черенковского излучения. Преобразователи состоят из тонкой, толщиной 30-50 мкм, пластины кристалла LiNbO_3 сантиметрового размера с приклеенной (или прижатой) кремниевой выводящей призмой. Другая сторона пластины LiNbO_3 может быть как свободна, так и содержать подложку или другую (аналогичную) кремниевую призму. Фемтосекундное лазерное излучение, сфокусированное цилиндрической линзой в пластину LiNbO_3 , распространяется в преобразователе в виде слабо-вытекающей волноводной моды и за счет черенковского механизма излучения выпрямленного поля лазерного импульса генерирует в кремниевую призму (или призмы) терагерцовое волны. Предложенная схема минимизирует поглощение терагерцового излучения, а также позволяет создавать длительное волноводное распространение накачки, способствуя формированию протяженного черенковского клина и, тем самым, эффективной оптико-терагерцовой конверсии.

На основе теоретических расчетов получены аналитические выражения для поля и энергии (точнее потока энергии) генерируемого терагерцового излучения. Исследовано влияние длительности лазерного импульса и толщины нелинейного слоя на генерируемый спектр и эффективность конверсии.

Изготовлены и экспериментально протестированы сэндвич-структуры различного типа (с металлической или диэлектрической подложкой, а также без подложки). В ходе измерений энергетических характеристик, установлено, что с увеличением энергии накачки эффективность оптико-терагерцовой конверсии растет линейно, а затем насыщается. Градиент роста зависит от длительности и chirpa лазерного импульса, а также от толщины нелинейного слоя. Для излучения титан-сапфирового лазера с длительность спектрально-ограниченного импульса около 50 фс наибольший градиент роста достигается для лазерного импульса с небольшим отрицательным chirпом (дающим длительность около 100 фс), что согласуется с теоретическими предсказаниями. Однако при насыщении, эффективность слабо зависит от длительности chirпированного импульса накачки в диапазоне 50-200 фс и уменьшается при дальнейшем увеличении длительности. Максимальная эффективность достигает уровня 0.2-0.4% при интенсивности лазерного импульса 200-400 ГВт/см² (что соответствует энергии 15-40 мкДж при длительности 50-200 фс и размере несфокусированного пучка накачки ~5 мм). Увеличение длины волны накачки (до ~2 мкм) позволяет повысить эффективность оптико-терагерцовой конверсии до уровня ~ 1% за счет увеличения интенсивности импульса (для этого требуется примерно в 5 раз большая энергия накачки).

Измерены осциллограммы и спектр генерируемого излучения. Типичная временная форма терагерцовых импульсов имеет несколько осцилляций, а спектр простирается от долей ТГц до 3-4 ТГц или даже до 5 ТГц с максимумом в диапазоне 1-2 ТГц, что согласуется с теоретическими расчетами. Некоторым недостатком преобразователя является наличие провала в спектре, связанного с интерференцией прямой и отраженной от другой поверхности пластины LiNbO₃, черенковских волн. Этот недостаток может быть частично компенсирован путем перестройки спектра при варьировании воздушного зазора между LiNbO₃ и металлической подложкой (альтернативой является использование подложки из материала с показателем преломления близким к терагерцовому показателю преломления LiNbO₃, например теллуридного стекла). При высокоинтенсивной накачке вблизи насыщения эффективности наблюдается уширение спектра генерации, что может быть объяснено появлением дополнительного токового источника, обусловленного ускорением фотогенерируемых носителей (из-за многофотонного поглощения накачки) выпрямленным полем лазерного импульса.

При использовании широкомасштабных сэндвич-структур и широкого (~4 см) пучка накачки с суб-миллиджоульной энергией (~0.6 мДж) возможна генерация терагерцовых импульсов с энергией около 1 мкДж и терагерцового поля (при острой фокусировке) 350-500 кВ/см.

За счет механизма черенковского излучения в геометрии поверхностного вывода продемонстрирована возможность генерации широкополосного терагерцового излучения в кристалле DKDP, обладающим сильным поглощением в терагерцовом диапазоне частот ($> 200 \text{ см}^{-1}$ на частотах более 1 ТГц). Исследовано влияние поляризации и длительности накачки на эффективность конверсии. Продemonстрирована эффективность конверсии $\sim 8 \times 10^{-6}$, сопоставимая с эффективностью конверсии в часто-используемом кристалле ZnTe. Измерена временная форма и спектр терагерцового импульса. По сравнению с LiNbO₃, спектр более низкочастотный: максимум находится около 0.5 ТГц, а ширина достигает 3-4 ТГц. Тем не менее, этого достаточно для проведения терагерцовой спектроскопии во временной области. Из данных экспериментальных измерений приведена оценка нелинейного коэффициент кристалла DKDP при оптическом выпрямлении фемтосекундных импульсов $d_{36}^{\text{OR}} \sim 3 \text{ пм/В}$, что на порядок выше нелинейного коэффициента для генерации второй гармоники, но в тоже время на порядок меньше того, что можно было бы ожидать от электрооптического коэффициента r_{63} для МГц диапазона частот. Данное отличие, с учетом дисперсии ионного вклада в нелинейность, согласуется с правилом Миллера.

Глава 4. Наведенные нелинейно-оптические эффекты в присутствии сильных терагерцовых полей

В данной главе представлены теоретические и экспериментальные исследования различных нелинейно-оптических эффектов, возникающих при совместном воздействии на среду оптических фемтосекундных и достаточно интенсивных пикосекундных терагерцовых импульсов, а также при воздействии отдельными интенсивными терагерцовыми импульсами.

- Рассматриваются особенности генерации второй оптической гармоники из объема и с поверхности центрально-симметричных сред в присутствии электрического поля терагерцового импульса. В частности, в прозрачных для терагерцового и оптического излучений средах демонстрируется (при некоторых условиях) эффект подавления генерации второй оптической гармоники при наложении оптического и терагерцового импульсов в объеме среды. На основе данного эффекта предлагается и тестируется новый метод диагностики скрытых неоднородностей (малозаметных линейными методами оптической визуализации). Кроме того, исследуется возможность измерения кубичной нелинейной восприимчивости непрозрачных (для второй гармоники) сред с учетом влияния окружающего газа, а также демонстрируется возможность измерения встроенного поверхностного поля в кремнии.

- Исследуется «терагерцовый» эффект Керра в жидкостях, когда анизотропия показателя преломления, наводится полем интенсивного терагерцового импульса, а диагностика наведенной анизотропии проводится зондирующим фемтосекундным импульсом. Это позволяет исследовать динамику нелинейного отклика жидкостей на пикосекундных временных масштабах, в том числе, измерять время релаксации. В отличие от фемтосекундного оптического эффекта Керра (когда для создания и зондирования анизотропии используются только фемтосекундные лазерные импульсы), терагерцовый эффект Керра обладает большей чувствительностью к постоянному дипольному моменту молекулы из-за существенно более медленного (по сравнению с оптическим периодом) изменения электрического поля в электромагнитном импульсе. В эксперименте это демонстрируется на примере таких полярных жидкостей как ацетон и хлороформ. Кроме того, для данных жидкостей, а также для неполярных жидкостей (бензола и четырёххлористого углерода), проводится сравнение измеренных коэффициентов

нелинейности Керра, с аналогичными коэффициентами, известными из литературных данных для оптического излучения и постоянного электрического поля.

- Исследуются характеристики (спектр и энергия) оптической люминесценции, наведенной в графене интенсивным терагерцовым импульсом (с напряженностью поля более 100 кВ/см). Рассматривается возможность применения данного эффекта, для измерения профиля терагерцового пучка. Также демонстрируется усиление люминесценции на структурах с субволновым масштабом, что потенциально может быть использовано для уменьшения порога детектирования люминесценции по напряженности терагерцового поля.

Основные результаты главы опубликованы в работах [A15, A18, A20-A22, A24, A25].

4.1 Генерация второй оптической гармоники при совместном распространении фемтосекундного лазерного и пикосекундного терагерцового импульсов в центрально-симметричной среде

Рассмотрим одномерную теорию генерацию второй гармоники (ВГ) фемтосекундного оптического импульса при совместном распространении с пикосекундным терагерцовым импульсом в среде с кубической нелинейностью (квадратичная нелинейность отсутствует). Предполагается, что среда прозрачна для всех участвующих во взаимодействии излучений (оптического на первой и второй гармониках, а также терагерцового).

Излучение ВГ в центрально-симметричной может происходить лишь из некоторой области, где происходит наложение основного оптического и терагерцового импульсов. При этом эта область связана с движущимся импульсом терагерцового поля и имеет плавные границы, что существенно отличается от классической геометрии генерации ВГ в неподвижном слое с резкими границами, теория которой хорошо развита в ряде работ как для непрерывного [90] [91], так и для фемтосекундного [92] оптического излучений. Как будет показано ниже, это приводит к некоторым интересным особенностям излучения ВГ, наведенной терагерцовым полем.

Итак, предположим, что линейно поляризованные (вдоль оси x) короткие оптический и терагерцовый импульсы с бесконечным поперечным размером распространяются в вакууме вдоль оси z с варьируемой временной задержкой t_d и при

$z = 0$ падают по нормали на слой материала с кубической нелинейностью толщиной L (см. момент $t = t_1$ на Рисунке 4.1). В объеме материала, пренебрегая дисперсией, оптическое и терагерцовое электрические поля могут быть записаны в виде:

$$E_{\text{opt}}(t, z) = E_0 F(t - t_d - z/V_\omega) \cos(\omega_0(t - t_d - z/V_\omega)) \quad (4.1)$$

$$E_{\text{THz}}(t, z) = E_T G(t - z/V_T) \quad (4.2)$$

$\omega_0 = 2\pi/\lambda_0$ – центральная оптическая частота (с соответствующей центральной длиной волны λ_0), $V_\omega = c/n_\omega$ и $V_T = c/n_T$ – скорости распространения оптического и терагерцового импульсов, соответственно, c – скорость света, n_ω и n_T – показатели преломления материала на основной оптической частоте ω_0 и в терагерцовом диапазоне, соответственно. Функция F описывает огибающую оптического импульса и имеет характерную длительность τ_0 , E_0 – амплитуда огибающей. Волновая форма терагерцового поля G имеет длительность τ_T и центральную частоту ω_T ($\omega_T \tau_T \sim 1$ для типичных терагерцовых импульсов, генерируемых при оптико-терагерцовом преобразовании фемтосекундного лазерного излучения), пиковая амплитуда поля равна E_T .

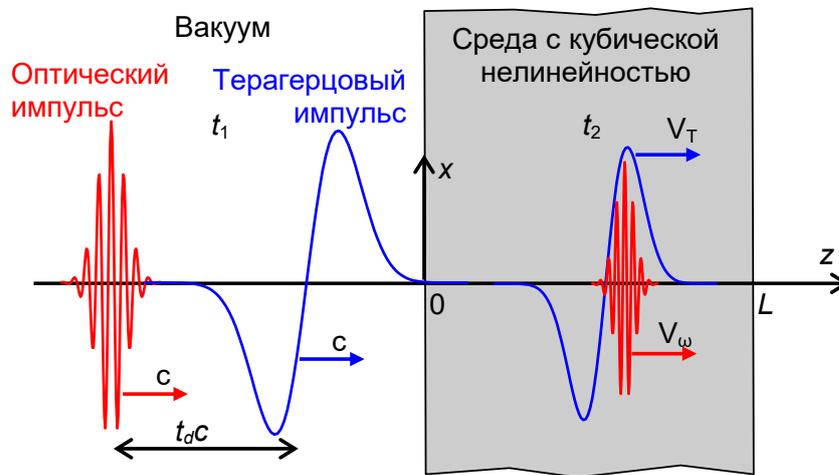


Рисунок 4.1. Геометрия задачи.

Необходимым условием генерации ВГ является наложение основного оптического и терагерцового импульсов внутри нелинейного слоя. Из-за различных скоростей волн оптического и терагерцового диапазонов (для определенности будем предполагать $V_\omega > V_T$), такое перекрытие зависит от t_d . Если $|t_d| < \tau_T$, оптический и терагерцовый

импульсы встречаются около входной границы слоя, и после этого оптический импульс выбегает вперед. Если $\tau_T < t_d < \tau_L - \tau_T$, где

$$\tau_L = L \left| \frac{1}{V_T} - \frac{1}{V_\omega} \right| = \frac{L}{c} |n_T - n_\omega| \quad (4.3)$$

- времена разбегания оптического и терагерцового импульсов на толщине слоя, их суперпозиция происходит в объеме материала (см. $t = t_2$ на Рисунке 4.1). Для $|t_d - \tau_L| < \tau_T$ оптический импульс догоняет терагерцовый импульс вблизи выходной границы слоя. И для $t_d < -\tau_T$ и $t_d > \tau_T + \tau_L$ импульсы не перекрываются внутри слоя. Источником ВГ является нелинейная поляризация, которая с учетом уравнений (4.1) и (4.2) может быть записана (в комплексном виде) как:

$$P_{2\omega}(t, z) = \chi_{\text{eff}}^{(3)} E_0^2 E_T F \left(t - t_d - \frac{z}{c} n_\omega \right) G \left(t - \frac{z}{V_T} \right) \exp \left(i2\omega_0 \left(t - t_d - \frac{z}{c} n_\omega \right) \right), \quad (4.4)$$

где $\chi_{\text{eff}}^{(3)}$ – эффективная нелинейная восприимчивость третьего порядка. В уравнении (4.4) пренебрегается отражением терагерцового и основного оптического импульсов от выходной границы слоя. Напряженность терагерцового и оптического полей предполагаются достаточно низкими, чтобы предотвратить появление других нелинейных эффектов, влияющих на генерацию ВГ [89]. Также не будем учитывать обратное воздействие поля ВГ на терагерцовый и оптический импульсы, предполагая низкую эффективность процесса преобразования.

Электрическое поле второй оптической гармоники, генерируемое движущейся нелинейной поляризацией (4.4), определяется решением одномерного волнового уравнения вида:

$$\frac{\partial^2 E}{\partial z^2} - \frac{1}{V_{2\omega}^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 P_{2\omega}(z, t)}{\partial t^2}, \quad (4.5)$$

где $V_{2\omega} = c/n_{2\omega}$ – скорость ВГ (здесь мы также пренебрегаем дисперсией вблизи центральной частоты ВГ $2\omega_0$).

Рассмотрим вначале полубесконечный нелинейный материал ($L \rightarrow \infty$). Используя метод Фурье преобразования и учитывая граничные условия непрерывности электрического и магнитного полей на входной границе, решение уравнения (4.5) в среде записывается в виде:

$$E_m(t, z, t_d) = \frac{\pi}{c n_{2\omega}} \chi_{\text{eff}}^{(3)} E_T E_0^2 e^{i2\omega_0(t - n_{2\omega}z/c - t_d)} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{E}_m(\Omega, z) e^{i\Omega(t - n_{2\omega}z/c)} d\Omega, \quad (4.6)$$

где $\Omega = \omega - 2\omega_0$ и

$$\tilde{E}_m(\Omega, z) = -i(\Omega + 2\omega_0) \times \int_0^\infty \left[\frac{n_{2\omega} - 1}{n_{2\omega} + 1} e^{-i(\Omega + 2\omega_0)(n_{2\omega} + n_\omega)z'/c} + e^{i(\Omega + 2\omega_0)(n_{2\omega}z - n_\omega z' - n_{2\omega}|z - z'|)/c} \right] \tilde{R}(\Omega, z') dz'. \quad (4.7)$$

Для отраженного поля второй гармоники (при $z < 0$) решение уравнения (4.5) имеет вид:

$$E_v^r(t, z, t_d) = \frac{\pi}{cn_{2\omega}} \chi_{eff}^{(3)} E_T E_0^2 e^{i2\omega_0(t+z/c-t_d)} \int_{-\infty}^\infty \tilde{E}_v^r(\Omega, z) e^{i\Omega(t+z/c)} d\Omega, \quad (4.8)$$

где

$$\tilde{E}_v^r(\Omega, z) = -i \frac{2n_{2\omega}}{n_{2\omega} + 1} (\Omega + 2\omega_0) \int_0^\infty e^{-i(\Omega + 2\omega_0)(n_{2\omega} + n_\omega)z'/c} \tilde{R}(\Omega, z') dz'. \quad (4.9)$$

В уравнениях (4.7) и (4.9) функция $\tilde{R}(\Omega, z')$ соответствует Фурье преобразованию от профиля нелинейной поляризации (4.4) по переменной $\xi = t - n_\omega z/c$:

$$\tilde{R}(\Omega, z') = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^\infty F(\xi - t_d) G(\xi - z'(n_T - n_\omega)/c) e^{-i\Omega\xi} d\xi. \quad (4.10)$$

Уравнения (4.6)-(4.10) полностью описывают пространственно-временную эволюцию поля второй гармоники для произвольных параметров оптического и терагерцового импульсов.

Для понимания процесса генерации второй гармоники предположим, что характерное время изменения терагерцового поля значительно превышает длительность оптического импульса, что эквивалентно условию $\omega_T \tau_0 \ll 1$, которое может быть выполнено в реальном эксперименте (например, при $\omega_T/2\pi = 1$ ТГц и $\tau_0 \sim 50$ фс). В этом случае уравнение (4.10) сводится к:

$$\tilde{R}(\Omega, z') \approx G(t_d - z'(n_T - n_\omega)/c) \tilde{F}(\Omega) \exp(-i\Omega t_d), \quad (4.11)$$

где $\tilde{F}(\Omega)$ – фурье-образ функции F . Подстановка уравнения (4.11) в уравнения (4.7) и (4.9) приводит к интегралам, содержащим произведение функции $G(t_d - z'(n_T - n_\omega)/c)$ и экспоненциального множителя (i) $\exp(-i(2\omega_0 + \Omega)(n_{2\omega} + n_\omega)z'/c)$ или (ii) $\exp(i(2\omega_0 + \Omega)(n_{2\omega} - n_\omega)z'/c)$. Эти интегралы могут быть вычислены аналитически только для определенного вида функции $G(z')$. Однако приближенное интегрирование для произвольного профиля G может быть выполнено при некоторых предположениях.

Предположим, что $G(z')$ в (4.11) изменяется медленно по сравнению с быстро осциллирующими экспоненциальными функциями (i) и (ii), что эквивалентно условиям

$$\frac{2\omega_0(n_{2\omega} + n_\omega)}{\omega_T |n_T - n_\omega|} \gg 1 \quad (4.12a)$$

и

$$\frac{2\omega_0|n_{2\omega} - n_\omega|}{\omega_T|n_T - n_\omega|} \gg 1, \quad (4.126)$$

соответственно. Благодаря явному соотношению $\omega_0 \gg \omega_T$, условие (4.12а) хорошо выполняется для широкого диапазона показателей преломления $n_{2\omega}$, n_T и n_ω , тогда как условие (4.12б) существенно зависит от $|n_{2\omega} - n_\omega|$. Вводя длину когерентности между основной и второй гармониками $L_c = \lambda_0/(4|n_{2\omega} - n_\omega|)$, уравнение (4.12б) может быть переписано как

$$L_c \ll \frac{\lambda_T}{2|n_T - n_\omega|} = L_w, \quad (4.13)$$

где $\lambda_T = 2\pi c/\omega_T$ - центральная длина волны терагерцового импульса, L_w - длина выбегания основного оптического импульса из терагерцовой длины волны. В случае использования терагерцовых импульсов длительностью 1-2 периода поля (имеено этот случай и будет рассматриваться), правая часть в уравнении (4.13) соответствует длине разбегания оптического и терагерцового импульсов. После интегрирования уравнений (4.7) и (4.9) с учетом (4.11), (4.12а), (4.12б), можно получить следующие приближенные выражения для отраженного поля второй гармоники ($z < 0$) $E_v^r = A_v^r e^{i2\omega_0(t-t_d+z/c)}$ с комплексной амплитудой

$$A_v^r(t, z) \simeq -\frac{4\pi\chi_{\text{eff}}^{(3)} E_T E_0^2}{(n_{2\omega} + 1)(n_{2\omega} + n_\omega)} G(t_d) F\left(t - t_d + \frac{z}{c}\right) \quad (4.14)$$

и для поля в среде ($z > 0$)

$$E_m(t, z) \simeq \frac{4\pi\chi_{\text{eff}}^{(3)} E_T E_0^2}{n_{2\omega}^2 - n_\omega^2} \left[\frac{n_\omega + 1}{n_{2\omega} + 1} G(t_d) F\left(t - t_d - \frac{n_{2\omega} z}{c}\right) e^{i2\omega_0(t-t_d-n_{2\omega}z/c)} - \right. \\ \left. G\left(t_d - \frac{(n_T - n_\omega)z}{c}\right) F\left(t - t_d - \frac{n_\omega z}{c}\right) e^{i2\omega_0(t-t_d-n_\omega z/c)} \right]. \quad (4.15)$$

Уравнение (4.14) показывает, что огибающая отраженного импульса ВГ повторяет интенсивность основного оптического импульса и имеет амплитуду, зависящую от временной задержки между основным оптическим и терагерцовым импульсами, определяемую функцией $G(t_d)$.

Динамика электрического поля второй гармоники в среде является более сложной. Уравнение (4.15) содержит импульс свободной волны (первое слагаемое в квадратных скобках), распространяющийся в среде со скоростью второй гармоники $V_{2\omega}$, и импульс вынужденной волны (второе слагаемое), распространяющийся со скоростью

фундаментальной волны V_ω . Оба импульса повторяют интенсивность оптического импульса, но пиковая амплитуда свободной волны зависит только от t_d через функцию $G(t_d)$ (аналогично отраженной волне ВГ), пиковая амплитуда вынужденной волны зависит от комбинации t_d и z через функцию $G(t_d - (n_T - n_\omega)z/c)$.

Когда оптический и терагерцовый импульсы перекрываются вблизи входной границы среды ($|t_d| < \tau_T$), генерируемые свободный и вынужденный импульсы ВГ интерферируют, что приводит к биениям амплитуды огибающей поля ВГ $|A_m(z)|$ вдоль направления распространения (оси z) с периодом $2l_c$ (см. расчеты для плавленого кварца на Рисунках 4.2(а-в)). Учитывая ограниченную длину функции $G(t_d - (n_T - n_\omega)z/c)$ вдоль оси z , такая интерференция ограничена условием

$$\Delta z(t_d) \approx c(t_d + \tau_T)/|n_T - n_\omega| \text{ при } |t_d| < \tau_T. \quad (4.16)$$

Таким образом, увеличение t_d , соответствующее более глубокому проникновению терагерцового импульса через границу среды в момент падения оптического импульса, приводит к увеличению длины области интерференции (см. Рисунки 4.2(а-в)). При $z \rightarrow \infty$ вынужденный импульс стремится к нулю, и остается только свободный импульс с амплитудой $|A_m(z)|$, определяемой $G(t_d)$ (см. постоянное остаточное значение на Рисунках 4.2(а-в)).

Когда оптический и терагерцовый импульсы перекрываются в объеме материала ($t_d > \tau_T$), свободная волна ВГ не возбуждается (математически, из-за множителя $G(t_d)$ в уравнении (4.15)) и остается только вынужденная волна ВГ в локальной области с продольным размером

$$L_{SH} = \Delta z(\tau_T) = c\tau_T/|n_T - n_\omega|. \quad (4.17)$$

Действительно, амплитуда огибающей импульса ВГ на Рисунке 4.2(г) постепенно (без модуляции) повторяет модуль профиля терагерцового поля и стремится к нулю при $z \rightarrow \infty$. Другими словами, когда оптический импульс проходит через область индуцированной терагерцовым полем квадратичной нелинейности $\chi_{\text{eff}}^{(2)} = \chi_{\text{eff}}^{(3)} E_{\text{THz}}(t, z)$ вдали от входной границы, поле в нелинейной среде ВГ возбуждается и затухает адиабатически, а значит при $z \rightarrow \infty$ излучение отсутствует.

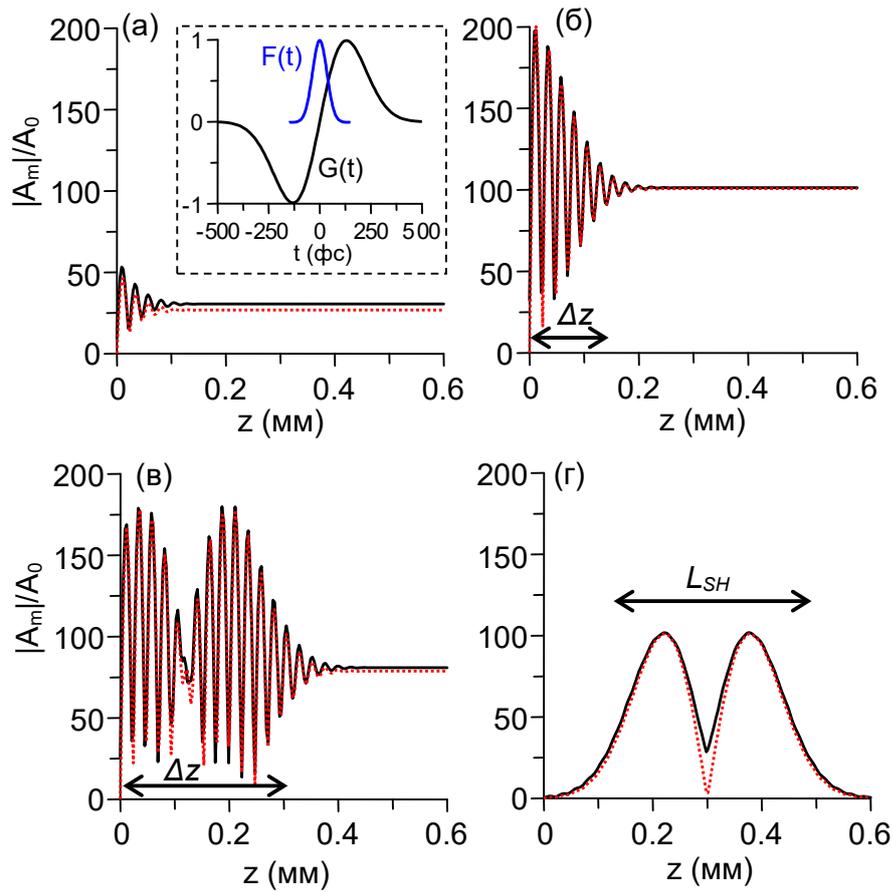


Рисунок 4.2. Амплитуда огибающей поля ВГ, нормированная на $A_0 = \chi_{\text{eff}}^{(3)} E_0^2 E_T$, в зависимости от координаты z при различных задержках: (а) $t_d = -300$ фс, (б) $t_d = -125$ фс, (в) $t_d = 200$ фс, (г) $t_d = 500$ фс. Расчет выполнен при следующих параметрах: $\lambda_0 = 0,8$ мкм, $F(t) = \exp(-t^2/\tau_0^2)$ с $\tau_0 = 50$ фс, $G(t) = \exp(-t^2/\tau_T^2) \sin(\omega_T t)$ с $\tau_T = 200$ фс, $\omega_T = 1/\tau_T$ (см. вставку на Рисунке (а)) и показателей преломления среды, соответствующих плавленому кварцу: $n_T = 1,96$, [179] $n_\omega = 1,453$, $n_{2\omega} - n_\omega = 0,017$ ($L_c = 10$ мкм). Сплошные чёрные и пунктирные красные линии соответствуют точному расчёту на основе уравнений (4.6), (4.7) и приближённому расчёту на основе уравнения (4.15), соответственно.

Отметим, что кривые $|A_m(z)|$ на Рисунке 4.2, рассчитанные по точным уравнениям (4.6), (4.7) и приближённому уравнению (4.15), находятся в хорошем согласии. Незначительное расхождение возникает в точках, где оптический импульс проходит через нулевые значения терагерцового поля ($z = 0,11$ мм на Рисунке 4.2(в) и $z = 0,3$ мм на Рисунке 4.2(г)). В этих точках приближенное уравнение (4.11) становится несправедливым из-за конечной длительности оптического импульса (излучение ВГ

генерируется на переднем и заднем фронтах оптического импульса, где терагерцовое поле отлично от нуля).

Рассмотрим кратко неадиабатический режим генерации ВГ, когда условие (4.13) не выполняется (на практике это может соответствовать малому различию в показателях преломления фундаментальной и второй гармоник, $|n_{2\omega} - n_\omega| \ll n_\omega$). В этом случае фурье-образ электрического поля в среде можно записать как

$$\tilde{E}_m^{SVA}(\Omega, z) = -i(\Omega + 2\omega_0) \int_0^z \tilde{R}(\Omega, z') e^{i(\Omega + 2\omega_0)(n_{2\omega} - n_\omega)z'/c} dz'. \quad (4.18)$$

Это выражение также может быть получено, применяя метод медленно меняющихся амплитуд к уравнению (4.5) после Фурье преобразования. Подстановка уравнения (4.18) в уравнение (4.6) с учётом уравнения (4.11) и типичных экспериментальных условий $\omega_0\tau_0 \gg 1$ даёт приближённое выражение для электрического (комплексного) поля второй гармоники в среде

$$E_m^{SVA}(t, z) \approx A_m(t_d, z) F\left(t - t_d - \frac{n_\omega z}{c}\right) e^{i2\omega_0(t - t_d - n_\omega z/c)} \quad (4.19)$$

с комплексной амплитудой

$$A_m(t_d, z) = -i \frac{4\pi}{cn_{2\omega}} \omega_0 \chi_{\text{eff}}^{(3)} E_T E_0^2 \int_0^z G\left(t_d - \frac{z'(n_T - n_\omega)}{c}\right) e^{i2\omega_0(n_{2\omega} - n_\omega)(z' - z)/c} dz'. \quad (4.20)$$

На Рисунке 4.3 показаны результаты расчетов, выполненные на основе уравнений (4.19), (4.20) и (4.6), для различных значений t_d в случае $L_c \sim \lambda_T / (2|n_T - n_\omega|)$ ($\lambda_0 = 0.8$ мкм и $\lambda_T / (2|n_T - n_\omega|) = 300$ мкм). При $|t_d| < \tau_T$, когда оптический и терагерцовый импульсы перекрываются вблизи входной границы, наблюдается биение $|A_m(z)|$ (пунктирная линия), но оно менее выражено по сравнению с адиабатическим возбуждением на Рисунке 4.2(в) для того же t_d . В тоже время, амплитуда огибающей импульса ВГ на Рисунке 4.3(а) значительно больше, чем на Рисунке 4.2(в). Это объясняется множителем $1/(n_{2\omega} - n_\omega)$, возникающим в амплитуде поля после интегрирования уравнения (4.20) (см. также уравнение (4.15)). Когда $t_d > \tau_T$, т.е. когда оптический и терагерцовый импульсы перекрываются в объеме среды (сплошная линия на Рисунке 4.3(а)), в отличие от адиабатической генерации ВГ, поле второй гармоники при $z \rightarrow \infty$ уже не стремится к нулю. Таким образом, когда размер области терагерцово-индуцированной квадратичной нелинейности среды сравним с длиной когерентности, прохождение оптического импульса через такую область приводит к излучению ВГ

независимо от места ее нахождения (как вблизи, так и вдалеке от границ среды, но амплитуда ВГ при этом может варьироваться).

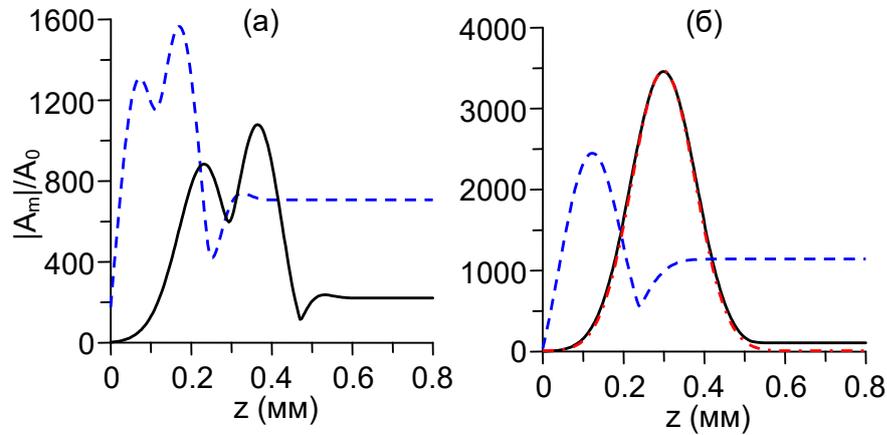


Рисунок 4.3. Амплитуды огибающей поля ВГ, нормированные на $A_0 = \chi_{\text{eff}}^{(3)} E_0^2 E_T$, в зависимости от координаты z при различных задержках $t_d = 200$ фс (штриховые кривые) и $t_d = 500$ фс (сплошные кривые) для модельной среды с (а) $n_{2\omega} - n_\omega = 0,0025$ ($L_c = 80$ мкм) и (б) $n_{2\omega} - n_\omega = 10^{-5}$ ($L_c = 2$ см). Форма импульсов такие же, как Рисунок 4.2. Штрихпунктирная кривая на рисунке (б) отображает интеграл $\int_0^z G(t_d - z'(n_T - n_\omega)/c) dz'$ для $t_d = 500$ фс (см. текст).

Генерация ВГ для случая $L_c \gg \lambda_T / (2|n_T - n_\omega|)$ показана на Рисунок 4.3(б). Когда $|t_d| < \tau_T$ (см. штриховую линию на Рисунок 4.3(б)), амплитуда огибающей импульса ВГ медленно модулируется вблизи входной поверхности в соответствии с временной формой терагерцового импульса и при $z \rightarrow \infty$ стремится к ненулевому (в общем случае) значению. Для $t_d > \tau_T$ (сплошная линия на рис. 4.3(б)) функция $|A_m(z)|$ имеет колоколообразную форму, напоминающую интеграл от функции G , с достаточно малым значением при $z \rightarrow \infty$. Действительно, в приближенном уравнении (4.20) экспоненциальный член при рассматриваемом условии можно считать равным единице, что дает амплитуду ВГ, пропорциональную интегралу от терагерцового поля $A_m(t_d, z) \sim \int_0^z G(t_d - z'(n_T - n_\omega)/c) dz'$. При малой задержке (терагерцовое поле лишь частично успевает проникнуть в среду) этот интеграл не равен нулю при $z \rightarrow \infty$, но при большой временной задержке, когда терагерцовый импульс уже полностью находится в среде, из-за нулевого среднего значения распространяющегося терагерцового поля этот интеграл при $z \rightarrow \infty$ обращается в ноль (на Рисунок 4.3(б) данный интеграл показан

штрихпунктирной линий, очень близкой к точному расчету). Следует отметить, что сплошные кривые на Рисунке 4.3 соответствуют вынужденным волнам ВГ, поскольку свободная волна не возбуждается из-за отсутствия терагерцового поля на входной поверхности слоя при соответствующих временных задержках.

Вернёмся теперь к рассмотрению конечной толщины нелинейного материала. При прохождении выходной границы слоя энергия ВГ, дающая сигнал S в измерениях, пропорциональна временному интегралу от квадрата прошедшего поля ВГ E_v^t : $S \sim \int |E_v^t(t, z = L)|^2 dt$. Ввиду близости показателей преломления первой и второй оптических гармоник, прошедшее поле связано с падающим на границе известными формулами Френеля (см. [180], а также аналогичный случай прохождения границы терагерцовыми полями в п. 1.3).

Для достаточно тонкого слоя ($L \ll L_{SH}$) можно считать, что нелинейный материал находится в квазиоднородном электрическом поле с изменяющейся во времени амплитудой. Это эквивалентно классической генерации второй гармоники в среде с медленно изменяющейся во времени нелинейностью. Генерируемый сигнал ВГ может быть рассчитан из уравнений (4.6),(4.7) (или уравнений (4.6),(4.19)), предполагая $G(t_d - z'(n_T - n_0)/c) \approx G(t_d)$, что даёт известную формулу (см., например, [90], [91])

$$S(t_d) \sim G^2(t_d)(1 - \cos(\pi L/L_c)). \quad (4.21)$$

Таким образом, при изменении временной задержки между оптическим и терагерцовым импульсами, генерируемый сигнал ВГ будет повторять квадрат временной формы терагерцового импульса. Величина сигнала определяется отношением толщины материала к длине когерентности.

Более интересна ситуация, когда $L > L_{SH}$. В адиабатическом режиме (см. условие (4.13)) поле ВГ в среде может быть описано приближенным уравнением (4.15), которое предсказывает излучение свободной волны при малом t_d (на входной границе) и вынужденной волны при большом t_d (на выходной границе). Таким образом, изменение временной задержки между оптическим и терагерцовым импульсами приводит к возбуждению двух всплесков сигнала ВГ (см. Рисунок 4.4(a)), которые повторяют профиль квадрата терагерцового импульса и разделены временем τ_L (см. выражение (4.3)):

$$S(t_d) \sim G^2(t_d) + G^2(t_d - (n_T - n_\omega)L/c). \quad (4.22)$$

Как показано на Рисунке 4.4(а), точно рассчитанная зависимость $S(t_d)$ (с помощью уравнений (4.6),(4.19)) хорошо согласуется с приближенным уравнением (4.22). Небольшое расхождение наблюдается в локальных минимумах ($t_d = 0$ и $t_d = 1,7$ пс), где $G(t_d) = 0$. В этих точках уравнения (4.11) и (4.22), становятся несправедливым из-за конечной длительность оптического импульса.

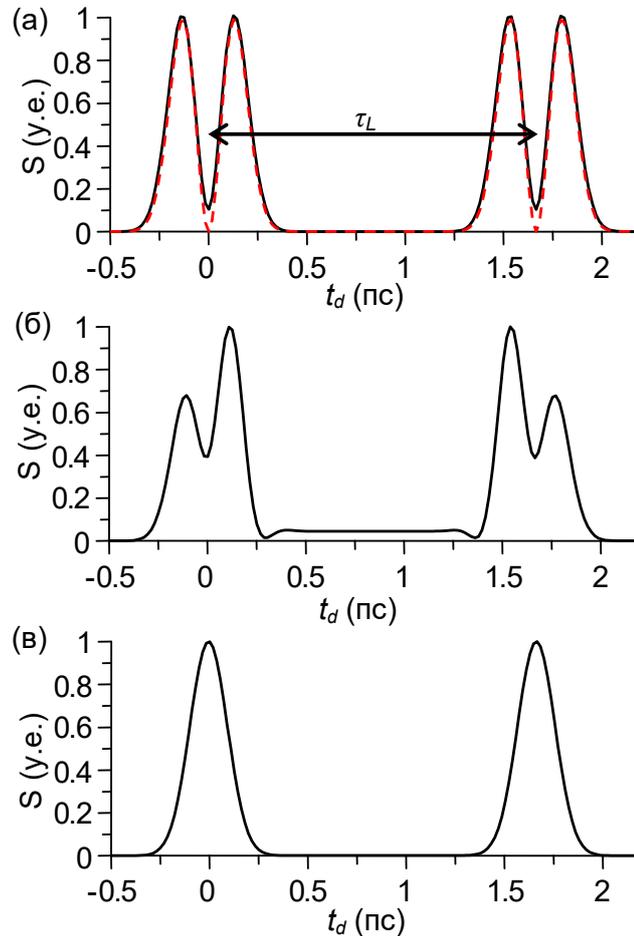


Рисунок 4.4. Генерируемый в 1 мм слое плавленного кварца сигнал ВГ S в зависимости от времени задержки для случаев: (а) $n_{2\omega} - n_{\omega} = 0,017$ (случай плавленного кварца при $\lambda_0 = 800$ нм), (б) $n_{2\omega} - n_{\omega} = 0,0025$ и (в) $n_{2\omega} - n_{\omega} = 10^{-5}$. Остальные параметры соответствуют Рисунку 4.2. Сплошные линии рассчитаны с использованием точных уравнений (4.6) и (4.19), штриховая линия на рисунке (а) получена из приближенного уравнения (4.22).

В неадиабатическом режиме при $L_c \sim \lambda_T / (2|n_T - n_{\omega}|)$ сигнал ВГ также имеет два всплеска вблизи $t_d = 0$ и $t_d = \tau_L$, но в отличие от адиабатического возбуждения, эти всплески не повторяют профиль терагерцового импульса (см. Рисунок 4.4(б)). Кроме того, сигнал ВГ между этими всплесками отличен от нуля. Для $L_c \gg \lambda_T / (2|n_T - n_{\omega}|)$

зависимость $S(t_d)$ повторяет квадрат интеграла от формы терагерцового импульса с нулевым значением в интервале $0 < t_d < \tau_L$ (см. Рисунок 4.4(в)).

Для проверки теоретического предсказания особенности генерации ВГ в адиабатическом режиме было проведено экспериментальное исследование с использованием титан-сапфировой лазерной системы (795 нм, 0.6 мДж, 600 Гц, 70 фс). Оптическое излучение разделялось на два импульса (Рисунок 4.5). Первый импульс накачки (с большей энергией) генерировал терагерцовое излучение в призме LiNbO_3 с применением техники скошенного фронта интенсивности (для формирования лазерного импульса со скошенным фронтом использовалась дифракционная решетка с плотностью штрихов 1800 мм^{-1} и телескоп с линзами Л1 ($F = 25 \text{ см}$) и Л2 ($F = 15 \text{ см}$)). Пучок терагерцового излучения, генерируемого в кристалле, расширялся внеосевыми параболическими зеркалами ПЗ₁ и ПЗ₂, а затем фокусировался третьим параболическим зеркалом ПЗ₃ ($NA = 1$, $F = 5 \text{ см}$) на образец перпендикулярно его поверхности. Второй лазерный импульс (используемый для возбуждения ВГ) проходил через поляризационный аттенюатор ($\lambda/2$ и призму Глана ПГ1) и фокусировался линзой Л3 на образец, коллинеарно с терагерцовым импульсом. Размер оптического пучка на образце составлял около 100 мкм и был меньше размера терагерцового пучка (~500 мкм). Временная задержка между терагерцовым и возбуждающим оптическим импульсами контролировалась линией задержки, размещенной в плече терагерцовой накачки. Генерируемое в образце (в направлении распространения) излучение ВГ детектировалось фотоэлектронным умножителем (ФЭУ). Количество обнаруженных фотонов ВГ (соответствующее сигналу ВГ) подсчитывалось из 15000 лазерных импульсов для каждого положения линии задержки. Нежелательное (фоновое) излучение второй гармоники, формируемое в оптических элементах перед образцом, блокировалось цветным светофильтром (КС19). После генерации ВГ в образце возбуждающее оптическое излучение блокировалось фильтром ВГ39. Кроме того, узкополосный полосовой фильтр (ПФ), размещенный перед ФЭУ, пропускал только генерируемое излучение ВГ. Поляризации поля терагерцового импульса, а также полей первой и второй оптических гармоник были параллельны (перпендикулярны плоскости чертежа на Рисунке 4.5) и контролировались поляризаторами ТП, призмами Глана ПГ1 и ПГ2, соответственно (терагерцовые поляризаторы ТП также были использованы в последующих экспериментах для ослабления терагерцового поля, см. п. 4.3).

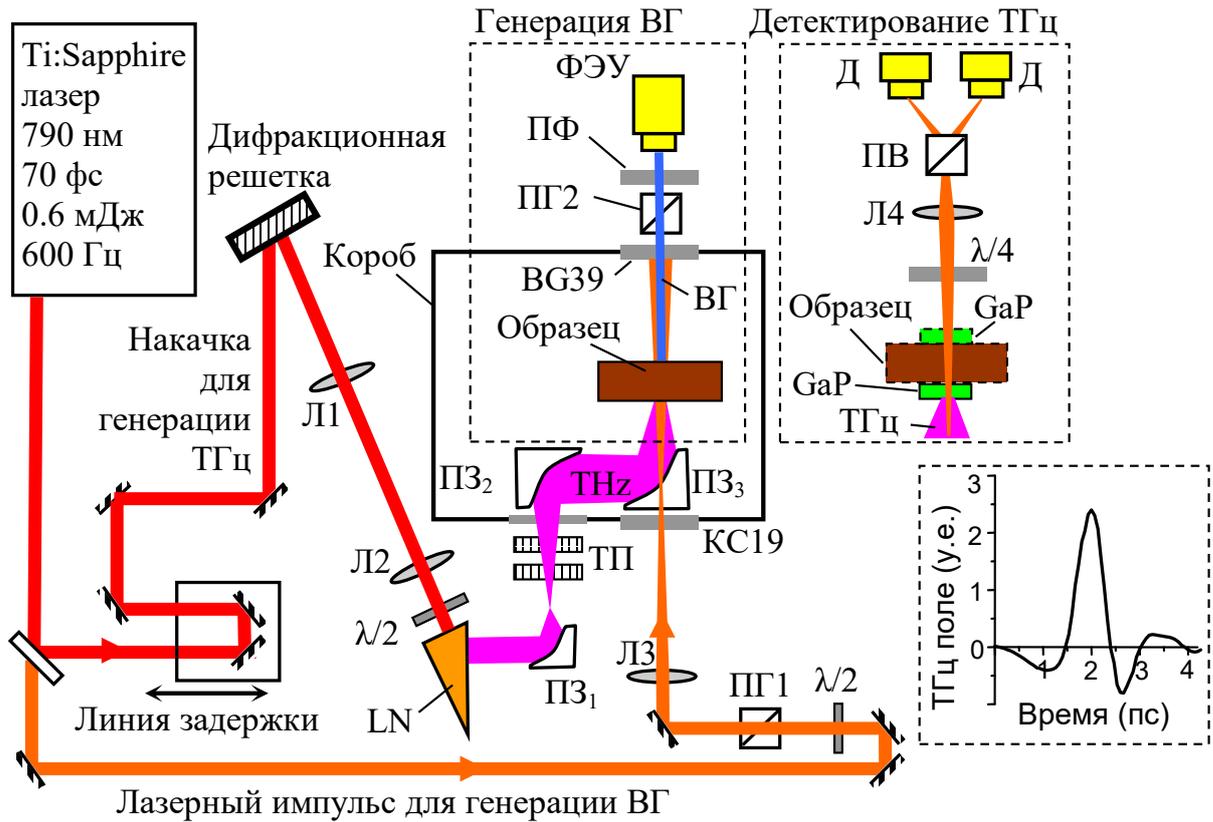


Рисунок 4.5. Схема экспериментальной установки. Л1-Л4 – линзы, ПЗ₁-ПЗ₃ – внеосевые параболические зеркала, LN – LiNbO₃, ТП – пара терагерцовых поляризаторов, $\lambda/4$ и $\lambda/2$ – четвертьволновая и полуволновая пластинки, ПФ, КС19, BG39 – светофильтры, ПГ1, ПГ2 – призмы Глана, Д – фотодиод, ФЭУ – фотоэлектронный умножитель. Во вставке внизу справа показана характерная временная форма терагерцового импульса в фокусе параболического зеркала ПЗ₃.

В качестве образца была использована пластина плавленого кварца толщиной 3 мм. Входная грань образца располагалась в геометрическом фокусе параболического зеркала ПЗ₃. Как оказалось, в ходе проведения экспериментов в воздухе фиксировался сигнал ВГ даже при отсутствии образца. Данный сигнал был сравним по величине с сигналом, генерируемым при наличии образца. Причина его возникновения связана возбуждением ВГ при совместном распространении оптического и терагерцового импульсов в воздухе после их пространственного совмещения на параболическом зеркале ПЗ₃. Несмотря на типично малую нелинейность газа, благодаря большой длине когерентности, величина второй гармоники от окружающего газа может быть сравнима или даже превышать сигнал ВГ от образца (см. обсуждение влияния воздуха на генерацию ВГ в п. 4.3). Чтобы

минимизировать паразитную генерацию ВГ, образец, а также параболические зеркала ПЗ₂ и ПЗ₃ были помещены в короб, заполненный гелием (гелий обладает примерно в 20 меньшей кубической нелинейностью по сравнению с воздухом [181]). Это позволило уменьшить нежелательную генерацию ВГ в окружающем газе примерно на два порядка.

Терагерцовые электрические поля вблизи входной и выходной поверхностей слоя измерялись с помощью обычного метода электрооптического стробирования с использованием кристалла GaP толщиной 200 мкм (см. схему детектирования терагерцового поля на Рисунке 4.5). Измерения вблизи входной поверхности проводились без образца и дали пиковую величину терагерцового поля (в воздухе) ~ 80 кВ/см (характерная временная форма показана во вставке на Рисунке 4.5). Используя коэффициент прохождения Френеля, можно оценить напряженность терагерцового поля внутри плавленого кварца ~ 55 кВ/см. Когда терагерцовое поле измерялось вблизи выходной грани образца, кристалл GaP помещался вблизи этой грани (на расстоянии < 1 мм). Измеренное пиковое поле составляло ~ 20 кВ/см (в воздухе), что соответствует полю на выходной поверхности образца. Помимо разницы в амплитудах наблюдалось различие во временных формах терагерцового поля на входной и выходной гранях образца. Это объясняется дифракцией и поглощением терагерцового импульса в плавленом кварце.

На Рисунке 4.6 показана измеренная зависимость сигнала ВГ S (число детектируемых фотонов ВГ) от времени задержки t_d между оптическим и терагерцовым импульсами. Данная зависимость имеет два четко выраженных всплеска: первый вблизи $t_d = 0$ и второй (с 7.2 раза меньшей амплитудой) при $t_d = 4,8$ пс. Между этими всплесками не обнаружено значимого (выше уровня шума) излучения ВГ. Этот результат хорошо согласуется с предсказанием теории генерации ВГ в адиабатическом режиме. Действительно, с учетом центральной длины волны терагерцового импульса $\lambda_T \sim 300$ мкм (см. вставку терагерцового спектра на Рисунке 4.6), в правой части неравенства (4.13) имеем $\lambda_T/2(n_T - n_\omega) = 300$ мкм, что существенно превышает когерентную длину основной и второй гармоник излучения титан-сапфирового лазера $L_c \approx 10$ мкм (см. параметры плавленого кварца в подписи к Рисунку 4.2). Следовательно, условие (4.13) выполняется. Согласно теории генерации в адиабатическом режиме, сигнал ВГ в первом всплеске (при $|t_d| < 0,5$ пс) должен соответствовать генерации свободного импульса ВГ и отслеживать профиль квадрата терагерцового поля на входной поверхности образца

(первый член в уравнении (4.22)). Такое поведение хорошо согласуется с экспериментальной зависимостью $S(t_d)$.

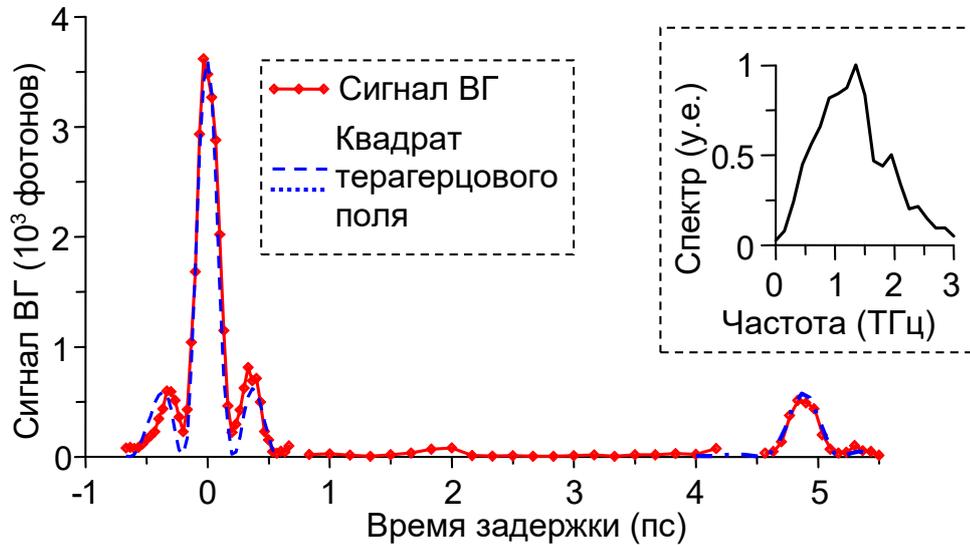


Рисунок 4.6. Экспериментально измеренный сигнал ВГ (красные точки), измеренный в 3-мм пластине плавленого кварца, в зависимости от временной задержки между оптическим и терагерцовым импульсами. Пунктирная и штрихпунктирная линии (вблизи $t_d \approx 0$ и $t_d \approx 4,8$ пс, соответственно) показывают квадрат напряженности терагерцового поля, измеренного у входной и выходной поверхностей, соответственно. Во вставке - спектр терагерцового поля, полученный у входной грани образца.

При $0,5 < t_d < 4,5$ пс оптический и терагерцовый импульсы перекрываются в объеме слоя. Согласно теории, в области перекрытия возникает поле ВГ, которое не излучается из слоя. Действительно, в эксперименте на этом интервале времен задержек не наблюдалось сигнала ВГ.

Когда оптический импульс встречается с терагерцовым импульсом на выходной грани слоя ($4,5 < t_d < 5,5$ пс), сгенерированный в объеме среды вынужденный импульс ВГ излучается в свободное пространство. Согласно теории, сигнал ВГ должна быть пропорционален квадрату терагерцового поля на выходной поверхности слоя (второе слагаемое в уравнении (4.22)). Принимая во внимание, что в эксперименте пиковое терагерцовое поле на выходной поверхности было в 2,75 раза меньше поля на входной поверхности, соотношение между величинами первого и второго всплесков сигналов ВГ

должно отличаться примерно в 7.6 раз, что хорошо согласуется с экспериментальными результатами (в эксперименте отношение максимумов двух сигналов составляло 7.2). Кроме того, квадрат терагерцового поля (штрихпунктирная кривая при $t_d > 4$ пс на Рисунке 4.6) хорошо отслеживает измеренный $S(t_d)$.

4.2. Обнаружение скрытых неоднородностей в прозрачных материалах по наведенной генерации второй оптической гармоники

Теоретически предсказанный и экспериментально продемонстрированный эффект подавления излучения ВГ из объема среды в адиабатическом режиме взаимодействия оптического и терагерцового импульсов может быть использован для обнаружения неоднородностей кубической нелинейной восприимчивости даже тех в образцах, в которых линейные свойства однородны или имеют слабый контраст. На Рисунке 4.7 показан принцип работы предложенной методики. Фемтосекундный лазерный импульс с центральной частотой ω_0 (длина волны $\lambda_0 = 2\pi c/\omega_0$) и пикосекундный терагерцовый импульс падают на образец с взаимной временной задержкой t_d . Предполагается, что образец прозрачен как в оптическом, так и в терагерцовом диапазонах и содержит неоднородность, например, тонкий слой другого материала с близкой (или одинаковой) линейной диэлектрической проницаемостью, но отличной нелинейной восприимчивостью третьего порядка $\chi^{(3)}$ по сравнению с окружающим объемным материалом. Из-за различия оптического (n_ω^b) и терагерцового (n_T^b) показателей преломления объемного материала, оптический и терагерцовый импульсы распространяются с разными скоростями. Они перекрываются в области, положение которой в образце определяется временной задержкой t_d , а толщина области равна длине разбегания $L_w^b = c\tau_T/|n_T^b - n_\omega^b|$ (см. выражение (4.17)), где τ_T – длительность терагерцового импульса. Например, для $|n_T^b - n_\omega^b| \approx 0,5$ (плавленный кварц [179]) и $\tau_T = 0,3$ пс получаем $L_w^b \approx 0.18$ мм. Предполагается, что L_w^b существенно превышает длину когерентности между основной оптической и второй гармониками $L_c^b = \lambda_0/(4|n_{2\omega}^b - n_\omega^b|)$, где $n_{2\omega}^b$ – показатель преломления объемного материала на частоте $2\omega_0$. Для плавленного кварца с $n_\omega^b = 1.453$, $n_{2\omega}^b = 1.47$ и $\lambda = 790$ нм $L_c^b \approx 10$ мкм, что значительно меньше L_w^b . Это условие гарантирует отсутствие генерации ВГ при перекрытии оптического и терагерцового импульсов в объемном материале (см. п. 4.1). В

этом случае оптический импульс, проходящий через область нелинейности второго порядка, индуцированной терагерцовым полем, создает нелинейную поляризацию на частоте $2\omega_0$, которая адиабатически следует за терагерцовым полем и не излучает свободно распространяющееся излучение ВГ (см. Рисунок 4.7(а)). Излучение ВГ генерируется только при перекрытии оптического и терагерцового импульсов на границе образца или, что более важно, на границах внутренней неоднородности в образце (скрытый слой на Рисунке 4.7(б)). Это и позволяет детектировать скрытый слой. Разрешение по глубине детектирования имеет порядок L_w^b (оно может быть значительно улучшено до $\sim c\tau_T/(n_T^b + n_\omega^b)$ при использовании встречно распространяющихся оптического и терагерцового импульсов, но при этом должно быть выполнено более строгое условие адиабатичности $L_c^b \ll c\tau_T/(n_T^b + n_\omega^b)$). Поперечное разрешение определяется размером оптического пучка и может достигать субмикронного масштаба.

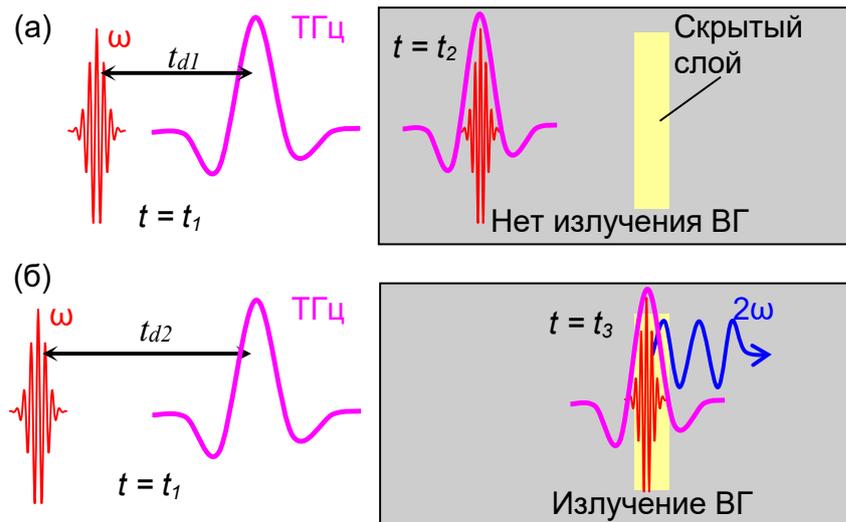


Рисунок 4.7. Иллюстрация принципа работы предложенной методики обнаружения скрытых неоднородностей. Пикосекундный терагерцовый и фемтосекундный оптический импульсы падают на образец с неоднородным $\chi^{(3)}$ (неоднородность показана в виде скрытого слоя). (а) Если импульсы перекрываются в однородной области (временная задержка t_{d1}), то вторая гармоника (ВГ) не излучается из образца. (б) При наложении импульсов на границах неоднородности (временная задержка t_{d2}), вторая гармоника излучается.

Для экспериментальной демонстрации предложенной методики было использовано два образца, состоящие из двух пластин плавленого кварца (SiO_2) со слоем

оптического клея между ними. В первом образце (образец 1) толщина слоя оптического клея составляла 15 мкм, а пластины SiO_2 имели одинаковую толщину 0,95 мм (левая вставка на Рисунке 4.8(а)). Во втором образце (образец 2) слой клея имел клиновидную форму с толщиной 17 мкм на одном конце и 35 мкм на другом, при этом обе пластины SiO_2 были толщиной 3 мм (правая вставка на Рисунке 4.8(б)). Оптические показатели преломления плавленого кварца (~ 1.46) и клея (~ 1.57) близки друг к другу, т.е. линейный оптический контраст между ними мал. Тем не менее, это не помешало детектированию слоя клея предложенной методикой, поскольку она основана на обнаружении неоднородности нелинейных свойств материала. В принципе, детектирование возможно даже при нулевом линейном оптическом контрасте между слоями данных сэндвич-структур. Также, для объяснения результатов эксперимента был использован дополнительный образец 3, состоящий из двух 0,95 мм пластин SiO_2 с 20 мкм воздушным зазором между ними (правая вставка на Рисунке 4.8(а)).

Схема эксперимента полностью аналогична описанной в п. 4.1 схемы для демонстрации адиабатического режима генерации в плавленом кварце (см. Рисунок 4.5). Вместо плавленого кварца, в фокус внеосевого параболического зеркала ПЗ₃ устанавливались исследуемые сэндвич-структуры. На Рисунках 4.8(а,б) представлены зависимости сигнала второй гармоники от временной задержки t_d между оптическим и терагерцовым импульсами для всех трех образцов. Для образца 1 (Рисунок 4.8(а)) наблюдается три пика, форма которых качественно соответствует квадрату волновой формы терагерцового поля (левая вставка на Рисунке 4.8(б)). Пики при $t_d = 0$ и 3 пс соответствуют сигналам от входной и выходной границ образца, тогда как пик при $t_d = 1,5$ пс возникает от слоя клея. Для подтверждения этого вывода образец 1 был заменен на образец 3 с воздушным зазором вместо слоя клея. Это привело к исчезновению пика при 1,5 пс (Рисунок 4.8(а)), не повлияв на два других пика.

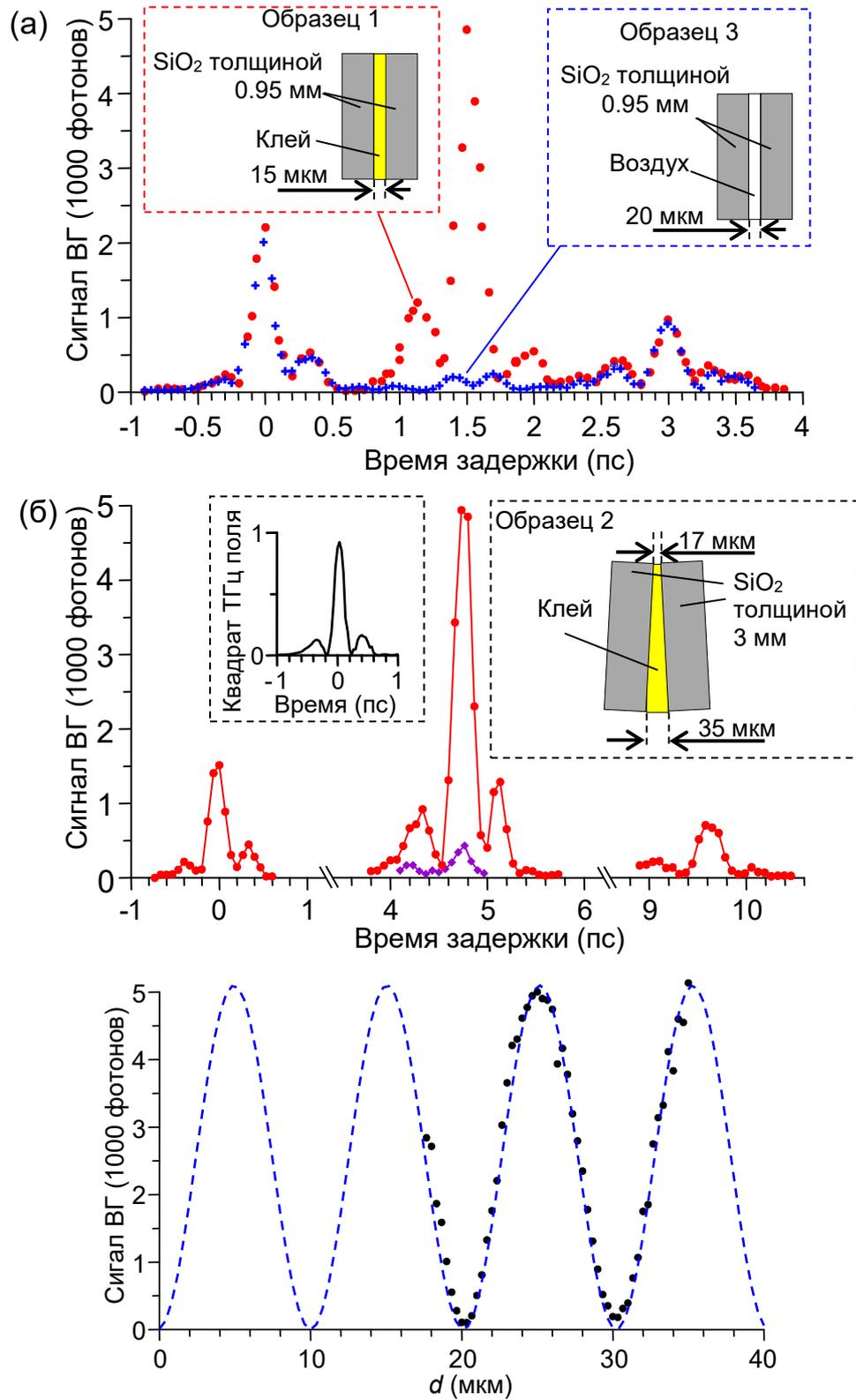


Рисунок 4.8. (а,б) Сигнал ВГ в зависимости времени задержки для (а) образца 1 (красные кружки) и образца 3 (синие крестики), (б) образца 2 при толщине слоя оптического клея 35 мкм (красные кружки) и 19.5 мкм (фиолетовые ромбики). (в) Зависимость сигнала ВГ от толщины оптического клея для образца 2 при времени задержки 4,8 пс.

Зависимость сигнала второй гармоники от времени задержки для образца 2 (Рисунок 4.8(б)) в целом аналогична зависимости для образца 1, но имеет некоторые отличия. Во-первых, высота первого пика (при $t_d = 0$) примерно в 1.4 раза меньше, чем на Рисунке 4.8(а). Во-вторых, второй и третий пики на Рисунке 4.8(б) наблюдаются при временных задержках примерно в 3 раза больших, чем на Рисунке 4.8(а): 4.8 пс вместо 1.5 пс и 9.6 пс вместо 3 пс, соответственно. В-третьих, высота второго пика резко уменьшается при поперечном (относительно лазерного и терагерцового пучков) смещении образца 2 (см. красную и фиолетовую кривые на Рисунке 4.8(б) около времени задержки 4,8 пс для толстого (35 мкм) и тонкого (19,5) мкм слоев клея). Более того, при фиксированной задержке 4.8 пс сигнал второй гармоники демонстрирует синусоидальную зависимость от толщины слоя клея с периодом ~ 10 мкм (см. Рисунок 4.8(в)).

Для объяснения полученных экспериментальных результатов обобщим теорию, развитую в п. 4.1, на случай трехслойной структуры, моделирующих использованные в экспериментах образцы. Комплексное электрическое поле на частоте $2\omega_0$, генерируемое в произвольном слое структуры, может быть приближенно записано как:

$$E_{2\omega}(t, z) = \frac{4\pi\chi_m^{(3)} E_T E_0^2}{(n_{2\omega}^m)^2 - (n_\omega^m)^2} \left\{ G(t_d) F\left(t - t_d - \frac{n_{2\omega}^m z}{c}\right) e^{i2\omega_0(t - t_d - n_{2\omega}^m z/c)} - G\left[t_d - \frac{(n_T^m - n_\omega^m)z}{c}\right] F\left(t - t_d - \frac{n_\omega^m z}{c}\right) e^{i2\omega_0(t - t_d - n_\omega^m z/c)} \right\}, \quad (4.23)$$

где индекс $m = b, h$ обозначает объемный материал b (плавленый кварц) и скрытый слой h (клей), $\chi_m^{(3)}$ - нелинейная восприимчивость слоя, E_0 - максимальное значение огибающей оптического поля, $F(t)$ - нормированная огибающая оптической интенсивности, E_T - амплитуда терагерцового поля, $G(t)$ - нормированная форма терагерцового импульса, и z - координата в перпендикулярном к слою направлении, отсчитываемая от входной границы слоя. Первое слагаемое в фигурных скобках соответствует свободно распространяющейся волне ВГ, генерируемой на входной границе слоя. Второе слагаемое соответствует вынужденному решению волнового уравнения для ВГ, которое распространяется вместе с основным оптическим импульсом. На выходной границе слоя обе волны излучаются как свободно распространяющееся излучение. Полное поле ВГ, излучаемое трехслойной структурой, может быть найдено как суперпозиция волн, излучаемых каждым слоем. Будем пренебрегать отражениями на границах SiO₂-клей (из

малого контраста показателей преломления), также не будем учитывать отражение на границе SiO₂-воздух. Отражение терагерцовых и оптических импульсов на выходной границе SiO₂ может давать дополнительные слабые сигналы второй гармоники, но при значительно больших временах задержки, чем на Рисунке 4.8.

Применим уравнение (4.23) для анализа экспериментальных результатов. Будем основываться на условии, что длина разбегания L_w^b существенно меньше толщины кварцевой пластины D , $L_w^b \ll D$. Действительно, для длительности терагерцового импульса $\tau_T \approx 0.3$ пс (левая вставка на Рисунке 4.8(б)) длина разбегания составляет $L_w^b \approx 0.18$ мм, что значительно меньше толщины кварцевых пластин ($D = 0.95$ или 3 мм) для всех образцов.

Для малых временных задержек, когда оптический и терагерцовый импульсы перекрываются в области входной границы трехслойного образца, только свободно распространяющаяся волна, генерируемая на входной границе, вносит вклад в сигнал ВГ. Сигнал ВГ S_{entr} пропорционален энергии излучения ВГ и может быть выражен из уравнения (4.23) как

$$S_{\text{entr}} \sim \frac{E_T^2 E_0^4 [\chi_b^{(3)}]^2}{[(n_{2\omega}^b)^2 - (n_\omega^b)^2]^2} G^2(t_d). \quad (4.24)$$

Для больших временных задержек, когда оптический и терагерцовый импульсы перекрываются вблизи выходной границы трехслойного образца, только вынужденная волна, генерируемая в третьем слое, вносит вклад в SH сигнал:

$$S_{\text{exit}} \sim \frac{E_T^2 E_0^4 [\chi_b^{(3)}]^2}{[(n_{2\omega}^b)^2 - (n_\omega^b)^2]^2} G^2(t_d - 2\Delta t_d^b - \Delta t_d^h), \quad (4.25)$$

где $\Delta t_d^b = (n_T^b - n_\omega^b)D/c$, $\Delta t_d^h = (n_T^h - n_\omega^h)d/c$, d – толщина клеевого слоя.

Для промежуточных временных задержек, $t_d \approx \Delta t_d^b$, когда оптический и терагерцовый импульсы перекрываются в слое клея, сигнал второй гармоники формируется четырьмя волнами: вынужденной волной, генерируемой в первой пластине SiO₂ и излучаемой на границе SiO₂-клей, свободно распространяющейся волной, генерируемой на границе SiO₂-клей, вынужденной волной, генерируемой в слое клея и излучаемой на границе SiO₂-кварц, свободно распространяющейся волной, генерируемой на границе клей-SiO₂. В предположении, что свободно распространяющиеся и вынужденные импульсы ВГ не разделяются в слое клея (т.е. при $d \ll c\tau_0/|n_{2\omega}^h - n_\omega^h|$), где

τ_0 - длительность оптического импульса), сигнал второй гармоники может быть записан как:

$$S_{\text{layer}} \sim E_T^2 E_0^4 \left[\frac{\chi_h^{(3)}}{(n_{2\omega}^h)^2 - (n_\omega^h)^2} - \frac{\chi_b^{(3)}}{(n_{2\omega}^b)^2 - (n_\omega^b)^2} \right]^2 |G(t'_d) e^{-i\Delta\varphi} - G(t'_d - \Delta t_d^h)|^2, \quad (4.26)$$

где $t'_d = t_d - \Delta t_d^b$, $\Delta\varphi = \pi d/L_c^h$, $L_c^h = \lambda/(4|n_{2\omega}^h - n_\omega^h|)$. В отличие от генерации ВГ в изолированном нелинейном слое (см. п. 4.1), сигнал второй гармоники от тонкого скрытого слоя может как усиливаться, так и ослабляться окружающим материалом, в зависимости от знака второго слагаемого в квадратных скобках уравнения (4.26).

Уравнения (4.24)-(4.26) позволяют объяснить экспериментальные результаты, представленные на Рисунке 4.8. Во-первых, в соответствии с уравнениями (4.24) и (4.25), сигналы второй гармоники от входной и выходной границ трехслойных образцов действительно пропорциональны квадрату формы терагерцового импульса. Некоторые отклонения амплитуды и формы экспериментальных сигналов от предсказаний уравнений (4.24)-(4.26) могут быть объяснены искажением терагерцового импульса в образце из-за поглощения и дифракции. Дисперсионное уширение терагерцового импульса в плавленном кварце пренебрежимо мало, дисперсионная длина оценивается около 10 см [182]. Меньшая амплитуда сигнала второй гармоники от входной границы на Рисунке 4.8(б) по сравнению с Рисунком 4.8(а) объясняется меньшей напряженностью терагерцового поля на границе образца 2. В ходе экспериментов положение образцов вдоль лазерного и терагерцового пучков регулировалось для максимизации сигнала второй гармоники от клеевого слоя. Из-за большей толщины кварцевых пластин в образце 2 его входная граница находилась на большем расстоянии от фокальной перетяжки терагерцового пучка, чем граница образца 1. Это привело к уменьшению напряженности терагерцового поля на входной границе образца 2.

Перейдем теперь к анализу наиболее важных пиков (при 1,5 пс и 4,8 пс) на Рисунках 4.8(а) и 4.8(б), возникающих вследствие генерации ВГ в клеевом слое. Как видно из уравнения (4.26), положение пика определяется временем задержки, за которое оптический импульс догоняет терагерцовый импульс на толщине первой кварцевой пластины, т.е. $\Delta t_d^b = (n_T^b - n_\omega^b)D/c$. На практике, положение пика может быть использовано для определения глубины залегания скрытого слоя. Действительно, используя значение $n_T^b - n_\omega^b = 0.51$ для кварца [182], из времени задержки $\Delta t_d^b = 1,5$ и

4,8 пс получаем $D = 0,95$ мм и 3 мм, соответственно, что хорошо согласуется с толщинами кварцевых пластин в образцах 1 и 2.

Если промежуточный слой в трехслойной структуре достаточно тонкий, т.е. $\Delta t_d^h \ll \tau_T$, уравнение (4.26) можно упростить:

$$S_{\text{layer}} \sim E_T^2 E_0^4 G^2 (t_d') [1 - \cos(\pi d/L_c^h)] \left[\frac{\chi_h^{(3)}}{(n_{2\omega}^h)^2 - (n_\omega^h)^2} - \frac{\chi_b^{(3)}}{(n_{2\omega}^b)^2 - (n_\omega^b)^2} \right]^2. \quad (4.27)$$

Максимальная толщина клеевого слоя в исследуемых образцах $d = 35$ мкм (вставка на Рисунке 4.8(б)) соответствует $\Delta t_d^h = 60$ фс, что в несколько раз меньше длительности терагерцового импульса (~ 300 фс). Следовательно, уравнение (4.27) может быть применимо для анализа экспериментальных результатов. Согласно этому уравнению, сигнал ВГ от тонкого промежуточного слоя является синусоидальной функцией толщины слоя d . Это предсказание хорошо согласуется с Рисунком 4.8(в). Аппроксимируя экспериментальные данные на Рисунке 4.8(в) уравнением (4.27), находим $L_c^h = 5$ мкм и, следовательно, $|n_{2\omega}^h - n_\omega^h| = 0.04$. Кроме того, совместное использование уравнений (4.27) и (4.24) позволяет определить нелинейную восприимчивость материала (клея) в тонком скрытом слое через нелинейную восприимчивость объемного материала (плавленого кварца):

$$\chi_h^{(3)} = \chi_b^{(3)} \frac{(n_{2\omega}^h)^2 - (n_\omega^h)^2}{(n_{2\omega}^b)^2 - (n_\omega^b)^2} \left(1 \pm \sqrt{\frac{S_{\text{layer}}^{\text{max}}}{2S_{\text{entr}}^{\text{max}}}} \right) \approx \chi_b^{(3)} \frac{L_c^b}{L_c^h} \left(1 \pm \sqrt{\frac{S_{\text{layer}}^{\text{max}}}{2S_{\text{entr}}^{\text{max}}}} \right), \quad (4.28)$$

где $S_{\text{entr}}^{\text{max}}$ – максимальный (по t_d) сигнал второй гармоники от входной границы образца, а $S_{\text{layer}}^{\text{max}}$ – максимальный (по d и t_d) сигнал от тонкого скрытого слоя. В образце 1 $S_{\text{layer}}^{\text{max}} \approx 2S_{\text{entr}}^{\text{max}}$ (Рисунок 4.8(а)) и $L_c^b \approx 2L_c^h$. Подставляя эти соотношения в уравнение (4.28) (с выбором положительного знака), получаем, что нелинейная восприимчивость оптического клея примерно в 4 раза выше, чем у плавленого кварца (выбор отрицательного знака дал бы нереалистично малые значения $\chi_h^{(3)}$). На практике, для определения максимального значения $S_{\text{layer}}^{\text{max}}$ для скрытого слоя фиксированной (неизвестной) толщины можно наклонять образец относительно лазерного и терагерцового пучков, как в технике измерения нелинейности по интерференционным полосам Макера (Maker fringes) [91]. Преимущество предложенного здесь метода измерения $\chi^{(3)}$ по сравнению с традиционной техникой интерференционных полос

Макера заключается в отсутствии паразитных вкладов в сигнал второй гармоники от объемного материала (плавленого кварца), окружающего неизвестный материал (клей).

Следует отметить, что уравнение (4.27) становится несправедливым при значениях $1 - \cos(\pi d/L_c^h)$, близких к нулю, то есть при $\pi d/L_c^h \approx 2\pi k$, где $k = 0, 1, 2, \dots$ (вблизи минимумов кривой на Рисунке 4.8(в)). В этом случае требуется более точный переход от уравнения (4.26) к уравнению (4.27). А именно, последний множитель в уравнении (4.26) должен быть аппроксимирован как:

$$|G(t'_d)e^{-i\Delta\varphi} - G(t'_d - \Delta t_d^h)|^2 \approx \left| G(t'_d)(1 - e^{-i\Delta\varphi}) - \frac{dG}{dt'_d} \Delta t_d^h \right|^2. \quad (4.29)$$

При $\Delta\varphi \approx 2\pi k$ член с производной в правой части уравнения (4.29) может стать доминирующим и, следовательно, должен использоваться в уравнении (4.27) вместо $G^2(t'_d)[1 - \cos(\pi d/L_c^h)]$. В результате форма сигнала второй гармоники будет следовать квадрату временной производной от формы терагерцового импульса. Сам сигнал будет очень слабым из-за множителя $|\Delta t_d^h|^2$ в уравнении (4.29). В образце 3 как раз выполняется описанный случай: параметр $\pi d/L_c^h$ составляет $\sim 10^{-3}$, то есть близок нулю, и форма сигнала второй гармоники от воздушного зазора близка к квадрату временной производной от формы терагерцового импульса (см. синие крестики на Рисунке 4.8(а)).

4.3. Диагностика свойств непрозрачных материалов по наведенной генерации отраженной второй оптической гармоники

Рассмотрим теперь возможность измерения с помощью терагерцовых импульсов нелинейной восприимчивости $\chi^{(3)}(2\omega; \omega, \omega, 0)$ материалов, непрозрачных для второй гармоники оптического излучения (в частности, на длине волны 395 нм). В качестве таких материалов в эксперименте использовались теллуридные и халькогенидные стекла, а также кристаллический кремний с ориентацией (111) и удельным сопротивлением 1-5 кОм/см (концентрация носителей $\sim 10^{12}-10^{13}$ см⁻³). Образцы теллуридных стекол, легированных оксидами вольфрама, лантана и висмута (или алюминия) имели два варианта состава (мол. %): 71.2TeO₂-23.7WO₃-4La₂O₃-1.1B₂O₃ (TWLB) и 70.6TeO₂-23.5WO₃-4La₂O₃-1.9Al₂O₃ (TWLA). Образцы халькогенидных стекол были трех видов: коммерчески доступные инфракрасные оптические стекла ИКС23 и ИКС25 (производства Государственного оптического института им. С.И. Вавилова), а также As₂S₃. Стекло ИКС23 имеет состав As-S-Se, где Se является малой добавкой, а оптическая

прозрачность лежит в диапазоне 0.6-9 мкм. Стекло ИКС25 имеет состав As-Se-Sb-Sn, где Sb и Sn являются малыми добавками, а оптическая прозрачность лежит в диапазоне 1-17 мкм. Для калибровки измерений использовался образец плавленого кварца (SiO_2) толщиной 2 мм. Ввиду непрозрачности исследуемых образцов (за исключением SiO_2), в эксперименте измерялась вторая гармоника, наведенная терагерцовым полем на входной границе и отраженная от нее в свободное пространство.

Для экспериментальных исследований использовалась установка, описанная ранее в п. 4.1 (см. схему на Рисунке 4.5) и модифицированная для измерения отраженной ВГ (см. Рисунок 4.9). В модифицированной схеме образец располагался под углом 45° относительно направления падения оптического и терагерцового импульсов (в области фокуса параболического зеркала ПЗ₃ на Рисунке 4.5). Максимальная напряженность терагерцового поля в фокусе параболического зеркала ПЗ₃ составляла около 170 кВ/см и 250 кВ/см при исследовании стеклянных образцов и кремния, соответственно. При падении оптического и терагерцового импульсов на образец, вторая оптическая гармоника генерировалась как в направлении распространения импульсов, так и в зеркальном направлении. Для всех образцов, за исключением SiO_2 , прошедшая ВГ поглощалась в образце и только отраженная ВГ (от входной грани образца)

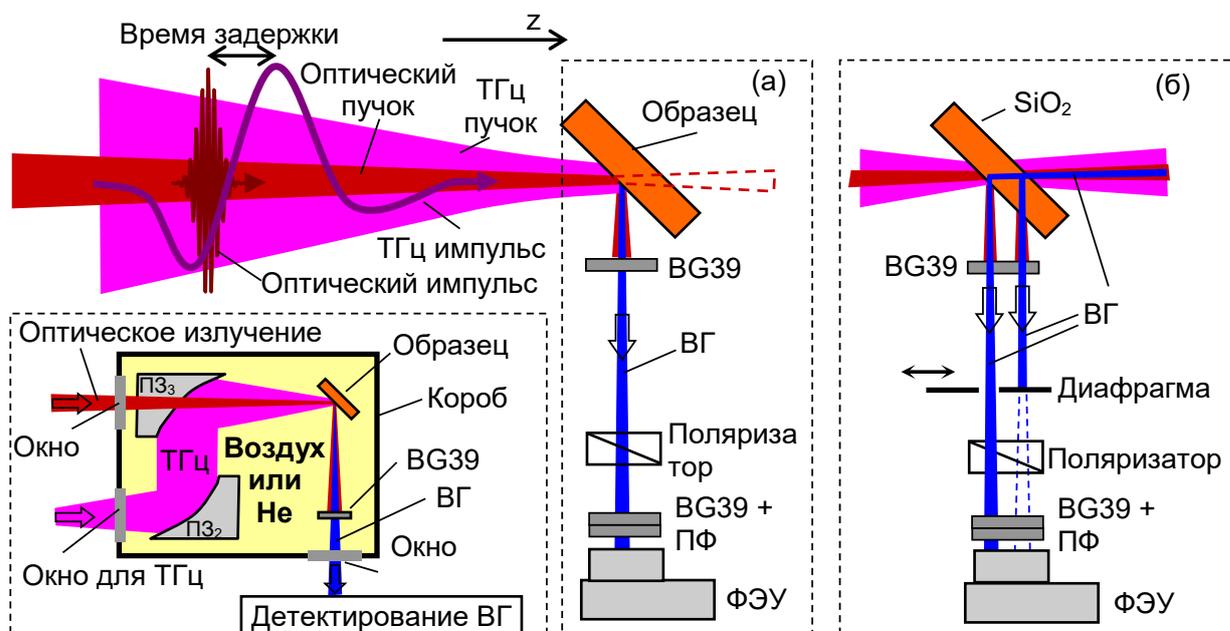


Рисунок 4.9. Схема генерации и детектирования отраженной ВГ для (а) непрозрачных и (б) прозрачных для ВГ образцов. Во вставке внизу слева показано расположение элементов в коробе, заполненного воздухом или гелием (He).

детектировалась ФЭУ (вариант (а) на Рисунке 4.9). В случае SiO_2 , излучение ВГ, генерируемое в направлении прохождения, достигало выходной поверхности образца и создавало дополнительный пучок ВГ за счет френелевского отражения (см. вариант (б) на Рисунке 4.9). Это излучение также регистрировалось отдельно (с помощью диафрагмы) и использовалось для калибровки измерений.

Как уже отмечалось выше, особенностью использованной экспериментальной схемы является генерация дополнительного (паразитного) излучения ВГ при совместном распространении оптического и терагерцового импульсов в газе, окружающем образец (использование вакуумной камеры решает данную проблему, но существенно усложняет эксперимент). Ожидалось, что в гелиевой атмосфере дополнительный сигнал ВГ будет пренебрежимо мал, однако из-за малости отраженного сигнала ВГ от некоторых образцов, это оказалось не так.

Рассмотрим сначала результаты исследований генерации наведенной ВГ в стеклах. На Рисунке 4.10 представлены нормированные сигналы ВГ (коэффициенты нормировки указаны для соответствующих сигналов) в зависимости от времени задержки между оптическим и терагерцовым импульсами, полученные от входной грани образцов SiO_2 , TWLA и As_2S_3 , а также от выходной грани образца SiO_2 . Измерения сделаны при заполнении короба как воздухом, так и гелием (см. вставку на Рисунке 4.9). Сигнал ВГ, измеренный в воздухе, всегда опережает сигнал от того же образца в гелии. Это связано с более быстрым распространением терагерцового импульса между параболическими зеркалами ПЗ₂ и ПЗ₃ (см. вставку на Рисунке 4.9) при заполнении короба гелием (возбуждающий ВГ лазерный пучок всегда проходил в воздухе до совмещения с терагерцовым пучком после параболического зеркала ПЗ₃). На Рисунке 4.10 можно выделить несколько других особенностей. Во-первых, величины сигналов ВГ для разных типов стекол значительно отличаются (наименьший сигнал был получен от SiO_2 , а наибольший - от халькогенидных стекол), что согласуется с их существенно различающимися нелинейностями. Во-вторых, амплитуды, а также формы сигналов различаются в атмосфере воздуха и гелия, что демонстрирует заметное влияние ВГ, генерируемого в окружающем газе. В-третьих, в некоторых случаях временные профили сигналов ВГ качественно отслеживают квадрат формы терагерцового поля (пунктирная линия на Рисунке 4.10(б) и линия точками на Рисунке 4.10(а)), а в некоторых случаях это правило нарушается (см., например, Рисунок 4.10(в)).

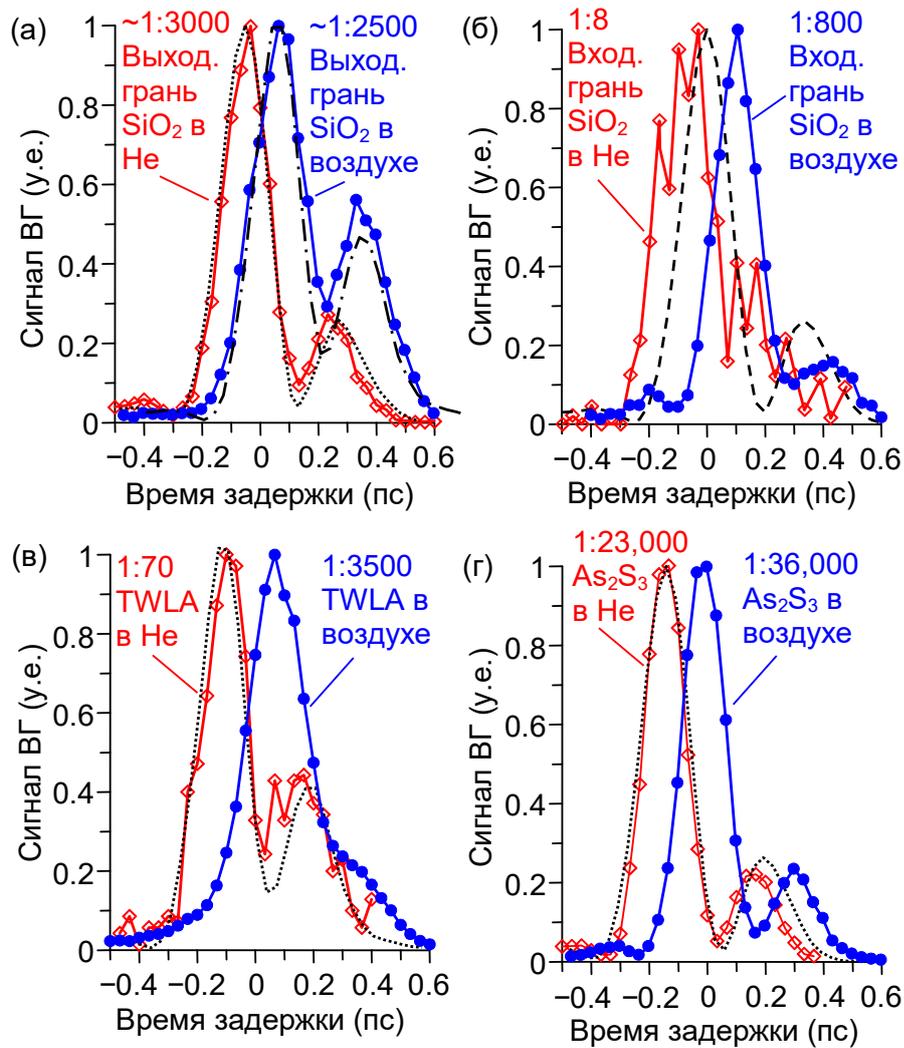


Рисунок 4.10. Нормированный сигнал второй гармоники в зависимости от времени задержки между оптическим и терагерцовым импульсами для: (а,б) SiO₂, (в) TWLA и (г) As₂S₃. Детектирование проводилось (а) с выходной грани SiO₂ и (б-г) с входной грани соответствующих образцов. Красные ромбы - измерения в воздухе, синие заполненные кружки - измерения в гелии. Коэффициенты нормировки указаны для соответствующих кривых. Пунктирная кривая на (б) соответствует квадрату нормированного терагерцового поля. Линии точками и штрихпунктирная линия на (а,в,г) соответствуют теоретическому моделированию (см. текст).

Для объяснения полученных экспериментальных результатов и определения $\chi^{(3)}(2\omega; \omega, \omega, 0)$ исследуемых образцов, представим полный сигнал ВГ $S_{entr}^{samp, gas}(t_d)$, детектируемый от входной грани образца, как суперпозицию вкладов от образца и окружающего газа в следующей форме:

$$S_{entr}^{samp, gas}(t_d) = C_{entr} |A_{ref}^{samp}(t_d) + r_{2\omega}^{samp} A_{ins}^{gas}(t_d)|^2. \quad (4.30)$$

Здесь C_{entr} – коэффициент пропорциональности, $A_{ref}^{samp}(t_d)$ – комплексная амплитуда поля ВГ, генерируемого в направлении отражения от соответствующего образца, $A_{ins}^{gas}(t_d)$ – комплексная амплитуда поля ВГ, генерируемого в газе (воздухе или гелии) перед образцом, $r_{2\omega}^{samp}$ – коэффициент френелевского отражения поля ВГ на границе газ-образец. В общем случае уравнение (4.30) должно также содержать $A_{ref}^{gas}(t_d)$ – комплексную амплитуду поля ВГ, генерируемого в газе после образца. Однако из-за уменьшения основного оптического и терагерцового полей после отражения, $A_{ref}^{gas}(t_d)$ обычно более чем в 10 раз меньше, чем $r_{2\omega}^{samp} A_{ins}^{gas}(t_d)$. Поэтому в большинстве случаев будем пренебрегать $A_{ref}^{gas}(t_d)$. Излучение ВГ, проникающее в SiO₂ и затем отражающееся от выходной грани (с последующим прохождением через входную грань), дает сигнал ВГ

$$S_{exit}^{SiO_2, gas}(t_d) = C_{exit}^{SiO_2} R^{SiO_2} T^{SiO_2} |A_{tr}^{SiO_2}(t_d) + t_{2\omega}^{SiO_2} A_{ins}^{gas}(t_d)|^2, \quad (4.31)$$

где $C_{exit}^{SiO_2} = C_{entr} n_{2\omega}^{SiO_2} \cos(\beta_{2\omega}^{SiO_2}) / \cos(\alpha) \approx 1.8 C_{entr}$, $n_{2\omega}^{samp}$ – показатель преломления образца (SiO₂), $\beta_{2\omega}^{samp}$ – угол преломления ВГ в образце (SiO₂), $A_{tr}^{SiO_2}(t_d)$ – комплексная амплитуда поля ВГ, излучаемого в SiO₂ на входной границе (в направлении распространения возбуждающих импульсов), $t_{2\omega}^{SiO_2} = 0.71$ – коэффициент френелевского прохождения на границе газ-SiO₂ поля ВГ, генерируемого в газе перед SiO₂, $R^{SiO_2} = 0.085$ и $T^{SiO_2} = 0.915$ – коэффициенты отражения и пропускания излучения ВГ от границы SiO₂ (по мощности), соответственно.

Зависимость сигнала ВГ от времени задержки, как следует из уравнений (4.30) и (4.31), существенно зависит от амплитуды, относительной фазы и временных профилей соответствующих компонент. Далее будем предполагать доминирование быстрой (электронной) нелинейности, т.е. считать нелинейный отклик мгновенным как в образцах, так и в газах (см. также обсуждение ниже). Амплитуда поля ВГ $A_{ref}^{samp}(t_d)$, генерируемая от входной грани материала в направлении отражения, почти не зависит от динамики дальнейшего распространения терагерцового импульса в среде (см. п. 4.1, а также [94]). Основным фактором является соотношение глубины проникновения излучения терагерцового излучения (d_{THz}) и длины волны ВГ в материале ($\lambda_{2\omega}/n_{2\omega}^{samp}$), что влияет на фазу $A_{ref}^{samp}(t_d)$ [94]. В исследуемых образцах выполняется условие $d_{THz} \gg \lambda_{2\omega}/n_{2\omega}$, что дает (см. также [180], [94])

$$A_{\text{ref}}^{\text{samp}}(t_d) = -4\pi\chi_{\text{eff}}^{(3)}E_T(t_d)E_\omega^2 \frac{[n_{2\omega}^{\text{samp}} \cos(\beta_{2\omega}^{\text{samp}}) + n_\omega^{\text{samp}} \cos(\beta_\omega^{\text{samp}})]^{-1}}{[n_{2\omega}^{\text{samp}} \cos(\beta_{2\omega}^{\text{samp}}) + \cos(\alpha)]}, \quad (4.32)$$

где $\chi_{\text{eff}}^{(3)} = \frac{3}{2}\chi_{\text{samp}}^{(3)}(2\omega; \omega, \omega, 0)$, n_ω^{samp} и $\beta_\omega^{\text{samp}}$ - показатель преломления образца и угол преломления для основной оптической длины волны, $E_T(t_d)$ - прошедшее терагерцовое поле, связанное с падающими полями $E_T^{\text{ins}}(t_d)$ через коэффициент френелевского пропускания t_T^{samp} (заметим, что в общем случае $E_T(t_d)$ может не повторять $E_T^{\text{ins}}(t_d)$ из-за дисперсии материала), $E_\omega = t_\omega^{\text{samp}}E_\omega^{\text{ins}}$, где E_ω^{ins} - амплитуда и t_ω^{samp} - коэффициент прохождения поля основной гармоники.

В отличие от отраженного поля, амплитуда поля ВГ $A_{\text{tr}}^{\text{samp}}(t_d)$, генерируемого внутри материала (в нашем случае это поле распространяется только в SiO₂), довольно чувствительна к взаимной динамике распространения терагерцовых и оптических импульсов (см. п. 4.1). Поскольку в плавленом кварце выполняется адиабатический режим генерации ВГ, то обобщая развитую в п. 4.1 теорию на случай наклонного падения, получаем:

$$A_{\text{tr}}^{\text{SiO}_2}(t_d) = \frac{4\pi\chi_{\text{eff}}^{(3)}E_\omega^2E_T(t_d)}{(n_{2\omega}^{\text{SiO}_2})^2 - (n_\omega^{\text{SiO}_2})^2} \frac{n_\omega^{\text{SiO}_2} \cos(\beta_\omega^{\text{SiO}_2}) + \cos(\alpha)}{n_{2\omega}^{\text{SiO}_2} \cos(\beta_{2\omega}^{\text{SiO}_2}) + \cos(\alpha)}$$

$$\approx 4\pi \frac{\chi_{\text{eff}}^{(3)}E_\omega^2E_T(t_d)}{(n_{2\omega}^{\text{SiO}_2})^2 - (n_\omega^{\text{SiO}_2})^2}. \quad (4.33)$$

Отметим, что уравнение (4.33) справедливо только для t_d меньших, чем время задержки, необходимая для перекрытия терагерцовых и оптических импульсов на выходной грани слоя SiO₂. (Для использованного слоя SiO₂ толщиной 2 мм это условие дает $t_d < 2$ пс; при $t_d > 2$ пс появляется сигнал ВГ от выходной грани слоя SiO₂, см. п. 4.1).

Комплексная амплитуда поля ВГ $A_{\text{ins}}^{\text{gas}}(t_d)$, генерируемого в газе, в основном определяется пространственно-временной динамикой терагерцового импульса во время совместного распространения с основным оптическим импульсом после параболического зеркала ПЗ₃ (см. вставку на Рисунке 4.9). Оптические и терагерцовые импульсы распространяются в газе с приблизительно одинаковыми скоростями. Однако из-за сильной фокусировки терагерцового пучка (с NA ~ 0.4) и его короткой длительности (около двух периодов поля), значительно изменяются не только амплитуда, но и временная форма терагерцового поля (см. Рисунок 4.11). Таким образом, временная

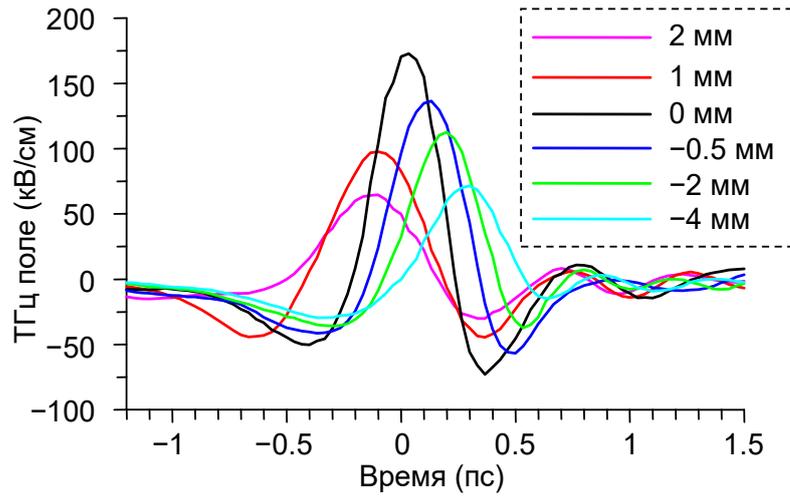


Рисунок 4.11. Временные формы терагерцовое поля при различных координатах z (приведенные во вставке) вдоль направления распространения терагерцового импульса (см. Рисунок 4.9).

форма $A_{\text{ins}}^{\text{gas}}(t_d)$ не должна повторять локальное в пространстве поле $E_{\text{T}}^{\text{ins}}(t_d)$, измеренное вблизи фокуса параболического зеркала ПЗз (где был размещен образец). С другой стороны, самое сильное терагерцовое поле и, как следствие, наиболее эффективная генерация ВГ возникает в определенной области вблизи фокуса. Таким образом, можно предположить, что ВГ генерируется в некотором эффективном газовом слое, который, согласно оценкам, имеет толщину $D \approx 1$ см. В таком слое электрическое поле можно рассматривать как некоторое усредненное терагерцовое поля $E_{\text{av}}^{\text{ins}}(t_d)$ с временным профилем, независимым от z . Поскольку входная поверхность образцов устанавливалась при $z = 0$, то согласно Рисунку 4.11, временной профиль $E_{\text{av}}^{\text{ins}}(t_d)$ должен быть сдвинут в направлении положительной задержки на некоторое $\Delta\tau_{\text{ins}}$ относительно терагерцового поля в фокусе $E_{\text{THz}}^{\text{ins}}(t_d)$. Этот временной сдвиг непосредственно наблюдался в эксперименте. Действительно, как будет показано ниже, сигнал ВГ $S_{\text{entr}}^{\text{SiO}_2, \text{air}}(t_d)$, измеренный от входной грани SiO_2 в атмосфере воздуха, имеет основной вклад от газа ($S_{\text{entr}}^{\text{SiO}_2, \text{air}}(t_d) \sim |A_{\text{ins}}^{\text{air}}(t_d)|^2 \sim (E_{\text{av}}^{\text{ins}}(t_d))^2$). Из Рисунка 4.9(б) видно, что $S_{\text{entr}}^{\text{SiO}_2, \text{air}}(t_d)$ сдвинут вправо на ~ 120 фс относительно $(E_{\text{THz}}^{\text{ins}}(t_d))^2$. Это согласуется с предложенной моделью эффективного газового слоя. Дополнительно интересно, что форма $S_{\text{entr}}^{\text{SiO}_2, \text{air}}(t_d) \sim (E_{\text{av}}^{\text{ins}}(t_d))^2$ довольно близка к $(E_{\text{THz}}^{\text{ins}}(t_d))^2$ (с небольшим отклонением

боковых максимумов). Это позволяет предположить, что $E_{av}^{ins}(t_d)$ и $E_{THz}^{ins}(t_d)$ имеют похожие профили. В рамках модели, учитывая, что в газе $n_{2\omega}^{gas} - n_{\omega}^{gas} \ll 1$, получаем (см. п. 4.1)

$$A_{ins}^{gas}(t_d) = 16\pi\chi_{gas}^{(3)}E_{av}^{ins}(t_d)(E_{\omega}^{ins})^2 \frac{L_c^{gas}}{\lambda_{\omega}n_{2\omega}^{gas}} \exp\left(-i\frac{\pi}{2}\left(1 + \frac{D}{L_c^{gas}}\right)\right) \sin\left(\frac{\pi}{2}\frac{D}{L_c^{gas}}\right), \quad (4.34)$$

где: $L_c^{gas} = \lambda_{\omega}/\left(4(n_{2\omega}^{gas} - n_{\omega}^{gas})\right)$ - длина когерентности ($L_c^{air} \approx 2,5$ см в воздухе и $L_c^{He} \approx 60$ см в гелии), $\chi_{gas}^{(3)}$ - эффективная кубическая нелинейная восприимчивость газа ($\chi_{air}^{(3)}/\chi_{He}^{(3)} \approx 20$ [181]). Принимая $D \sim 1$ см, фаза пиковой комплексной амплитуды в воздухе и гелии может быть оценена как $\arg(A_{ins}^{air}) \approx -1,4\pi/2$ и $\arg(A_{ins}^{He}) \approx -\pi/2$, соответственно.

Применим теперь полученные формулы (4.30-4.34) для описания сигналов ВГ на Рисунке 4.9 и определения $\chi_{samp}^{(3)}(2\omega; \omega, \omega, 0)$. Для простоты изложения примем $C_{entr} = 1$ (комплексные амплитуды ВГ будут в условных единицах). Поскольку гелий дает значительно меньший дополнительный вклад в сигнал ВГ по сравнению с воздухом, измерения в гелиевой атмосфере представляют основной интерес. Используя уравнения (4.30) и (4.32), можно установить связь между нелинейными восприимчивостями исследуемых (теллуридных и халькогенидных стекол) и эталонного (SiO_2) образцов из соответствующих измеренных сигналов ВГ. Из сравнения величин сигналов на Рисунке 4.9(а) и (б) можно сделать вывод, что только материал (SiO_2) вносит существенный вклад в сигнал ВГ от выходной грани SiO_2 в гелии (красные точки на Рисунке 4.9(а)), т.е. вклад от гелия пренебрежимо мал. Это согласуется с тем фактом, что профиль сигнала ВГ близок к квадрату напряженности терагерцового электрического поля (см. п. 4.1). Таким образом, уравнение (4.30) упрощается: $S_{exit}^{SiO_2,He}(t_d) = C_{exit}^{SiO_2} R^{SiO_2} T^{SiO_2} |A_{tr}^{SiO_2}(t_d)|^2$, что, учитывая пиковое значение сигнала ВГ $S_{exit}^{SiO_2} \sim 3000$ отсчетов, дает пиковую амплитуду $A_{tr}^{SiO_2} = 146 (S_{exit}^{SiO_2,He}(t_d))$ с учетом (4.33) показана линией из точек на Рисунке 4.9(а). После подстановки этого значения в уравнение (4.33) и последующего использования уравнения (4.32), пиковая амплитуда ВГ, генерируемая в направлении отражения получается $A_{ref}^{SiO_2} \approx -0.01A_{tr}^{SiO_2} = -1,5$. Это значение можно считать эталонным для последующих расчетов.

Для определения вклада гелия $A_{ins}^{He}(t_d)$ рассмотрим сигнал $S_{entr}^{SiO_2,He}(t_d)$, показанный красными ромбами на Рисунке 4.9(б). Из-за малого числа фотонов $S_{entr}^{SiO_2,He}(t_d)$ имеет

значительные флуктуации. После усреднения нескольких точек вблизи максимума сигнала, получаем $S_{entr}^{SiO_2, He} \approx 8$ фотонов. Из уравнения (4.30) с известным $A_{ref}^{SiO_2}$, учитывая уравнение (4.34) и временной сдвиг $\Delta\tau_{ins} \sim 120$ фс, получаем амплитуду ВГ, генерируемую в гелии $A_{ins}^{He} \approx 9 \exp(-i\pi/2)$.

Теперь можно рассчитать комплексные амплитуды ВГ для других образцов. В случае теллуридных стекол измеренный сигнал ВГ примерно в 10 раз превышает сигнал от SiO_2 (см. Рисунок 4.9(в) для образца TWLA), что связано с большей кубической нелинейностью таких стекол. Однако следует учесть, что для данных образцов увеличивается отражение поля ВГ, генерируемого в гелии (в уравнении (4.30) $r_{2\omega}^{TWLA} \approx 1.7r_{2\omega}^{SiO_2}$). Из пикового значения $S_{entr}^{TWLA, He} \sim 70$ фотонов, используя уравнение (4.30) с известной A_{ins}^{He} , получаем $|A_{ref}^{TWLB}| \sim 9$. Отметим, что профиль $S_{entr}^{TWLA, He}(t_d)$ заметно расходится с $(E_T^{ins}(t_d))^2$. Это можно объяснить частичной интерференцией $A_{ins}^{He}(t_d)$ и $A_{ref}^{TWLA}(t_d)$ из-за появления в последней ненулевой фазы, по оценкам около 0,25 рад. Построенная при данной фазе теоретическая зависимость $S_{entr}^{TWLA, He}(t_d)$ хорошо совпадает с экспериментом, см. линию точками на Рисунке 4.9(в). Эта фаза может возникать из-за комплексного значения $n_{2\omega}$ (теллуридное стекло непрозрачно для ВГ) и комплексного значения $\chi_{TWLA}^{(3)}$. Образец TWLB имеет профиль сигнала ВГ, аналогичный TWLA, с амплитудой около 90 отсчетов, что при использовании того же подхода дает $|A_{ref}^{TWLB}| \sim 11$.

В случае халькогенидных стекол наблюдается сигнал ВГ, с амплитудой более чем в 200 раз превышающий сигнал от теллуридных стекол (см. красные точки на Рисунке 4.9(г) для As_2S_3). Временные формы сигналов ВГ для этих стекол близки к квадрату напряженности терагерцового поля $(E_T^{ins}(t_d))^2$ (точечная кривая на Рисунке 4.9(г)). Таким образом, в этом случае вклад гелия пренебрежимо мал. Из измеренных пиковых сигналов ВГ, амплитуды полей ВГ составили $|A_{ref}^{As_2S_3}| \approx 152$, $|A_{ref}^{IKS23}| \approx 148$ и $|A_{ref}^{IKS25}| \approx 130$.

Рассмотрим кратко особенности генерации ВГ от образцов в воздухе. Сравнивая энергию отраженной ВГ, генерируемую в плавленом кварце $|A_{ref}^{SiO_2}|^2 \approx 2$ фотона, и экспериментально измеренную энергию ВГ от этого образца в воздухе $S_{entr}^{SiO_2, air} \approx 800$ фотонов (синие точки на Рисунке 4.9(б)), можно подтвердить вышеупомянутое

предположение, что $S_{entr}^{SiO_2,air}(t_d)$ преимущественно имеет вклад от газа (воздуха). Учитывая теоретически оцененную фазу $-1,4\pi/2$, получаем $A_{ins}^{air} \approx 97 \exp(-i0.65\pi)$. Подставляя $A_{tr}^{SiO_2}(t_d)$ и $A_{air}^{ins}(t_d)$ в уравнение (4.31) (с учетом сдвига $\Delta\tau_{ins} \approx 120$ фс между $E_{av}^{ins}(t_d)$ и $E_T^{ins}(t_d)$), получаем профиль (штрих-пунктирная кривая на Рисунке 4.9(a)), который достаточно хорошо согласуется с экспериментальным сигналом $S_{exit}^{SiO_2,air}(t_d)$. Это подтверждает оценку амплитуды и фазы A_{air}^{ins} . Сигнал ВГ от образца TWLA в воздухе $S_{entr}^{TWLA,air}(t_d)$, аналогично SiO₂, преимущественно имеет вклад от газа (воздуха). Различие профилей $S_{entr}^{TWLA,air}(t_d)$ и $S_{entr}^{SiO_2,air}(t_d)$ можно объяснить дополнительной генерацией ВГ в воздухе после отражения от TWLA вследствие больших коэффициентов отражения TWLA в оптическом и терагерцовом диапазонах (в уравнение (4.30) следует добавить дополнительное слагаемое $A_{ref}^{air}(t_d)$, которое может довольно заметно изменить временной профиль сигнала).

Из полученных значений амплитуд ВГ $|A_{ref}^{samp}|$, используя уравнение (4.32), были вычислены отношения восприимчивости разных образцов к эталонному образцу SiO₂ $|\chi_{samp}^{(3)}(2\omega)|/|\chi_{SiO_2}^{(3)}(2\omega)|$ (см. Таблицу 4.1). Для теллуридных стекол TWLA и TWLB это отношение составляет 65 и 80 соответственно. Для халькогенидных стекол оно превышает 1000. Образцы ИКС23 и As₂S₃ демонстрируют равные нелинейные восприимчивости $\sim 1200|\chi_{SiO_2}^{(3)}(2\omega)|$, что согласуется с их схожим составом. Образец ИКС25 имеет примерно в 1,5 раза большую нелинейность ($|\chi_{IKS25}^{(3)}(2\omega)| \approx 1900|\chi_{SiO_2}^{(3)}(2\omega)|$), что обусловлено более сильным нелинейным откликом Se, содержащегося в образце [183].

В Таблице 4.1 приведены также нелинейности образцов $\chi_{samp}^{(3)}(\omega; \omega, -\omega, \omega)$, измеренные классическим методом z-сканирования [184]. Образец помещался в перетяжку сфокусированного оптического пучка, за которым располагалась диафрагма и детектор энергии (мощности) лазерного излучения. При перемещении образца вдоль пучка, из-за наведенной Керровской линзы, изменялось прохождение оптического излучения через диафрагму. По этому изменению восстанавливался коэффициент нелинейности [184]. Для калибровки измерений также использовался образец плавленого кварца (толщиной около 0,6 мм).

Таблица 4.1. Линейные и нелинейные параметры исследуемых образцов. Экспериментальные погрешности при измерениях $\chi^{(3)}(\omega)$ методом z-сканирования и $\chi^{(3)}(2\omega)$ методом генерации ВГ в поле терагерцового импульса оцениваются ~20% и ~40%, соответственно. Показатели преломления для IKS23 и IKS25 были взяты близкими к As_2S_3 и As_2Se_3 , соответственно, из-за их близкого состава. Отметим, что для халькогенидных стекол коэффициент нелинейности зависит от интенсивности оптического излучения, поэтому в таблице указаны соответствующие значения интенсивностей, при которых проходили измерения.

Образец	Линейные параметры			Нелинейные параметры из данных измерения методом z-сканирования			Параметры, измеренные методом генерации ВГ в терагерцовом поле	
	n_ω	$n_{2\omega}$	n_{THz}	$n_2, 10^{-15} \text{ cm}^2/\text{W}$	$\chi^{(3)}(\omega), 10^{-13} \text{ esu}$	$\chi^{(3)}(\omega)/\chi^{(3)}_{SiO_2}(\omega)$	$\chi^{(3)}(2\omega)/\chi^{(3)}_{SiO_2}(2\omega)$	$ A_{ref}^{samp} $
SiO ₂	1,453	1,47	2	0,25 [185] [186]	0,13	1	1	1,5
TWLA	2,2 [187]	2,35 [187]	~5 [162]	5,1	6,3	47	65	9
TWLB	2,2 [187]	2,35 [187]	~5 [162]	6,1	7,5	56	80	11
IKS23	2,45 [188]	3 – 0,5i [188]	2,9	145 (при 0.8 ГВт/см ²)	220 (при 0.8 ГВт/см ²)	176 (при 0.8 ГВт/см ²)	1200 (при ~25 ГВт/см ²)	148
IKS25	2,9 [188]	(3,3 – i) [188]	3,3	-	-	-	1900 (при ~25 ГВт/см ²)	130
As ₂ S ₃	2,45 [188]	3 – 0,5i [188]	2,8	65 [189] (при ~20 ГВт/см ²)	95 (при ~20 ГВт/см ²)	730 (при ~20 ГВт/см ²)	1200 (при ~25 ГВт/см ²)	152

Интересным является сравнение нелинейностей, ответственных за эффект самовоздействия и генерации наведенной ВГ: $\chi_{samp}^{(3)}(\omega; \omega, -\omega, \omega)$ и $\chi_{samp}^{(3)}(2\omega; \omega, \omega, 0_{THz})$, соответственно. Для этого необходимо знать соотношение калибровочных восприимчивостей $\chi_{SiO_2}^{(3)}(2\omega; \omega, \omega, 0)$ и $\chi_{SiO_2}^{(3)}(\omega; \omega, -\omega, \omega)$ для плавленого кварца. Абсолютное значение $\chi_{SiO_2}^{(3)}(2\omega; \omega, \omega, 0)$ было рассчитано на основе формул (4.31), (4.32) из экспериментальных данных значения числа фотонов на Рисунке 4.10(а) с учетом коэффициентов прохождения через оптические элементы и чувствительности ФЭУ. В результате было получено $\chi_{SiO_2}^{(3)}(2\omega; \omega, \omega, 0) \approx (1 - 2) \times 10^{-14}$ ед. СГС, что близко к значению $(1.5 - 2.3) \times 10^{-14}$ ед. СГС, измеренному методом генерации ВГ в

постоянном электрическом поле (см. работу [190] в которой приведен нелинейный коэффициент $\Gamma = (3/2)\chi_{SiO_2}^{(3)}$). Также измеренное значение близко к $\chi_{SiO_2}^{(3)}(\omega; \omega, -\omega, \omega) \approx 1.3 \times 10^{-14}$ ед. СГС, полученному в других работах при измерении керровского коэффициента n_2 [185] [186]. Таким образом значения $\chi_{SiO_2}^{(3)}(2\omega; \omega, \omega, 0)$ и $\chi_{SiO_2}^{(3)}(\omega; \omega, -\omega, \omega)$ для SiO₂ можно считать одинаковыми.

Для теллуридных стекол измерения показали, что $\chi_{samp}^{(3)}(2\omega; \omega, \omega, 0)$ примерно в 1.5 раза выше, чем $\chi_{samp}^{(3)}(\omega; \omega, -\omega, \omega)$. Для образца As₂S₃ измерения методом z-сканирования не проводилось из-за его большой толщины и плохого оптического прохождения. Данные, взятые из литературных источников, также показали немного большее значение $\chi_{As_2S_3}^{(3)}(2\omega; \omega, \omega, 0)$ по сравнению с $\chi_{As_2S_3}^{(3)}(\omega; \omega, -\omega, \omega)$ (см. Таблицу 4.1). Для образца ИКС23 напротив, нелинейная восприимчивость $\chi_{ИКС23}^{(3)}(2\omega; \omega, \omega, 0)$ оказалась в 1.5 раза меньше, чем $\chi_{ИКС23}^{(3)}(\omega; \omega, -\omega, \omega)$. Различие в отношениях $\chi_{samp}^{(3)}(2\omega; \omega, \omega, 0)/\chi_{samp}^{(3)}(\omega; \omega, -\omega, \omega)$ для двух последних образцов (As₂S₃ и ИКС23), несмотря на их близкий состав, может быть объяснено зависимостью $\chi_{As_2S_3}^{(3)}(\omega; \omega, -\omega, \omega)$ от интенсивности оптического импульса. В работе [183] было показано, что $\chi_{As_2S_3}^{(3)}(\omega; \omega, -\omega, \omega)$ резко (в несколько раз) увеличивается при интенсивностях зондирующего лазерного импульса менее 1 ГВт/см², а при большей интенсивности нелинейность почти не изменяется. Именно при такой небольшой интенсивности (0.8 ГВт/см²) проводились измерения методом z-сканирования, тогда как в методе наведенной терагерцовым полем ВГ оптическая интенсивность составляла около 25 ГВт/см². Указанное в Таблице 4.1 значение для As₂S₃ соответствует большой интенсивности зондирующего импульса (несколько десятков ГВт/см²) [189], [183]. Поэтому большее измеренное значение $\chi_{ИКС23}^{(3)}(\omega; \omega, -\omega, \omega)$, чем значение $\chi_{As_2S_3}^{(3)}(\omega; \omega, -\omega, \omega)$ из литературных данных и измеренное значение $\chi_{ИКС23}^{(3)}(2\omega; \omega, \omega, 0)$, можно связать малой интенсивностью оптического импульса при измерении $\chi_{ИКС23}^{(3)}(\omega; \omega, -\omega, \omega)$. В целом, учитывая погрешность измерений обоих методов (генерация ВГ в поле терагерцового импульса и z-сканирование), можно сказать, что значения нелинейностей $\chi_{samp}^{(3)}(2\omega; \omega, \omega, 0)$ и $\chi_{samp}^{(3)}(\omega; \omega, -\omega, \omega)$ отличаются незначительно.

Можно кратко рассмотреть возможность проявления релаксационного молекулярного (ядерного) вклада в генерацию второй гармоники. Этот вклад, очевидно, изменил бы профиль временной задержки сигнала ВГ (такой релаксационный профиль не следовал бы квадрату терагерцового электрического поля). Потенциально молекулярный вклад мог бы быть использован для объяснения «нестандартной» формы сигнала для стекла TWLA на Рисунке 4.10(в) (такая форма ранее объяснялась интерференцией полей ВГ, генерируемых в гелии и в образце). Но в этом случае следовало бы ожидать появления "хвоста" в $S_{entr}^{TWLA,He}(t_d)$, который не наблюдался в эксперименте. В халькогенидных стеклах не было обнаружено никакого отклонения профиля сигнала ВГ от квадрата терагерцового поля в пределах точности нашего эксперимента. Следовательно, возможная релаксационная ядерная составляющая нелинейности не дает существенный вклад в нелинейный отклик исследованных образцов.

Рассмотрим теперь генерацию ВГ с поверхности кристаллического кремния Si (111). Поскольку глубина проникновения ВГ на длине волны около 400 нм в глубь кремния составляет всего 50 нм такую генерацию можно назвать поверхностной. Ввиду наличия кристаллической структуры образца, энергия и поляризация ВГ зависят от азимутального угла поворота θ образца относительно нормали к поверхности [94]. Кроме того, для данной ориентации поверхности сигнал ВГ без внешнего терагерцового поля может присутствовать даже при таких поляризационных соотношениях между основной и второй гармониками, когда в изотропных средах он отсутствует (далее поляризационные соотношения будем обозначать в виде XX или XXX, где X = S или P соответствует *s*- или *p*-поляризации, первая и последняя буквы обозначают поляризации первой и второй гармоник, соответственно, а средняя буква (для случая XXX) поляризацию терагерцового поля). Например, при одинаковой *s*-поляризации основной и второй оптической гармоник (SS случай), генерация ВГ запрещена в изотропном материале (именно поэтому такой SS случай был выбран при исследовании генерации ВГ в стеклах). В случае (111) кремния сигнал ВГ уже отличен от нуля и имеет зависимость от азимутального угла $\propto \sin^2(3\theta)$, т.е. имеет 6 максимумов при повороте образца на 360° (см. черные крестики на Рисунке 4.12). При наличии терагерцового поля с такой же *s*-поляризацией (SSS случай) и напряженностью 250 кВ/см азимутальная зависимость существенно изменяется: место 6 максимумов возникают 3 максимума на фоне постоянной составляющей, при этом величина сигнала ВГ существенно (~ в 50 раз)

увеличивается. При $\theta = 0$ был измерен сигнал ВГ от времени задержки между оптическими и терагерцовым импульсами (случай SSS). Полученная зависимость от времени задержки приблизительно отслеживала квадрат волновой формы терагерцового поля подобно графику на Рисунке 4.10(г), что согласуется с уравнением (4.32).

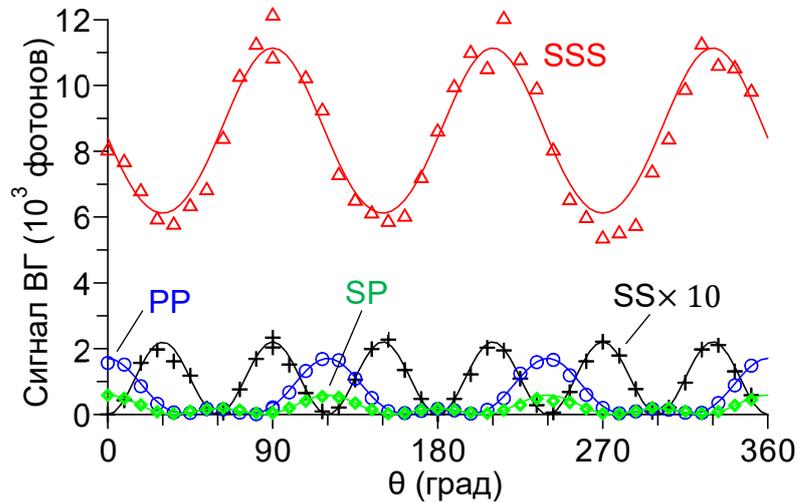


Рисунок 4.12. Азимутальные зависимости энергии ВГ в (111) Si для случаев SS, SP, PP и SSS. Символы – эксперимент, кривые – теоретическая аппроксимация. Зависимость SS увеличена по амплитуде в 10.

Для описания, полученного на Рисунке (4.12) результата, рассмотрим механизм генерации поверхностной гармоника более детально. Можно выделить четыре источника ВГ, вносящих вклад в общую нелинейную поляризацию \mathbf{P}^{SH} [94]

$$\mathbf{P}^{SH} = \mathbf{P}^S + \mathbf{P}^Q + \mathbf{P}^B + \mathbf{P}^T. \quad (4.35)$$

В выражении (4.35) \mathbf{P}^S - дипольная поверхностная нелинейная поляризация, возникающая из-за нарушения симметрии кристаллической решетки на масштабе несколько атомных слоев, и которая может быть выражена через поверхностный тензор $\hat{\chi}^{(2)}$. Заметим, что в атмосферном воздухе поверхность кремния покрыта слоем SiO₂ толщиной 1-2 нм [191], поэтому поверхностный источник можно рассматривать как межфазный на границе Si-SiO₂. Квадрупольная объемная нелинейная поляризация \mathbf{P}^Q выражается через электрический квадрупольный тензор $\hat{\chi}^{(3)Q}$. Компоненты \mathbf{P}^B и \mathbf{P}^T - нелинейные поляризации, связанные с объемной кубической нелинейностью $\hat{\chi}^{(3)}$ в присутствии встроенного \mathbf{E}^B и внешнего \mathbf{E}_T электрических полей, соответственно.

Важно, что \mathbf{E}^B направлено толь в одном направлении – перпендикулярно границе, а поле \mathbf{E}_T имеет произвольное направление. Можно показать (из свойств симметрии), что нелинейные поляризации $\mathbf{P}^S, \mathbf{P}^Q, \mathbf{P}^B$ имеют одинаковую азимутальную зависимость [94]. В частности, для SS случая эти компоненты $\propto \sin(3\theta)$, например $P^B = E_\omega^2 E^B \chi_0 \sin(3\theta)$, где $\chi_0 = \sqrt{2}(\chi_{1111} - 2\chi_{1122} - \chi_{1221})/6$ [94], χ_{ijkl} – компоненты нелинейного тензора $\hat{\chi}^{(3)}$. Нелинейная поляризация \mathbf{P}^T может иметь другую азимутальную зависимость из-за произвольного направления внешнего электрического поля, в частности для SSS случая можно получить [192], что $P^T = E_\omega^2 E_T (\chi_{1111} - 3\chi_0/\sqrt{2})$, т.е. излучение ВГ от P^T не зависит от азимутального угла.

Полное электрическое поле ВГ \mathbf{E}_{SH} , генерируемое нелинейной поляризацией \mathbf{P}^{SH} можно также представить в виде суперпозиции полей от каждого источника

$$\mathbf{E}_{SH}(\theta) = \mathbf{E}_{SH}^S(\theta) + \mathbf{E}_{SH}^Q(\theta) + \mathbf{E}_{SH}^B(\theta) + \mathbf{E}_{SH}^T(\theta). \quad (4.36)$$

Точные выражения для полей $\mathbf{E}_{SH}^S, \mathbf{E}_{SH}^Q, \mathbf{E}_{SH}^B$ приведены, например, в книге [94]. В частности для SSS случая поле \mathbf{E}_{SH}^T определяется выражением (4.32), где $\chi_{\text{eff}}^{(3)} = \chi_0$, а углы преломления первой и второй гармоник рассчитываются с учетом комплексности показателей преломления лазерного излучения в кремнии ($n_\omega^{Si} = 3,67 + 0,0054i$ для 790 нм и $n_{2\omega}^{Si} = 5,7 + 0,39i$, соответственно [94]). Помимо абсолютных значений слагаемых в выражении (4.36), важным является также соотношение их фаз φ^k ($k = S, Q, B, T$), поскольку данные фазы влияют на интерференцию полей, и как, следствие, на форму азимутальных зависимостей. На фазу φ^k влияют как резонансные свойства нелинейного отклика среды (наличие мнимости у компонент соответствующего нелинейного тензора), так и электродинамика формирования поля ВГ. В условиях проведенного эксперимента частоты основной и второй гармоник далеки от кремниевых резонансов. Действительно, для лазерного излучения на центральной длине волны 790 нм с шириной 20 нм энергия фотонов ВГ лежит в диапазоне 3.14 ± 0.06 эВ. Этот диапазон достаточно далек от резонансов, связанных с межзонными переходами в кремнии (вблизи уровней $E'_0, E_1 \approx 3,4$ эВ и $E_2 \approx 4,3 - 4,5$ эВ), даже с учетом напряженных Si-Si связей на интерфейсе кремния (приводящих к смещению уровней E'_0, E_1 до 3,3 эВ) [193], [194]. Это обстоятельство позволяет считать компоненты тензоров нелинейной восприимчивости (связывающих \mathbf{E}_{SH}^k и \mathbf{P}^k) действительными величинами [195], [150]. Тогда φ^k будет определяться

электродинамикой высвечивания ВГ, а именно соотношением между масштабом изменения (глубиной локализации) соответствующего источника L^k и длиной поглощения ВГ L_{SH} ($L_{SH} \approx 50$ нм на длине волны 395 нм). Можно показать [94], что из-за большого масштаба изменения терагерцового поля ($L^T \sim 100$ мкм) E_{SH}^T будет сдвинуто по фазе на $\sim \pi/2$ относительно E_{SH}^S и E_{SH}^Q , и может иметь фазовый сдвиг φ_B относительно E_{SH}^B в зависимости от степени легирования Si и поверхностного потенциала [196]. Тогда сигнал ВГ для случая SSS можно записать в виде

$$W_{SSS}(\theta) = |[(F_{SS}^S(\theta) + F_{SS}^Q(\theta))e^{i\pi/2} + F_{SS}^B(\theta)e^{i\varphi_B}] + F_{SSS}^T(\theta)|^2, \quad (4.37)$$

где амплитудные функции $F_{SS}^k(\theta) \propto \sin(3\theta)$ (для $k = S, Q, B$) и $F_{SSS}^T(\theta) = A_{SSS}^T E_T$ являются чисто действительными. Без терагерцового поля азимутальную зависимость будем обозначать $W_{SS}(\theta)$. Выражение (4.37) также может быть переписано в виде

$$W_{SSS}(\theta) = \sin^2(3\theta)(A_{SS} \sin(\varphi_{SS}))^2 + [\sin(3\theta)A_{SS} \cos(\varphi_{SS}) + A_{SSS}E_T]^2, \quad (4.38)$$

где A_{SS} и φ_{SS} - амплитуда и относительная фаза компоненты поля ВГ, генерируемой без терагерцового поля (т.е. амплитуда и относительная фаза суммарного поля $E_{SH}^S + E_{SH}^Q + E_{SH}^B$).

Аппроксимация экспериментальных данных уравнением (4.38) показала (см. сплошные линии на Рисунке 4.12), что $|A_{SS}| \ll |A_{SSS}E_T|$ и фаза φ_{SS} не превышает 35° . Для более точного определения фазы φ_{SS} была измерена зависимость сигнала ВГ от напряженности терагерцового поля при $\theta = 30^\circ$ (см. Рисунок 4.13). При этом азимутальном угле зависимость $W_{SSS}(E_T)$, согласно уравнению (4.38), имеет может иметь минимум $W_{SSS}^{\min} = [A_{SS} \sin(\varphi_{SS})]^2$ при некотором поле E_T^{\min} . Этот минимум ($W_{SSS}^{\min} \approx 36$ фотонов) отчетливо наблюдается на Рисунке 4.13 при падающем на образец терагерцовом поле с амплитудой 40 кВ/см. Тогда фазу φ_{SS} можно найти из выражения $\sin(\varphi_{SS}) = \pm \sqrt{W_{SSS}^{\min}/W_{SSS}^0}$, где W_{SSS}^0 - сигнал SH при $E_T = 0$ ($W_{SSS}(E_T = 0) = [A_{SS}]^2$). Из Рисунка 4.13 имеем $W_{SSS}^0 \approx 220$ фотонов, что дает $\varphi_{SS} \approx \pm 24^\circ$.

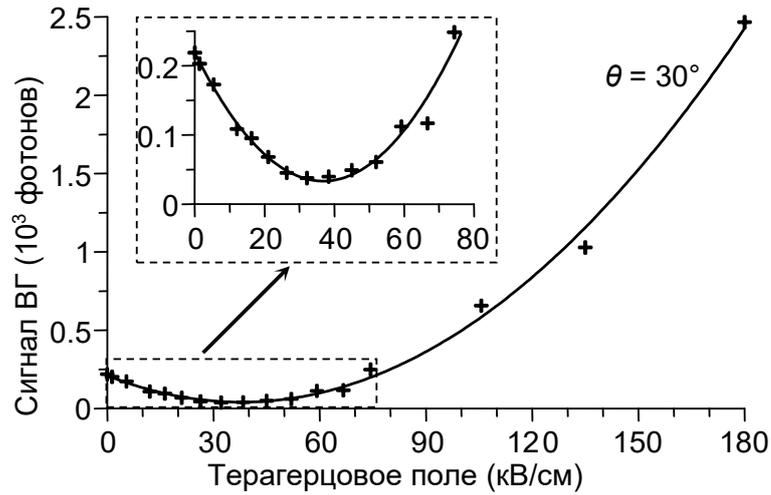


Рисунок 4.13. Зависимость сигнала ВГ от напряженности терагерцового поля в SSS случае при $\theta = 30^\circ$. Сплошные кривые – аппроксимация экспериментальных данных квадратичной зависимостью.

Ввиду малой концентрации носителей в исследуемом образце ($\sim 10^{12}-10^{13} \text{ см}^{-3}$), оценочная глубина локализации встроенного поля L^B составляет $0,1 - 1 \text{ мкм}$ [196], что заметно превышает масштаб спада второй гармоники ($\sim 50 \text{ нм}$). В этом случае фазы полей ВГ, индуцированных встроенным и терагерцовым полями, должны быть близки ($\varphi^B \approx \varphi^T$, т.е. сдвинуты на $\pi/2$ относительно фазы полей ВГ от поверхностного и квадрупольного источников). Тогда из найденной $\varphi_{SS} \approx \pm 24^\circ$ получаем, что амплитуда поля ВГ, создаваемой суммарно поверхностной и квадрупольной нелинейными поляризациями, должна быть более чем в два раза меньше амплитуды поля ВГ, индуцированного встроенным электрическим полем (в уравнении (4.37) это соответствует соотношению $F_{SS}^S + F_{SS}^Q \approx (0,4 \pm 0,05)F_{SS}^B$). Таким образом, можно сказать, что генерация ВГ от исследуемого образца Si определяется в основном нелинейными поляризациями \mathbf{P}^B и \mathbf{P}^T , т.е. встроенным и приложенным терагерцовым электрическими полями (при отсутствии терагерцового поля вклад от встроенного поля в сигнал ВГ составляет более 80%). Аппроксимируя измеренные зависимости сигнала ВГ от азимутального угла поворота для случаев SS, SP и PP (см. символы на Рисунок 4.12) с помощью соответствующих выражений для квадрата полей ВГ E_{SH}^B , приведенных на стр. 253 в книге [94] (см. сплошные кривые на Рисунок 4.12), получаем $\chi_0 \approx -0,13\chi_{1111}$. Это соотношение, а также Рисунок 4.13 позволяет оценить напряженность встроенного поля. Действительно, в минимуме $W_{SS}(E_T)$ поля ВГ, индуцированные встроенным и

терагерцовым полями, компенсируют друг друга (остаточный сигнал ВГ генерируется поверхностными и квадрупольными источниками). Поэтому, ввиду $L^T, L^B \gg L_{SH}$ такая компенсация (для SSS случая) определяется равенством нелинейных поляризации $P^B = E_\omega^2 E^B \chi_0$ (при $\theta = 30^\circ$) и $P^T = E_\omega^2 E_T^{min} (\chi_{1111} - 3\chi_0/\sqrt{2})$, что дает

$$E^B = \frac{\chi_{1111} - (3/\sqrt{2})\chi_0}{\chi_0} E_T^{min} = -9.8 E_T^{min}, \quad (4.39)$$

где $E_T^{min} = t_{Si} E_{T,ins}^{min}$ – терагерцовое поле в кремнии при падающем терагерцовое поле в точке минимума $E_{T,ins}^{min} = 40$ кВ/см, а t_{Si} – френелевский коэффициент прохождения. Для s -поляризованного терагерцового излучения, падающего под углом 45° , имеем $t_{Si} = 0,33$, что с учетом уравнения (4.39) дает $E^B = -130$ кВ/см. Отрицательный знак E^B указывает, что встроенное поле направлено из объема Si к поверхности. Это согласуется с отрицательным знаком заряда на границе раздела Si-SiO₂, обусловленного n -типом легирования образца. Оценка плотности поверхностного заряда дает величину около 10^{12} см⁻². Полученное значение соответствует возможной плотности электронных состояний на границе Si-SiO₂ [34,44].

Заметим, что аналогичные Рисунок 4.13 измерения проводились при исследовании генерации ВГ в постоянном электрическом поле E_{DC} (путем наложения контактов на образец) и также позволяли выявить дополнительную информацию о поверхностном источнике ВГ [85], [195]. Однако, при исследовании свободной поверхности кремния наложение постоянного поля требует напыление металлических контактов, что может существенно изменить свойства поверхности, а в уже готовых метал-оксид-полупроводник (МОП) структурах наложение дополнительного поля приводит к перераспределению заряда, что также может сказываться характеристики образцов. Можно ожидать, что использование пикосекундного терагерцового импульса не приводит к существенному влиянию на поверхностные состояния (при напряженности электрического поля меньше пробойного), что делает данный метод менее инвазивным.

Величина встроенного поля определяется свойствами конкретного образца кремния (концентрация носителей, качество поверхности, толщина оксида и т.д.), но также может изменяться под действием лазерного облучения [98]. При облучении поверхности кремния лазерным излучением фотоиндуцированные носители могут захватываться на границе раздела Si или в слое SiO₂, что может привести к изменению встроенного поля и, как следствие, к изменению сигнала ВГ. В эксперименте была

проведена проверка наличия этого эффекта. Для этого была измерена зависимость сигнала ВГ от интенсивности (энергии) основного лазерного импульса для случаев SS и PP (см. Рисунок 4.14). Результаты измерений не выявили отклонения зависимости от квадратичной закона вплоть до максимальной оптической интенсивности 10 ГВт/см^2 в пределах экспериментальной точности, что указывает на пренебрежимо малый эффект захвата электронов. Это согласуется с измерениями зависимости сигнала ВГ от времени облучения лазером, проведенные в работе [197], где эффект также слабо проявлялся при той же интенсивности, даже при значительно более высокой частоте повторения лазера ($\sim 100 \text{ МГц}$).

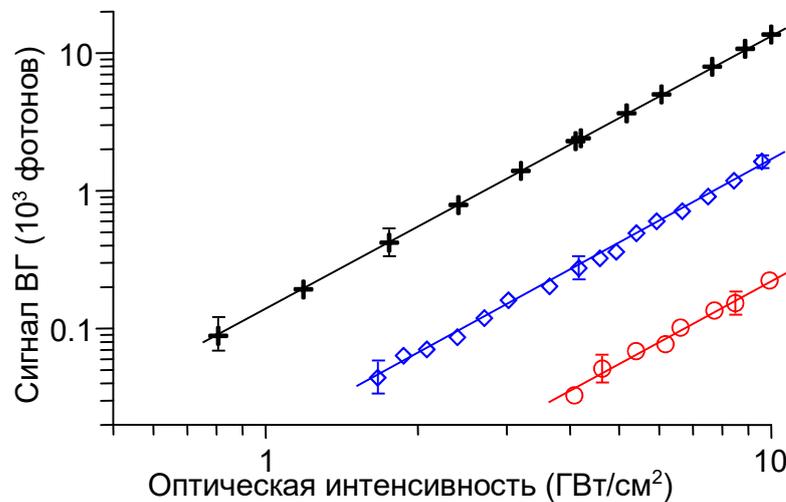


Рисунок 4.14. Сигнал второй гармоники в зависимости от интенсивности основного оптического импульса для случаев PP при $\theta = 0^\circ$ (синие ромбики), SS при $\theta = 90^\circ$ (красные кружочки) и SSS при $\theta = 90^\circ$ (черные крестики). Сплошные прямые линии соответствуют аппроксимации экспериментальных данных квадратичной зависимостью.

Фотогенерированные носители в кремнии также могут приводить к экранированию как встроенного [198], так и терагерцового полей. Оценка индуцированной электронной плотности (локализованной на длине проникновения основной гармоники $\sim 10 \text{ мкм}$) при максимальной оптической интенсивности ($\sim 10 \text{ ГВт/см}^2$) дает значение $\sim 2 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$. Характерное время экранирования электрического поля в этом случае может быть оценено как $1/\omega_p$ [198] (ω_p - плазменная частота фотогенерированных носителей) и составляет несколько десятков фемтосекунд, что сопоставимо с длительностью

оптического импульса ~ 70 фс. При таких оценках можно ожидать влияния фотогенерируемых носителей на сигнал ВГ. Однако, как и в случаях SS и PP, измерения сигнала ВГ в случаях SSS и PPP в зависимости от интенсивности основной гармоники (на Рисунке 4.14 приведен только случай SSS) не показали отклонений от квадратичной зависимости. Вполне возможно, что фактическое время экранирования увеличивается за счет столкновений горячих фотогенерированных носителей (с частотой столкновений, сравнимой с плазменной частотой). Кроме того, плазмообразование является интегральным процессом и происходит с некоторой задержкой относительно пика оптического импульса, когда ВГ генерируется наиболее эффективно.

В конце данного параграфа приведем оценку компоненты тензора восприимчивости кремния $\chi_{1111}(2\omega; \omega, \omega, 0)$. Из измеренного количества фотонов ВГ для SSS случая, учитывая квантовую эффективность ФЭУ и коэффициента пропускания оптических фильтров, была рассчитана энергия генерируемой второй гармоники из образца и сопоставлена с аналитическим выражением, полученным из уравнения (4.32) в котором полагалось $\chi_{\text{eff}}^{(3)} = \frac{3}{2}(\chi_{1111} - 3\chi_0/\sqrt{2}) = 1,9\chi_{1111}$. При подстановке в (4.32) экспериментальных значений напряженности оптического и терагерцового полей (с учетом коэффициентов Френеля) было получено $\chi_{1111}^{(3)} \approx (9 \pm 4) \times 10^{-11}$ ед. СГС (в системе СИ $(1,2 \pm 0,5) \times 10^{-18} \text{ м}^2/\text{В}^2$). Примерно такое значение было получено также из калибровки по данным генерации наведенной ВГ в плавленом кварце (см. выше). Полученное значение $\chi_{1111}^{(3)}$ находится в хорошем согласии с данными эксперимента работы [199], в которой при измерении ВГ оптического излучения на длине волны 2.3 мкм $\chi_{1111}^{(3)}$ оценивалась в диапазоне $10^{-19} - 10^{-18} \text{ м}^2/\text{В}^2$.

4.4. Терагерцовый эффект Керра в жидкостях

Классическим методом исследования эффекта Керра является измерение наведенной внешним электрическим полем анизотропии показателя преломления Δn в исследуемом веществе. Для этого используется зондирующее оптическое излучение с поляризацией, ориентированной под углом 45° к направлению внешнего воздействия. Из величины керровского отклика (чаще всего под откликом подразумевают величину деполяризации зондирующего излучения) определяется анизотропия показателя преломления. Для исследования динамики керровского отклика, характерные времена

которого обычно лежат в пикосекундном-субпикосекундном диапазоне, необходимо использовать соответствующие короткие электромагнитные импульсы как для возбуждения анизотропии, так и для ее зондирования. Естественным подходом в этом отношении является применение фемтосекундных (длительностью до 100 фс) оптических импульсов в схеме накачка-зондирование, что позволяет выявить как мгновенный электронный отклик, так другие релаксационные отклики, связанные с колебательно-вращательными движениями отдельных молекул, а также с движениями, обусловленными взаимодействием молекул с ближайшим окружением. Характерные времена последних как раз и лежат в субпикосекундном (например, либрация) или пикосекундном (ориентационная диффузия) диапазонах [106]. Альтернативой фемтосекундной оптической накачки могут являться пикосекундные (суб-пикосекундные) терагерцовые импульсы большой интенсивности. Очевидным недостатком в этом случае является заметное худшее временное разрешение, а также возможные трудности с выделением быстрых молекулярных (ядерных) движений (обладающих близкими характерным временами) на фоне мгновенно электронного отклика. Однако из-за существенно большего (по сравнению с оптическим излучением) периода, сравнимого с характерным временем ориентационной диффузии (временем дебаевской релаксации), терагерцовые импульсы могут уже взаимодействовать постоянным дипольным моментом молекулы. Тем самым расширяется информативность диагностики полярных жидкостей [111], [112].

Для исследования терагерцового эффекта Керра в данной диссертационной работе была использована экспериментальная установка, схема которой приведенная на Рисунке 4.15(а). В качестве источника оптического излучения использовалась титан-сапфировая лазерная система (795 нм, 10 Гц, 10 мДж, 70 фс). Лазерное излучение делилось на два луча (луч накачки и зондирующий луч). Луч накачки (с большей энергией) генерировал в призме LiNbO_3 терагерцовое излучение методом скошенного фронта интенсивности (с использованием дифракционной решетки 2000 шт/мм и телескопа с линзами Л1, $F = 25$ см и Л2, $F = 15$ см). Терагерцовое излучение расширялось с помощью двух внеосевых параболических зеркал ПЗ₁ и ПЗ₂ ($F = 2,5$ см и 18 см, соответственно), а затем остро фокусировалось внеосевым параболическим зеркалом ПЗ₃ ($F = 5$ см) в кювету из плавленого кварца, заполненную жидкостью (кювета имела толщину стенок 4,2 мм, а слой жидкости составлял 4 мм). Исследовались различные жидкости, включая воду,

ацетон ($(\text{CH}_3)_2\text{CO}$), хлороформ (CHCl_3), четырехлористый углерод (CCl_4) и бензол (C_6H_6). Фокальная плоскость терагерцового пучка находилась вблизи границы входа в слой жидкости. Терагерцовые тонкопленочные поляризаторы P1 и P2 использовались для ослабления терагерцового излучения. После второго поляризатора терагерцовое излучение имело вертикальную поляризацию (вдоль оси y , перпендикулярно плоскости Рисунка 4.15(a)). Осциллограмма терагерцового поля в области фокальной перетяжки (измеренная без кюветы) показана на Рисунке 4.15(б) (измерения проводились стандартным методом электронно-оптического стробирования с применением кристалла ZnTe толщиной 50 мкм). Максимальная напряженность поля достигала 300 кВ/см, что соответствует пиковой интенсивности 270 МВт/см².

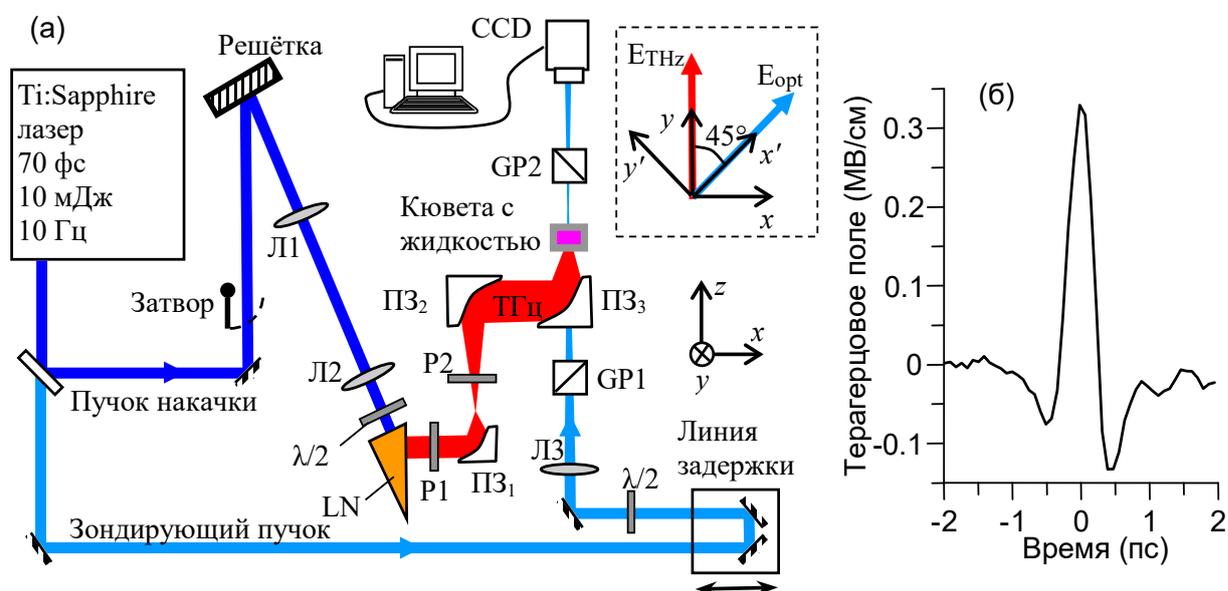


Рисунок 4.15. (а) Схема экспериментальной установки для исследования терагерцового эффекта Керра. (б) Осциллограмма терагерцового поля в области фокуса параболического зеркала ПЗ₃.

Терагерцовое поле индуцировало в кювете разность оптических коэффициентов преломления Δn (вдоль осей y и x). Для измерения Δn использовалась методика скрещенных поляризаторов. Зондирующий оптический импульс проходил через линию задержки и фокусировался линзой ЛЗ ($F = 30$ см) в кювету в центральную часть терагерцового пучка. Размер оптического пятна составлял ~ 100 мкм и был значительно меньше диаметра терагерцового пучка (~ 600 мкм). Поляризатор GP1 был ориентирован так, чтобы пропускать зондирующие оптические импульсы с поляризацией под углом

$\alpha = 45^\circ$ относительно поляризации терагерцового излучения. Полуволновая пластина перед GP1 использовалась для ослабления интенсивности зондирующего импульса. Терагерцовые и оптические импульсы распространялись коллинеарно через образец, и благодаря индуцированному терагерцовым полем двулучепреломлению, зондирующий импульс приобретал эллиптичность, что приводило к ненулевому прохождению через второй скрещенный поляризатор GP2. Энергия прошедшего импульса измерялась с помощью чувствительной EMCCD-камеры (Falcon EM285, Raptor Photonics).

Прежде чем обсуждать экспериментальные результаты, получим аналитические выражения для индуцированной терагерцовым излучением деполяризационного сдвига фазы $\Delta\varphi$ в керровской среде толщиной L . Будем предполагать, что зондирующий оптический импульс распространяется без дисперсии и дифракционного расплывания через слой вдоль оси z с групповой скоростью $V_g = c/n_g$ (n_g - групповой показатель преломления). Терагерцовый импульс с интенсивностью $I^{THz}(t, z)$ индуцирует за счет эффекта Керра разность показателей преломления $\Delta n(t, z)$ вдоль осей x и y , создавая фазовый сдвиг между ортогональными компонентами поля зондирующего оптического импульса

$$\Delta\varphi(\tau) = \frac{2\pi}{\lambda_{opt}} \int_0^L \Delta n\left(\tau + \frac{z}{V_g}, z\right) dz, \quad (4.40)$$

где λ_{opt} – длина волны оптического излучения в вакууме, τ – время задержки между терагерцовым и оптическими импульсами. В уравнении (4.40) предполагается, что длительность зондирующего импульса много меньше периода терагерцовой волны. Разность показателей преломления $\Delta n(t, z)$ может быть разделена на быструю (соответствующую сумме быстрых молекулярных и мгновенной электронной откликам) и медленную (соответствующую диффузной ориентации) компоненты $\Delta n(t, z) = \Delta n^f(t, z) + \Delta n^s(t, z)$, где

$$\Delta n^f(t, z) = n_2^f I^{THz}(t, z), \quad (4.41)$$

n_2^f – коэффициент быстрой нелинейности, и [200]

$$\Delta n^s(t, z) = \frac{n_2^s}{\tau^r} \int_0^\infty I^{THz}(t - t', z) \exp\left(-\frac{t'}{\tau^r}\right) dt', \quad (4.42)$$

n_2^s – коэффициент медленной (ориентационной) нелинейности, а τ^r – время релаксации. Результирующий фазовый сдвиг может быть также записан как сумма быстрой и медленной (ориентационной) компонент $\Delta\varphi(\tau) = \Delta\varphi^f(\tau) + \Delta\varphi^s(\tau)$.

Для быстрого керровского отклика можно получить несколько аналитических выражений, которые будут полезны для последующего анализа. Учитывая поглощение терагерцового излучения (но пренебрегая дифракцией и дисперсией терагерцового импульса) имеем $I^{THz}(t, z) = I^{THz} \left(t - \frac{zn_{THz}}{c} \right) \exp(-\alpha z)$ (где n_{THz} и α - показатель преломления и коэффициент поглощения для терагерцового излучения, соответственно). Тогда из уравнений (4.40) и (4.41) получаем

$$\Delta\varphi^f(\tau) = \frac{2\pi}{\lambda_{opt}} n_2^f \int_0^L I^{THz} \left(\tau + \frac{z}{c} (n_g - n_{THz}) \right) \exp(-\alpha z) dz. \quad (4.43)$$

В случае выполнения условия синхронизма, т.е. равенства скоростей терагерцового и оптического импульсов ($n_{THz} = n_g$), интегрирование уравнения (4.43) дает

$$\Delta\varphi^f(\tau) = \left(\frac{2\pi}{\lambda_{opt}} \right) (1 - \exp(-\alpha L)) n_2^f I^{THz}(\tau). \quad (4.44)$$

Следовательно, фазовый сдвиг в зависимости от времени задержки повторяет временную форму интенсивности терагерцового импульса. В случае рассогласования скоростей, зондирующий и терагерцовые импульсы взаимодействуют на конечной длине разбегания

$$L_w = \tau_{THz} c / |n_{THz} - n_g|, \quad (4.45)$$

где τ_{THz} - длительность терагерцового импульса (предполагается, что импульс имеет один основной максимум). Если в этом случае слой относительно тонкий, $L \ll L_w$, или имеет сильное терагерцовое поглощение $\alpha \gg 1/L_w$, то $\Delta\varphi^f(\tau) \sim I^{THz}(\tau)$, аналогично случаю синхронизма. Для толстого слоя с $L \gg L_w$ и слабого терагерцового поглощения, $\Delta\varphi^f(\tau)$ имеет прямоугольную форму с максимальным значением

$$\Delta\varphi_{max}^f = \frac{2\pi}{\lambda_{opt}} n_2^f \frac{c}{|n_g - n_{THz}|} \int_{-\infty}^{+\infty} I^{THz}(t) dt \quad (4.46)$$

и длительностью

$$\Delta\tau = |n_{THz} - n_g| L / c. \quad (4.47)$$

Согласно уравнению (4.46), $\Delta\varphi_{max}^f$ пропорционально потоку энергии терагерцового импульса, а не пиковой интенсивности, как в случае синхронизма (см. уравнение (4.44)).

Для обработки экспериментальных данных и получения нелинейных коэффициентов n_2^f , n_2^s , а также времени релаксации τ_r использовались уравнения (4.40)-(4.42) с учетом поглощения, дифракции и дисперсии терагерцового импульса (также учитывались коэффициенты френелевского отражения на границах кювета/воздух и

кювета/жидкость). Для адекватного описания динамики терагерцового импульса был введен модельный профиль импульса $E_{th}^{THz}(t, z = 0)$, аппроксимирующий при $z = 0$ измеренный терагерцовый профиль на Рисунке 4.15(б). Динамика $E_{th}^{THz}(t, z)$ рассчитывалась путем численного решения волнового уравнения с начальным диаметром пучка в фокусе 0.6 мм. Интенсивность терагерцового поля определялась формулой $I^{THz}(t, z) = cn_{THz}(E_{th}^{THz}(t, z))^2 / (4\pi)$, где n_{THz} – терагерцовый показатель преломления среды. Анализ расчетов показал, что в прозрачных для терагерцового излучения жидкостях (бензол, CCl_4) $E_{th}^{THz}(t)$ существенно изменяется вдоль оси z из-за дифракции и поглощения (см. пример динамики поля для бензола на Рисунок 4.16), в то время как дисперсия не оказывает значительного влияния на форму терагерцового импульса. Действительно, для терагерцового импульса с центральной частотой 0.8 ТГц длина дифракции примерно равна толщине жидкости в кювете (4 мм).

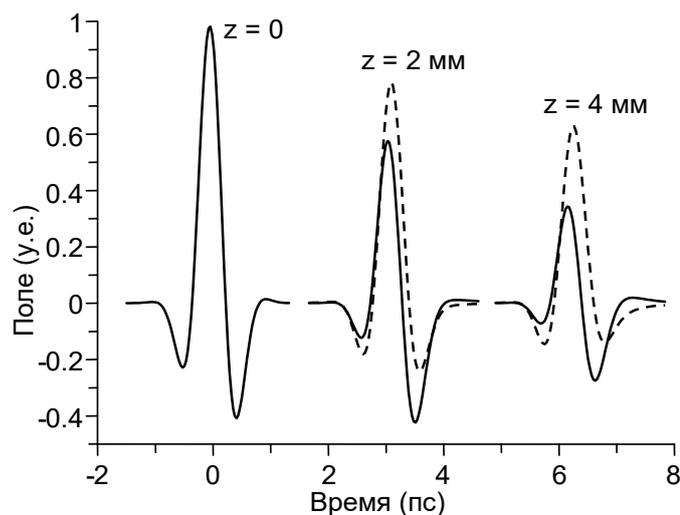


Рисунок 4.16. Теоретически рассчитанные временные формы терагерцового импульса при распространении в бензоле на разных z . Профиль при $z = 0$ соответствует экспериментальной волновой форме на Рисунке 4.15(б). Сплошные и пунктирные кривые рассчитаны для начального размера терагерцового пучка 0.6 мм и 6 мм, соответственно.

В результате, вместе с поглощением это приводит к уменьшению терагерцового поля в три раза на выходе из жидкости (бензола). Для бо'льшего диаметра терагерцового пучка (6 мм) дифракция менее критична, и величина поля уменьшается только в $\sim 1,5$ раза (пунктирные кривые на Рисунке 4.16). Следует отметить, что различные спектральные

компоненты широкого терагерцового спектра имеют значительно разные длины дифракции, что приводит к изменению формы импульса.

Интенсивность зондирующего оптического импульса после двух скрещенных поляризаторов в пределе малой деполяризации ($\Delta\varphi \ll 1$) может быть записана как [201], [202]

$$I(\tau) = I_0 \left[\delta^2 + \frac{1}{4} (\varphi_0 + \Delta\varphi(\tau))^2 \right], \quad (4.48)$$

где I_0 - интенсивность зондирующего импульса, коэффициент δ описывает деполяризацию зондирующего импульса из-за рассеяния и неидеальной компенсации поляризации призмами Глана, а коэффициент φ_0 соответствует остаточному двулучепреломлению кюветы. Без терагерцового излучения интенсивность зондирующего импульса равна

$$I_{bg} = I_0 \left[\delta^2 + \frac{1}{4} \varphi_0^2 \right]. \quad (4.49)$$

Примеры терагерцового и фонового сигналов деполяризации $S_{THz} = I/I_0$ и $S_{bg} = I_{bg}/I_0$, а также разностного сигнала

$$\Delta S = S_{THz} - S_{bg} = \frac{1}{4} \Delta\varphi^2 + \frac{1}{2} \varphi_0 \Delta\varphi \quad (4.50)$$

для кюветы с ацетоном показаны на Рисунке 4.17. Видно, что уровень сигнала довольно мал, порядка 10^{-8} , разностный сигнал ΔS имеет как положительные, так и отрицательные значения в зависимости от времени задержки, что отражает разные знаки φ_0 и $\Delta\varphi$ (в дальнейшем мы будем считать $\Delta\varphi > 0$). Действительно, согласно уравнению (4.50) для положительного φ_0 разностный сигнал также положителен независимо от величины $\Delta\varphi$, но если φ_0 отрицателен, знак разностного сигнала переменный: малые значения $\Delta\varphi$ ($\Delta\varphi < 2|\varphi_0|$) дают $\Delta S < 0$ (временные интервалы $t < 6,8$ пс и $t > 7,3$ пс на Рисунке 4.17), а большие значения $\Delta\varphi$ ($\Delta\varphi > 2|\varphi_0|$) дают $\Delta S > 0$ (временной интервал $6.8 < t < 7.3$ пс на Рисунке 4.17).

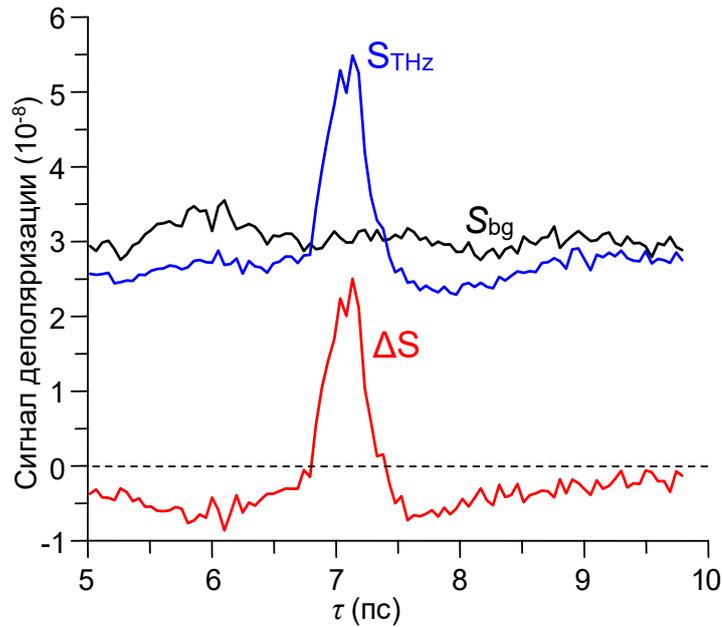


Рисунок 4.17. Сигналы деполаризации S_{THz} , S_{bg} и ΔS в зависимости от времени задержки для кюветы, заполненной ацетоном. Пиковое терагерцовое поле 300 кВ/см.

Наличие двух неизвестных коэффициентов φ_0 и δ не позволяет независимо определить $\Delta\varphi$ непосредственно из уравнений (4.48), (4.49). Фазовую задержку $\Delta\varphi$ можно найти только для предельных случаев $\Delta\varphi \gg |\varphi_0|$ или $\delta \ll |\varphi_0|$ [202]. В данном эксперименте $\Delta\varphi(\tau)$ может быть сравнима с φ_0 и δ (в зависимости от времени задержки и исследуемой жидкости). Для извлечения $\Delta\varphi(\tau)$ из измеренного сигнала деполаризации была использована следующая процедура. Были построены два решения уравнения (4.50)

$$\Delta\varphi_{\pm}(\tau) = -\varphi_0 \pm \sqrt{\varphi_0^2 + 4S_{THz}(\tau)} \quad (4.51)$$

как функции времени задержки τ при разных φ_0 . Затем было найдено такое значение φ_0 , при котором эти решения сшиваются (при определенных τ). При этом, для слабого сигнала $\Delta\varphi(\tau) = \Delta\varphi_{-}(\tau)$, а для сильного сигнала $\Delta\varphi(\tau) = \Delta\varphi_{+}(\tau)$.

На Рисунке 4.18 показаны $\Delta\varphi(\tau)$, полученные описанной выше процедурой для пустой кюветы и кюветы, заполненной полярными жидкостями (вода, ацетон и хлороформ). Для $\tau < 6,5$ пс $\Delta\varphi$ приблизительно постоянна (см. Рисунки 4.18(а,б)) и соответствует оптической деполаризации вызванной входной стенкой кюветы. Действительно, во входной стенке кюветы из плавленого кварца зондирующий и терагерцовые импульсы имеют разные скорости, и согласно уравнению (4.45),

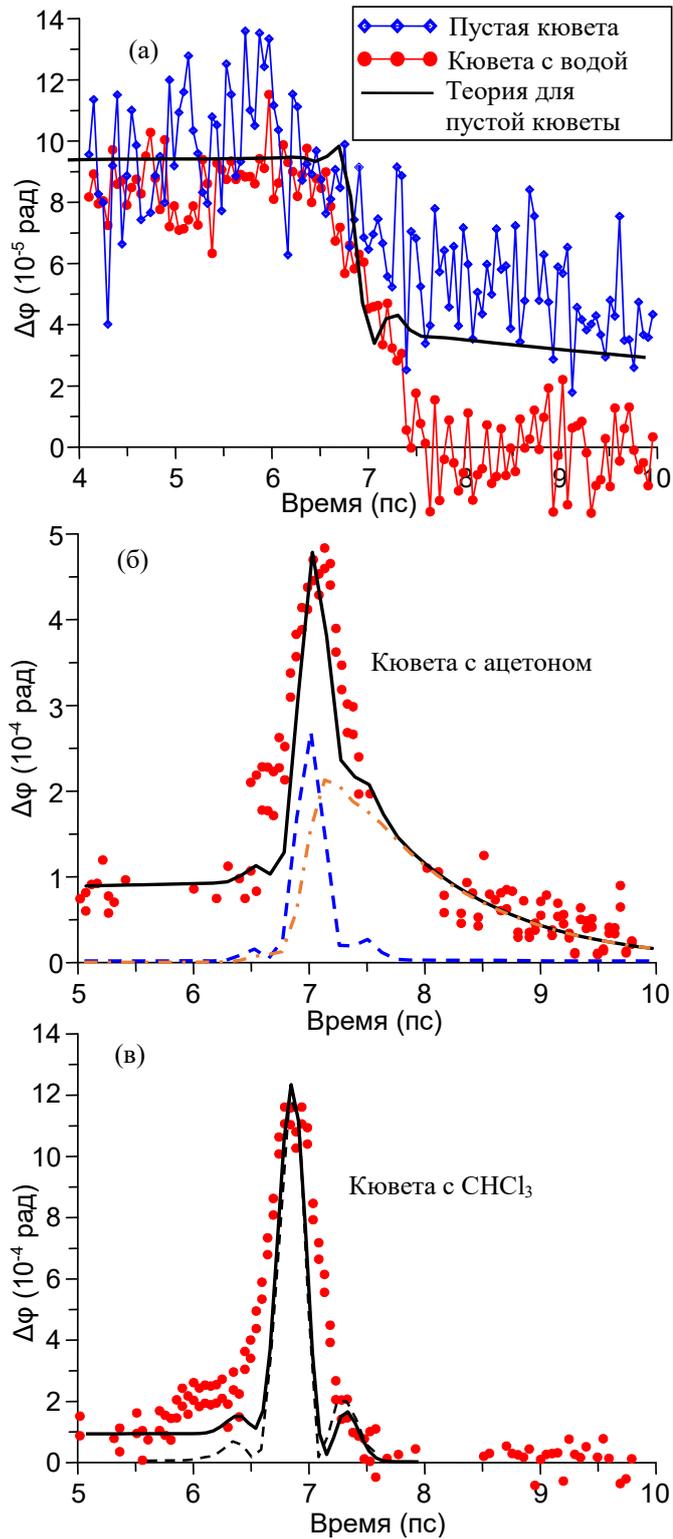


Рисунок 4.18. Фазовый сдвиг $\Delta\phi$ в зависимости от времени задержки τ для (а) пустой и заполненной водой кюветы, а также для кюветы с (б) ацетоном и (в) CHCl_3 . Сплошные линии – теоретический расчет. Штриховая и штрихпунктирная линии на (б) показывают быстрые и медленные отклики, соответственно. Штриховая линия на (в) показывает профиль интенсивности терагерцового импульса.

взаимодействуют на конечной длине разбегания $L_w^{\text{SiO}_2} \approx 200$ мкм (в расчетах принимаем $\tau_{\text{THz}} = 0,33$ пс, $n_{\text{THz}}^{\text{SiO}_2} = 1,96$, $n_g^{\text{SiO}_2} = 1,47$), что значительно меньше толщины стенки ($L_{\text{SiO}_2} = 4,2$ мм). Ввиду слабого терагерцового поглощения в плавленом кварце ($\alpha < 1$ см⁻¹), теория предсказывает прямоугольную форму функции $\Delta\varphi(\tau)$ с длительностью $(\Delta\tau)_{\text{SiO}_2} = (n_{\text{THz}}^{\text{SiO}_2} - n_g^{\text{SiO}_2})L/c = 6,9$ пс (см. уравнение (4.47)), что согласуется с экспериментом (см. Рисунок 4.18(а,б)). Из уравнения (4.46) и экспериментально измеренного максимального значения фазовой задержки $\sim 0,9 \cdot 10^{-4}$ рад можно оценить быструю нелинейную постоянную для плавленого кварца $\sim 2 \times 10^{-16}$ см²/Вт. Если учесть дифракцию, дисперсию и поглощение терагерцового импульса и аппроксимировать уравнением (4.50) экспериментальные данные (см. сплошную кривую на Рисунке 4.16(а)), получается более точное значение $(n_2^f)_{\text{SiO}_2} = 3,5 \times 10^{-16}$ см²/Вт.

В случае пустой кюветы (синие точки на Рисунке 4.18(а)) для $\tau > 7$ пс наблюдается остаточный фазовый сдвиг $\Delta\varphi \sim 0,5 \times 10^{-4}$ рад, что соответствует наведенной (под действием терагерцового импульса) деполяризации зондирующего импульса в выходной стенке кюветы. Из-за дифракции терагерцового импульса этот сигнал примерно в 2 раза слабее сигнала от входной стенки кюветы.

Когда кювета была заполнена ацетоном (см. Рисунок 4.18(б)), наблюдается пик фазового сдвига с максимумом $\Delta\varphi_{\text{max}} \sim 4 \cdot 10^{-4}$ рад при ~ 7 пс и последующим постепенным затуханием до нуля. Пик соответствует быстрой части нелинейного отклика, а "хвост" указывает на наличие диффузной ориентации. Длительность пика сигнала деполяризации примерно равна длительности терагерцового импульса. Действительно, из-за сильного терагерцового поглощения в ацетоне ($\alpha \approx 180$ см⁻¹) терагерцовый импульс индуцирует деполяризацию зондирующего импульса в слое толщиной всего ~ 50 мкм, что значительно меньше длины терагерцовой волны. В этом случае, согласно теории, быстрая часть $\Delta\varphi(\tau)$ должна повторять интенсивность терагерцового импульса. Аппроксимируя экспериментальные результаты уравнениями (4.40)-(4.42) (см. кривую на Рисунке 4.18(б)), были определены быстрый $((n_2^f)_{\text{C}_3\text{H}_6\text{O}} = 25 \times 10^{-16}$ см²/Вт) и ориентационный $((n_2^s)_{\text{C}_3\text{H}_6\text{O}} = 85 \times 10^{-16}$ см²/Вт) нелинейные коэффициенты, а также время релаксации $\tau_{\text{C}_3\text{H}_6\text{O}}^r = 1$ пс для ацетона.

При замене ацетона водой керровский сигнал от воды не наблюдался: зависимость фазовой задержки от времени была очень похожа на случай с пустой кюветой, но с

$\Delta\varphi(\tau) = 0$ для $\tau > 7,5$ пс (см. Рисунок 4.18(а)). Отсутствие фазового сдвига для $\tau > 7,5$ пс объясняется отсутствием в выходной стенке кюветы наведенной деполяризации из-за сильного поглощения терагерцового излучения в воде. Стоит заметить, что при использовании терагерцовых импульсов с бо́льшей напряженностью поля, терагерцовый сигнал Керра в воде наблюдался в последующих работах [203] и [112]. В частности, в работе [203] при использовании терагерцового импульса с полем 510 кВ/см (в 1,7 раз больше, чем в проведенном эксперименте) и частотой следования импульсов 1 кГц (в 100 раз больше, чем в проведенном эксперименте) сигнал от воды был в несколько раз больше уровня шума и составлял всего $\sim 10\%$ относительно сигнала Керра от кюветы.

В хлороформе (Рисунок 4.18(в)) фазовая задержка практически повторяет интенсивность терагерцового импульса без какого-либо заметного сигнала после 7,5 пс. Аппроксимируя экспериментальные результаты (с учетом только быстрого нелинейного отклика), получаем $(n_2^f)_{\text{CHCl}_3} = 15 \times 10^{-16} \text{ см}^2/\text{Вт}$. Несмотря на большее в 2,5 раза значение пика фазовой задержки в хлороформе по сравнению с ацетоном, нелинейный коэффициент в хлороформе меньше из-за большей длины взаимодействия терагерцового и оптического импульсов, вследствие ~ 10 раз меньшего поглощения и хорошего согласования скоростей.

На Рисунках 4.19(а) и 4.19(б) показаны $\Delta\varphi(\tau)$ для неполярных жидкостей CCl_4 и C_6H_6 , соответственно. В этих жидкостях терагерцовый и оптический импульсы распространяются с примерно одинаковой скоростью (длина разбегания ~ 1 см), а поглощение терагерцового излучения пренебрежимо мало ($\sim 1 \text{ см}^{-1}$). В CCl_4 , благодаря симметричной молекулярной структуре, может наблюдаться только мгновенный электронный нелинейный отклик, и согласно теории форма $\Delta\varphi(\tau)$ должна повторять квадрат напряженности терагерцового поля (штриховая линия на Рисунке 4.19). Однако видно, что график $\Delta\varphi(\tau)$ заметно шире в интервале задержек $6 < \tau < 8$ пс. Качественно, это объясняется искажением терагерцового импульса при распространении в жидкости (см. Рисунок 4.16). Для бензола (C_6H_6) наблюдаются как быстрый, так и медленный отклики (см. Рисунок 4.19(б)). Экспоненциальный спад, вызванный ориентационной релаксацией молекул бензола, хорошо виден (см. также вставку на Рисунке 4.19(б)). Аппроксимация экспериментальных результатов уравнениями (4.40)-(4.42) (с учетом дифракции терагерцового пучка) дает $(n_2^f)_{\text{CCl}_4} = 10 \times 10^{-16} \text{ см}^2/\text{Вт}$ для

CCl_4 и $(n_2^f)_{\text{C}_6\text{H}_6} = 14 \times 10^{-16} \text{ см}^2/\text{Вт}$, $(n_2^s)_{\text{C}_6\text{H}_6} = 40 \times 10^{-16} \text{ см}^2/\text{Вт}$ и время релаксации $\tau_{\text{C}_6\text{H}_6}^r = 2 \text{ пс}$ для бензола.

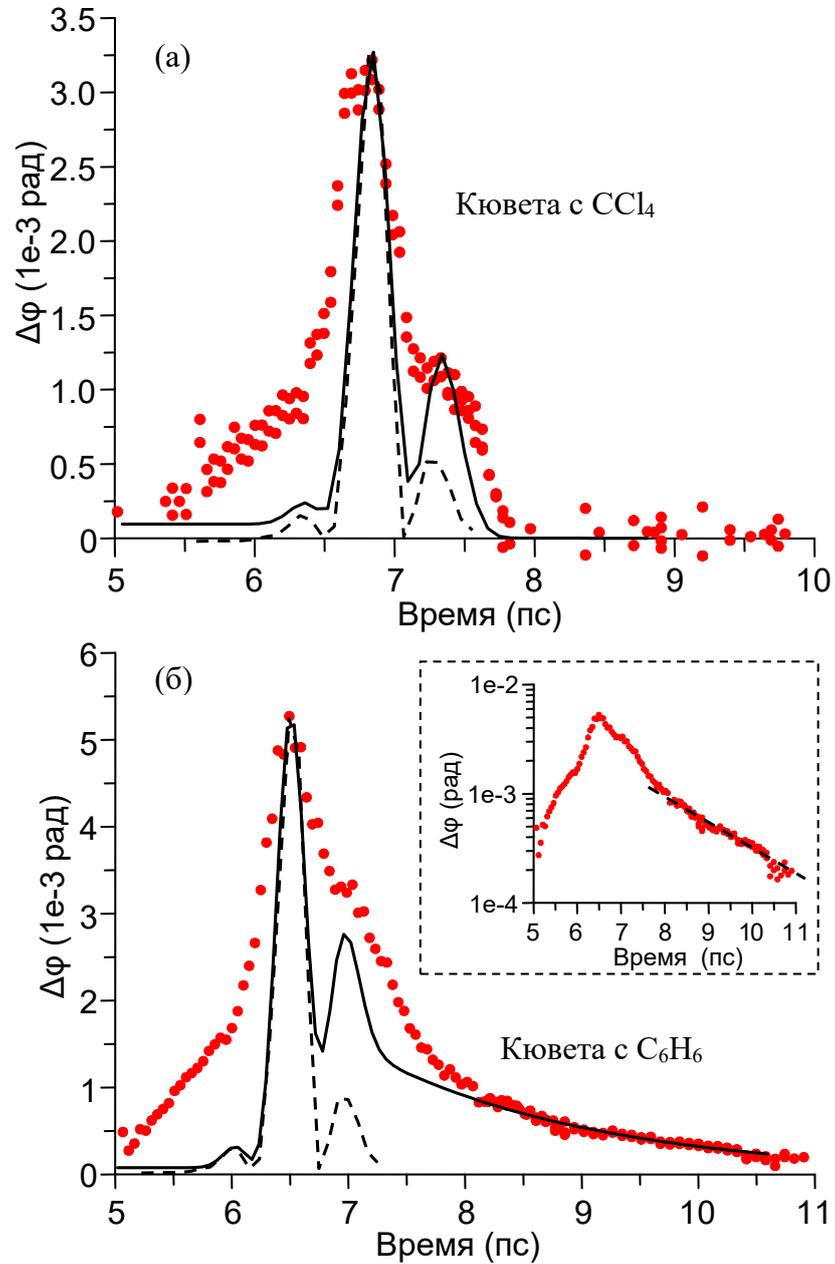


Рисунок 4.19. Фазовый сдвиг $\Delta\phi$ в зависимости от времени задержки τ в кювете заполненной (а) четырёххлористым углеродом (CCl_4) и (б) бензолом (C_6H_6). Сплошные линии – теоретический расчет. Штриховые линии – временная форма квадрата напряженности терагерцового поля.

Обсудим и сравним полученные экспериментальные результаты с предыдущими исследованиями. Для характеристики эффекта Керра в постоянном (DC) или квази-монохроматическом оптическом полях (последний случай насывают оптическим эффектом Керра, или, сокращенно ОЭК) индуцированное двулучепреломление записывают обычно в виде:

$$\Delta n = B_j \lambda_{opt} E^2 \quad (4.52)$$

где $B_j = B_{DC}$ и $B_j = B_{OЭК}$ - константы Керра в постоянном и оптическом полях, соответственно, E - внешнее электрическое поле (для оптического поля берут среднее значение от квадрата поля $E^2 = \langle E^2 \rangle$), λ_{opt} - длина волны зондирующего излучения. Константа Керра для постоянного поля может быть записана в виде суммы четырех слагаемых [204]:

$$B_{DC} \sim \gamma + \frac{\Delta\alpha_p \Delta\alpha_{DC}}{5kT} + \frac{2\beta\mu}{3kT} + \frac{\Delta\alpha_p \mu^2}{5k^2 T^2}, \quad (4.53)$$

где μ - постоянный дипольный момент молекулы, γ и β - молекулярные гиперполяризуемости первого и второго порядка, $\Delta\alpha_p$ и $\Delta\alpha_{DC}$ - анизотропия молекулярной поляризуемости для зондирующего оптического импульса и постоянного поля соответственно, k - постоянная Больцмана, T - температура. В оптическом эффекте Керра постоянный дипольный момент не дает вклад в (4.53) из-за быстрых колебаний электрического поля, и последние два члена исчезают, что дает

$$B_{OЭК} \sim \gamma + \frac{\Delta\alpha_p \Delta\alpha_{pump}}{5kT}, \quad (4.54)$$

где $\Delta\alpha_{pump}$ - анизотропия молекулярной поляризуемости для оптического возбуждающего излучения (обычно $\Delta\alpha_p \approx \Delta\alpha_{pump}$).

Для оценки константы терагерцового эффекта Керра B_{THz} из проведенных измерений просуммируем быстрый и ориентационный нелинейные коэффициенты $n_2 = n_2^f + n_2^s$, то дает (в системе СИ)

$$B_{THz} = n_2 \varepsilon_0 n_{THz} c \lambda_{opt}^{-1}, \quad (4.55)$$

где ε_0 - диэлектрическая проницаемость вакуума, n_{THz} - показатель преломления среды в терагерцовом диапазоне. Также в уравнении (4.52) E предполагается равным пиковому значению терагерцового электрического поля. Отметим, что введенная константа (4.55) отличается от приведенной в работе [108] константы B_{THz}^{Hoff} , которая получена из пикового керровского сигнала без разложения на быстрый и медленный отклики. Определение

(4.55) является более универсальным, поскольку B_{THz}^{Hoff} может зависеть от длительности возбуждающего импульса в случае существенного вклада медленной (ориентационной) нелинейности (см. уравнение (4.42)).

Расчитанные из экспериментальных данных константы B_{THz} , а также константы Керра B_{DC} и $B_{OЭК}$ из данных других работ приведены в Таблице. 4.2. При определении B_{THz} важным является аккуратность в измерении абсолютных значений напряженности терагерцового поля и наведенного сдвига фазы. В качестве проверки, можно использовать данные для плавленого кварца, поскольку в нем нелинейный отклик определяется только электронной компонентой нелинейности и почти не зависит от частотного диапазона (что видно из сравнения B_{DC} и $B_{OЭК}$, в Таблице 4.2). И, действительно, полученное значение $B_{THz} = 6 \times 10^{-16}$ м/В² оказалось близким B_{DC} и $B_{OЭК}$, что подтверждают корректность проведённых измерений. Для жидкостей, однако, теоретическая аппроксимация и экспериментальные данные имели некоторое расхождение, поэтому погрешность полученных значений B_{THz} можно оценить около 30%.

Таблица 4.2. Нелинейные константы Керра $n_2^f, n_2^s, B_{THz}, B_{THz}^{Hoff}, B_{DC}, B_{opt}$ (см. пояснение в тексте) и время релаксации τ^r для исследованных материалов. Значения B_{THz} получены для зондирующего импульса на длине волны 800 нм. Литературные данные для B_{DC} и B_{opt} [205] перерасчитаны на длину волны 800 нм по формуле (4.52) в пренебрежении зависимости керровского отклика от длины волны.

Материал	$n_2^f,$ 10^{-20} м ² /Вт	$n_2^s,$ 10^{-20} м ² /Вт	τ , пс	$B_{THz},$ 10^{-16} м/В ²	$B_{THz}^{Hoff},$ 10^{-16} м/В ²	$B_{DC},$ 10^{-16} м/В ²	$B_{opt},$ 10^{-16} м/В ²
Плавленый кварц	3.5	-	-	2.7	Нет	~ 2.5	~ 2.2
Ацетон (CH ₃) ₂ CO	25	85	1	57	нет	~ 1500	~ 5
Хлороформ CHCl ₃	15	нет	нет	7.6	4.5	~ -250	~ 13
CCl ₄	10	-	-	4.9	12	~ 6	~ 3
Бензол C ₆ H ₆	14	40	2	27	26	~ 30	~ 35

Для высокосимметричных молекул CCl_4 эффект Керра определяется только электронной гиперполяризуемостью γ ($\Delta\alpha = 0$, $\beta = 0$). В результате, константы Керра для постоянного и оптического полей в четыреххлористом углероде практически одинаковы ($\sim 6 \times 10^{-16}$ м/В² и $\sim 3 \times 10^{-16}$ м/В², соответственно). В терагерцовом диапазоне разумно предположить, что константа Керра должна иметь схожее значение, что подтверждается проведенным экспериментом ($V_{\text{THz}} = 4,9 \times 10^{-16}$ м/В²). Заметим, что в работе [108] была получена терагерцовая константа Керра ($\sim 12 \times 10^{-16}$ м/В²), что кажется завышенным и не может найти физического объяснения.

Изолированная молекула ацетона обладает большим постоянным дипольным моментом ($\mu = 2.65$ Д) и ненулевой анизотропией поляризуемости. В случае постоянного поля вклад в константу Керра от постоянного дипольного момента (последнее слагаемое в уравнении (4.53)) существенно превышает вклады от других членов. В ОЭК постоянный момент не вносит вклад в коэффициент Керра, что приводит к значительно меньшему $V_{\text{ОЭК}}$ ($\sim 5 \times 10^{-16}$ м/В²) по сравнению с V_{DC} ($\sim 1500 \times 10^{-16}$ м/В²). Измеренная терагерцовая константа Керра составила $V_{\text{THz}} = 57 \times 10^{-16}$ м/В², что примерно в 10 раз больше $V_{\text{ОЭК}}$, но в 30 раз меньше V_{DC} . Большее значение V_{THz} по сравнению с $V_{\text{ОЭК}}$ объясняется ненулевым вкладом постоянного дипольного момента из-за значительно большего (по сравнению с оптическим излучением) периода терагерцового излучения (~ 1 пс), сопоставимым с временем дебаевской релаксации τ_D (~ 3 пс для ацетона). В то же время, длительность терагерцового импульса недостаточна для полной ориентации молекул до их стационарного распределения, поэтому терагерцовый керровский отклик должен быть меньше, чем в случае постоянного поля. Для количественного сравнения V_{DC} и V_{THz} можно воспользоваться теоретическими моделями [206], [207] в которых рассматривалось влияние частоты внешнего поля ω на константу Керра. На основе этих исследований теоретическое значение V_{THz} для ацетона может быть записано в форме уравнения (4.53) без третьего слагаемого, но с четвертым членом, умноженным на частотно-зависимый фактор $K(\omega) \approx 1/(1 + (\omega\tau_{\text{eff}})^2)$, где $\tau_{\text{eff}} \sim \tau_D$. Принимая частоту внешнего (терагерцового) поля $\omega/2\pi = 0,7$ ТГц, учет фактора $K(\omega)$ дает $V_{\text{DC}}/V_{\text{THz}} \sim 50$, что хорошо согласуется с проведенным экспериментом.

Согласно измерениям фемтосекундного ОЭК, динамика керровского отклика ацетона содержит как мгновенный электронный, так и ядерный отклики, включая два экспоненциальных процесса с быстрым и медленным временами релаксации $\tau_f = 0,2$ пс

и $\tau_s = 1$ пс, соответственно. Медленный ядерный отклик (с $\tau_s = 1$ пс) может быть связан с ориентационной диффузией. Такой медленный отклик также наблюдался в проведенном эксперименте с тем же временем релаксации ($\tau^r = 1$ пс). Время быстрого ядерного отклика сравнимо с длительностью терагерцового импульса, поэтому в проведенном эксперименте он вносит вклад в быстрый терагерцовый отклик (вместе с мгновенным электронным откликом). Сравним амплитуды быстрого и медленного керровских откликов для фемтосекундного оптического и терагерцового эффектов Керра. Для описания нерезонансных ядерных откликов в сверхбыстром ОКЭ можно использовать модель экспоненциальной релаксации с инерционным нарастанием [208]:

$$R_{f,s}(t) = F_{f,s} \exp(-t/\tau_{s,f}) [1 - \exp(-t/\tau_I)], \quad (4.56)$$

где τ_I - время инерционного нарастания (для $(\text{CH}_3)_2\text{CO}$ принимается $\tau_I = 200$ фс [208]), а $F_{f,s}$ - амплитуды быстрого и медленного керровских откликов $R_{f,s}(t)$, соответственно. Из данных работы [208] для 30 фс оптических импульсов накачки получены амплитуды $F_f = 0,18$ и $F_s = 0,06$, что дает амплитуды молекулярных керровских сигналов 0,045 и 0,035 соответственно. Для более длинного лазерного импульса с длительностью, близкой к длительности терагерцового импульса (300 фс), керровский отклик может быть аппроксимирован сверткой $R_{s,f}(t)$ с интенсивностью зондирующего импульса (аналогично уравнению (4.42)), что дает пиковые сигналы для быстрого и медленного ядерных откликов около 0,18 и 0,2 соответственно. Поскольку τ_f меньше длительности виртуальной накачки (длительностью 300 фс), быстрый ядерный отклик нельзя отделить от мгновенного электронного отклика, что дает отношение медленного к быстрому пиковым керровским откликам $Q = 0,2/(1 + 0,18) \approx 0,17$. В нашем эксперименте это отношение было ~ 1 (см. штриховую и штрихпунктирную кривые на Рисунке 4.18(б)). Это расхождение можно объяснить наличием постоянного диполя у молекулы ацетона, который при терагерцовом возбуждении может увеличивать не только медленный (ориентационный), но и быстрый ядерные отклики, приводя к большему значению Q . Действительно, характерное время ядерных движений сравнимо с длительностью терагерцового импульса, поэтому за время действия терагерцового поля на постоянный диполь молекулы успевают повернуться, что приводит к возмущению их углового распределения. В результате при следующем акте взаимодействия с терагерцовым полем

возникает ненулевое значение керровского отклика, обусловленного постоянным моментом молекулы [111].

Хлороформ, как и ацетон, также обладает большим постоянным дипольным моментом (~ 1 Д), поэтому константа Керра для постоянного поля определяется в основном последним (дипольным) членом в уравнении (4.53). Однако из-за отрицательного знака анизотропии поляризуемости молекулы хлороформа (ввиду большого угла между постоянным диполем и направлением максимальной поляризуемости), знак константы B_{DC} отрицательный ($B_{DC} \sim -250 \times 10^{-16}$ м/В²). Оптическая константа Керра хлороформа положительна ($B_{OЭК} \sim 13 \times 10^{-16}$ м/В²) и значительно меньше абсолютного значения B_{DC} . В проведенном эксперименте была получена терагерцовая константа Керра, вдвое меньше оптической. Качественно, это согласуется приведенным выше рассуждением (для ацетона) о влиянии постоянного дипольного момента на B_{THz} , поскольку из-за разных знаков второго и четвертого членов в уравнении (4.53), B_{THz} должен быть меньше $B_{OЭК}$. Если же сравнивать вклад дипольного момента в B_{THz} относительно электронной нелинейности, то этот вклад для хлороформа оказывается заметно меньше, чем для ацетона. Действительно, величина постоянного дипольного момента хлороформа в 2,6 раза меньше, чем у ацетона, а время дебаевской релаксации в два раза больше ($\tau_D \approx 6 - 7$ пс), что уменьшает $K(\omega)$ в 3-4 раза. Учитывая, что быстрый отклик у хлороформа примерно в 2-3 раза больше, чем у ацетона (см. $B_{OЭК}$ в Таблице 4.2), относительный вклад постоянного дипольного момента в B_{THz} (пропорциональный $\sim \mu^2 K(\omega)$) хлороформа должен быть примерно ~ 50 раз меньше, чем для ацетона.

В фемтосекундном ОЭК, керровский сигнал в хлороформе демонстрирует электронный и три ядерных отклика с временными константами 0,165 пс, 0,55 пс и 2 пс, с пиковыми керровскими сигналами 0,3, 0,15 и 0,05 относительно пикового электронного отклика (для возбуждающего импульса длительностью ~ 70 фс) [106]. Последний из перечисленных откликов (с амплитудой 0,05 и длительность 2 пс) связан с диффузионной ориентацией. В проведенном эксперименте, в отличие от ацетона, ориентационный отклик не наблюдался (теоретический расчет на Рисунке 4.18(в) проведен с учетом только быстрого отклика). Это объясняется более слабым влиянием постоянного момента на ориентационное движение из-за меньшего значения μ и большего значения τ_D (см. выше).

При больших терагерцовых полях (около 2 МВ/см) ориентационный отклик в хлороформе наблюдался в работе [111].

Молекула бензола не имеет постоянного дипольного момента, что дает близкие значения коэффициентов Керра для постоянного и оптического полей 30×10^{-16} м/В² и 35×10^{-16} м/В², соответственно. Логично ожидать, что терагерцовый коэффициент Керра должен иметь примерно такое же значение. Действительно, из экспериментальных данных было получено $V_{THz} \approx 27 \times 10^{-16}$ м/В², что также согласуется с данными работы [108]. Быстрые ядерные отклики, наблюдаемые в бензоле в фемтосекундном ОЭК, а именно два промежуточных отклика с временами релаксации 0,2 и 0,5 пс, а также либрационный отклик с частотой около 2 ТГц [209], не были обнаружены в проведенном эксперименте из-за большой длительности терагерцового импульса (эти отклики включены в n_2^f). Аппроксимация экспериментальных данных уравнениями (4.41, 4.42) с $n_2^f = 14$ м²/Вт и $n_2^s = 40$ м²/Вт дает сплошную кривую на Рисунке 4.19(б), качественно совпадающую с экспериментом. Измеренное время ориентационной релаксации $\tau_{C6H6}^r = 2$ пс согласуется с данным работы [209], где было получено значение $\sim 2,5$ пс.

4.5. Наведенная терагерцовым полем оптическая люминесценция в графене и возможности ее применения для визуализации терагерцового пучка

В данном параграфе приведены результаты экспериментальных исследований люминесцентных свойств графена под действием терагерцового поля большой напряженности, а также возможности использования данного эффекта для визуализации самого терагерцового пучка. Используемые для исследования интенсивные терагерцовые импульсы генерировались в кристалле LiNbO₃ фемтосекундными лазерными импульсами со скошенным фронтом интенсивности (см. схему генерации на Рисунке 4.5 и параметры лазерного излучения в п. 4.1). Терагерцовое излучение с диаметром пучка ~ 2 см фокусировалось внеосевым параболическим зеркалом с $F = 5$ см (ПЗ₃ на Рисунке 4.5) в однослойный графен на подложке из полиэтилентерефталата (ПЭТ) (см. Рисунок 4.20(а)). Пиковая напряженность электрического поля терагерцового импульса в фокусе параболы достигала 250 кВ/см (см. вставку на Рисунке 4.21).

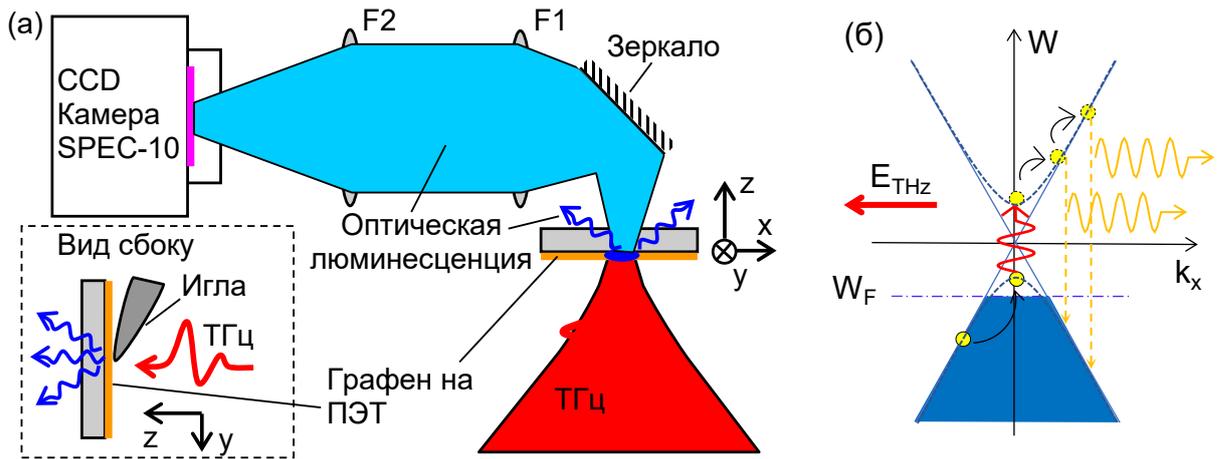


Рисунок 4.20. (а) Схема регистрации оптической люминесценции, наводимой полем терагерцового импульса в одослойном графене на ПЭТ подложке. Во вставке показан случай, когда к поверхности графена прижимают металлическую иглу (вид сбоку). (б) Энергетическая диаграмма, поясняющая возникновение люминесценции во внешнем электрическом поле. Энергия Ферми W_F показана штрихпунктирной прямой. Сплошные и пунктирные линии соответствуют зависимости энергии W от проекции волнового числа k_x : $W(k_x) = \pm \hbar v_F \sqrt{k_x^2 + k_y^2}$, когда другая проекция волнового числа $k_y = 0$ и $k_y \neq 0$, соответственно (координатные оси x, y лежат в плоскости графена, v_F – скорость Ферми, \hbar – постоянная Планка) [117].

В результате воздействия терагерцового поля на образец с графеном, в эксперименте наблюдалась оптическая люминесценция. Механизм возникновения люминесценции качественно проиллюстрирован на Рисунке 4.20(б). Под действием меняющегося терагерцового поля электроны ускоряются, что приводит к перераспределению их импульсов в k -пространстве (пространстве волновых векторов) и переходу из валентной зоны (первоначально занятой ниже уровня Ферми ~ 350 мэВ) в зону проводимости за счет эффекта Ландау-Зинера [117]. После последующего нагрева и перераспределения в зоне проводимости эти электроны рекомбинируют с дырками валентной зоны, что приводит к оптическому излучению (люминесценции). Генерируемое вперед (в направлении падения терагерцового импульса) оптическое излучение люминесценции после отражения от алюминиевого зеркала собиралось объективом F1 ($D = 45$ мм и $NA = 1$) и затем фокусировалось объективом F2 (Canon EF 50 mm F/1.4) в высокочувствительную охлаждаемую (до -65° C) Si-CCD камеру SPEC-10:400BR (Princeton Instruments). Оптическая система (линза F1 и объектив F2) была

настроена на перенос изображения поверхности графена на матрицу Si-CCD камеры с коэффициентом переноса, близким к единице. Таким образом, снимок камеры отображал индуцированную терагерцовым пучком светящуюся область на графене. Вся система регистрации была тщательно изолирована от внешнего света (включая лазерное излучение), измерения проводились при комнатной температуре. Для качественной съемки довольно слабого люминесцентного излучения время экспозиции CCD камеры составляло 100 с. Измерение области люминесценции проводились при различных положениях образца вдоль фокальной перетяжки терагерцового пучка (вдоль оси z), тем самым изменялся размер и форма терагерцового пятна на образце.

Для сравнения изображений области люминесценции с профилем терагерцового пучка, последний был измерен методом двумерного оптического стробирования [210]. Для этого вместо образца был помещен кристалл (110) GaP толщиной 0,2 мм. Зондирующий фемтосекундный оптический импульс (с диаметром пучка в несколько раз больше размера терагерцового пучка) пропускаться через кристалл с переменной временной задержкой. За кристаллом были размещены оптический поляризатор (призма Глана) и линза для переноса на матрицу обычной CCD камеры изображения оптической деполяризации, индуцированной терагерцовым полем в кристалле. В данной схеме наведенная оптическая деполяризация пропорциональна квадрату терагерцового поля, т.е. мгновенной интенсивности терагерцового импульса. Результирующее поперечное распределение терагерцового пучка было получено путем суммирования всех снимков мгновенной интенсивности (примерно 30 снимков с шагом по времени 0,033 пс). Также в центре терагерцового пучка производились измерения осциллограммы терагерцового поля классическим методом электрооптического стробирования (см. схему на Рисунке 4.5).

В ходе экспериментов также была проведена характеристика оптической люминесценции: измерена зависимость сигнала люминесценции от напряженности терагерцового поля и спектр люминесценции при максимальном поле (250 кВ/см). Сигнал люминесценции рассчитывался как сумма отчетов CCD камеры (за вычетом фотона). Для измерения спектра оптической люминесценции использовались различные светофильтры (а также их комбинации), которые располагались перед CCD камерой. По известному коэффициенту пропусканию светофильтров и спектральной чувствительности кремниевой матрицы камеры восстанавливался спектр люминесценции.

На Рисунке 4.21 кружочками показан энергетический спектр люминесценции при максимальной напряженности терагерцового поля около 250 кВ/см. Спектр монотонно растет до максимальной детектируемой длины волны (около 1000 нм, обусловленной ограниченной чувствительностью кремниевой CCD матрицы камеры). Данные хорошо аппроксимируются тепловым спектром с температурой около 2500 К. Максимум такого теплового спектра находится около 1,5 мкм. Таким образом, кремниевая CCD камера позволяет детектировать лишь незначительную часть фотонов оптической люминесценции, около 6%.

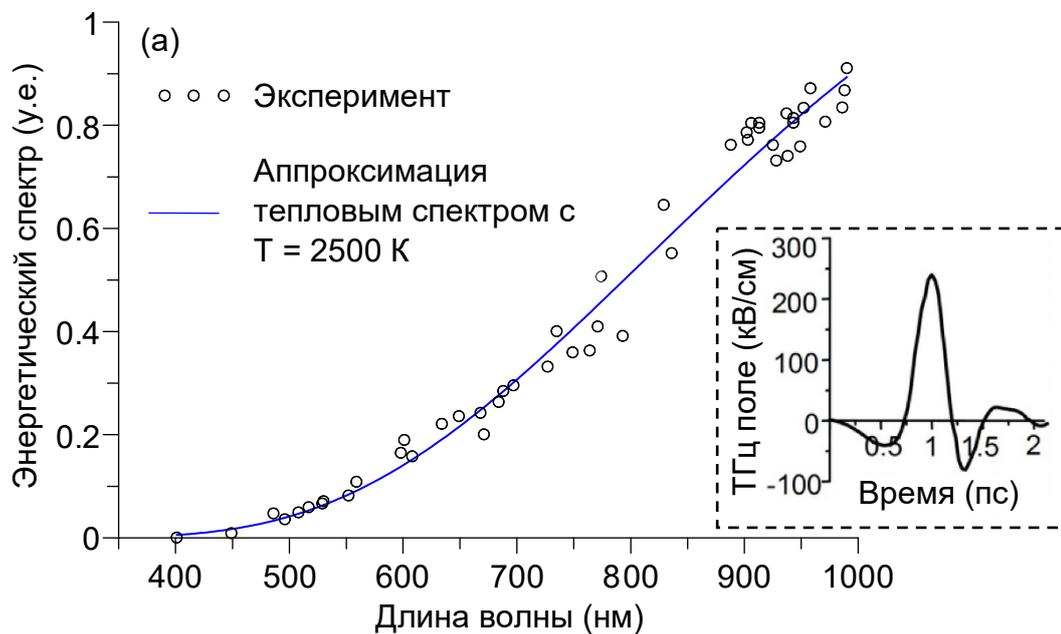


Рисунок 4.21. Измеренный энергетический спектр люминесценции при $E_{\text{THz}} = 250$ кВ/см (кружочки) и тепловой спектр с температурой 2500 К (сплошная кривая). Во вставке показана осциллограмма терагерцового поля, падающего на образец.

При измерении всего наблюдаемого спектра (в диапазоне чувствительности CCD камеры 350-1100 нм) наблюдалось резкое уменьшение сигнала люминесценции с уменьшением напряженности терагерцового поля (см. Рисунок 4.22(a)). Например, при уменьшении поля в 2 раза сигнал уменьшался примерно на два порядка. Зависимость на Рисунке 4.22(a) хорошо аппроксимируется степенной функцией с показателем степени около 6 (точнее, 5,7). На рисунке 4.22(б) показана зависимость сигнала люминесценции от напряженности терагерцового поля в различных частотных областях люминесценции. Видно, что для более высокочастотного спектра спадание сигнала люминесценции

происходит быстрее. Это свидетельствует об уменьшении эффективной температуры излучаемого спектра при уменьшении напряженности терагерцового поля.

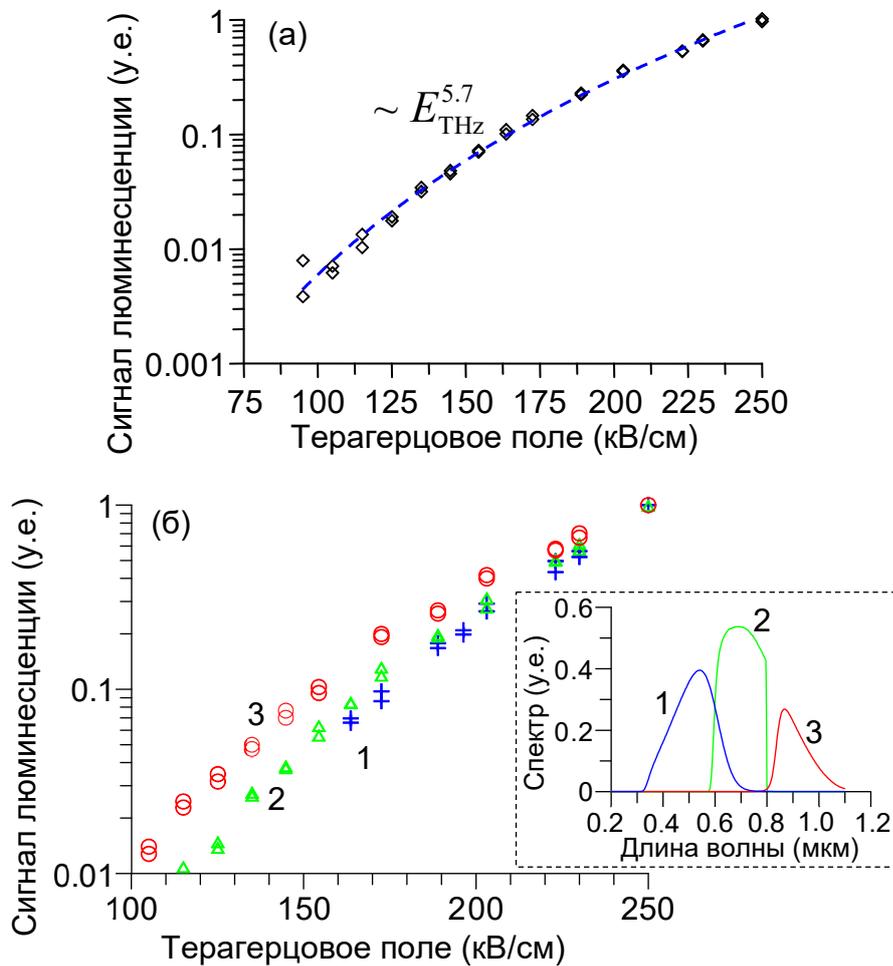


Рисунок 4.22. Нормированный на максимум сигнал люминесценции в зависимости от пиковой напряженности электрического поля терагерцового импульса для (а) всего детектируемого спектра (ромбики) и (б) определенных областей спектра, выделенных соответствующими светофильтрами (спектры пропускания светофильтров показаны во вставке и соответствующе пронумерованы). Штриховая кривая на (а) аппроксимирует экспериментальные данные степенной зависимостью.

Интересно, что в проведенных измерениях, как и в пионерской работе [117], где для регистрации люминесценции из графена вместо кремниевой CCD камеры использовался ФЭУ (Hamamatsu R4220P), наблюдалось примерно одинаковое предельное поле обнаружения люминесценции (~ 100 кВ/см, при котором сигнал/шум ~ 1). Схожая чувствительность обоих детекторов (по величине терагерцового поля), несмотря на

несомненные преимущества ФЭУ при измерении слабого оптического сигнала, объясняется более широким спектральным диапазоном кремниевой CCD матрицы (300-1110 нм по сравнению с 300-500 нм у ФЭУ). Более того, максимум спектральной чувствительности кремниевой камеры вблизи 800 нм находится ближе к максимуму спектра люминесценции $\sim 1,5$ мкм (см. обсуждение выше графика 4.21(а)). Таким образом, расширение спектральной области обнаружения до 1 мкм с использованием кремниевой CCD матрицы позволило реализовать многопиксельную терагерцовую визуализацию с тем же предельным терагерцовым полем, что и «однопиксельное» обнаружение с использованием ФЭУ в работе [117]. Применение камер среднего ИК диапазона (например, на основе InGaAs, работающих в диапазоне 1-1,7 мкм) вполне способно существенно снизить пороговое поле обнаружения люминесценции.

Изображения области наведенной люминесценции и терагерцового пучка (измеренного методом электрооптического стробирования) в различных поперечных сечениях вдоль оси z , показаны на Рисунках 4.23 (а-в) и 4.23 (г-е), соответственно. Видно, что изображения при одном z похожи по форме. В фокальной плоскости ($z = 0$) пучок и наведенная люминесценция имеют круглую форму (Рисунок 4.23(б, д)), а вне фокуса приобретают эллиптичность: до фокуса ($z = -2$ мм) изображения вытянуты вдоль горизонтальной оси (Рисунок 4.23 (а, г)), а после фокуса ($z = 1$ мм) – вдоль вертикальной оси (Рисунок 4.23 (в, е)). Таким образом, можно сказать, что изображение наведенной люминесценции позволяет правильно представить форму терагерцового пучка. Однако более детальный анализ выявляет некоторые различия между двумя методами визуализации. Во-первых, ширина терагерцового пучка всегда больше ширины области люминесценции (см. одномерные профили на Рисунках 4.23 (ж-и)). Во-вторых, вне фокуса сигнал люминесценции падает в три раза, тогда как при прямых измерениях терагерцового пучка уменьшение сигнала деполяризации зондирующего оптического пучка составляет всего 35-45%. Эти отличия объясняются приведенной на Рисунке 4.22(а) сильной зависимостью люминесценции от напряженности терагерцового поля. Действительно, при ввиду кубической зависимости люминесценции от терагерцовой интенсивности следует ожидать более узкой области люминесценции по сравнению с реальным размером терагерцового пучка. Если возвести в третью степень профиль терагерцового пучка (см. пунктирные кривые на Рисунках 4.23 (ж-и)), то наблюдается

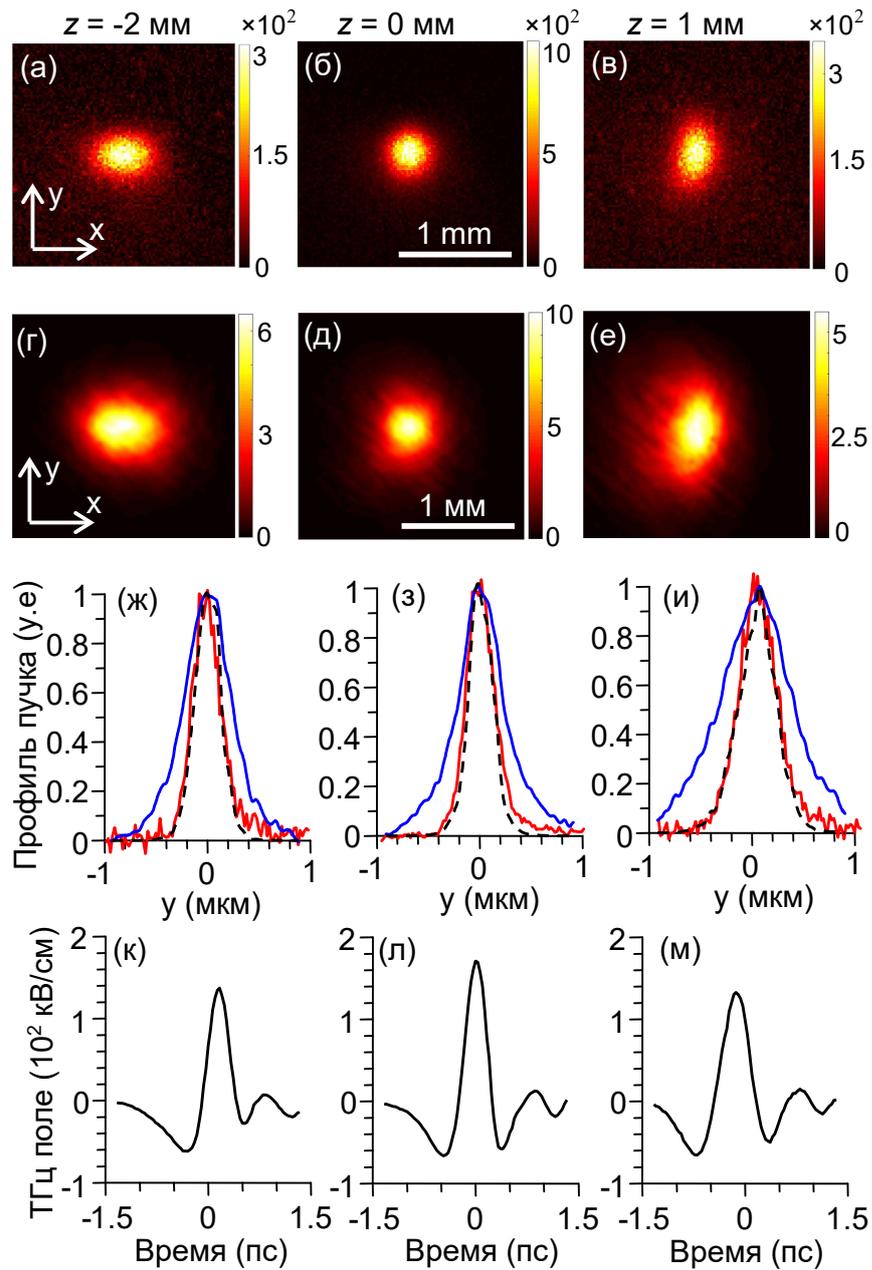


Рисунок 4.23. Изображения (а-в) области наведенной люминесценции и (г-е) терагерцового пучка в различных поперечных сечениях вдоль перетяжки сфокусированного пучка при (а),(г) $z = -2$ мм, (б),(д) $z = 0$ мм, (в),(е) $z = 1$ мм. (ж-и) Соответствующие верхним изображениям люминесценции (красные кривые) и терагерцовых пучков (синие кривые) профили вдоль оси y . Пунктирные черные линии соответствуют профилям терагерцовых пучков, возведенные в третью степень. (к-м) Осциллограммы терагерцовых полей в центре пучка. Профили и осциллограммы соответствуют сечениям (ж),(к) $z = -2$ мм, (з),(л) $z = 0$ мм, (и),(м) $z = 1$ мм.

хорошее совпадение с профилем люминесценции. Более сильное падение сигнала люминесценции при перемещении образца вдоль фокуса объясняется уменьшением пиковой напряженности терагерцового импульса (см. осциллограммы на Рисунках 4.23 (к-м)). При смещении графена из фокуса пиковая напряженность терагерцового поля уменьшается примерно на 20% (форма импульса меняется незначительно). Согласно Рисунку 4.22(а), это должно приводить к уменьшению сигнала люминесценции в 3 раза, что согласуется с Рисунками 4.23(а-в).

Сильная нелинейная зависимость люминесценции от напряженности терагерцового поля, с одной стороны, нежелательна для визуализации, поскольку может привести к искажению профиля терагерцового пучка. С другой стороны, она может быть благоприятной для выделения локальных неоднородностей в пучке. Кроме того, атомарная толщина графена позволяет визуализировать локальное распределение поля, что может быть использовано, например, для измерений ближнего поля на субволновых масштабах. Для демонстрации этой особенности была исследована возможность усиления люминесценции за счет локального усиления поля на кончике металлической иглы. Для этого в области терагерцового пучка к поверхности графена прижималась заостренная металлическая проволока (см. вставку на Рисунке 4.20(а)) с радиусом кривизны острия около 2 мкм (Рисунок 4.24(д)). Иголочка была ориентирована параллельно поляризации терагерцового поля (вдоль оси y). Изображения пространственного распределения люминесценции при расположении острия в центре и на периферии терагерцового пучка представлены на Рисунке 4.24(а-г). Вблизи острия иглы наблюдается усиление сигнала люминесценции в 3,5-4 раза. Кратность увеличения не зависит от положения иглы относительно терагерцового пучка. Диаметр области усиленной люминесценции составляет около 50 мкм. Это существенно больше характерного размера области усиленного поля, которая должна быть порядка радиуса кривизны острия [211]. Такое сильное расхождение объясняется большим размером пикселя матрицы CCD камеры (20 мкм), а также небольшими искажениями при переносе изображения. Если предположить, что реальная область усиленного оптического излучения ограничена областью усиления терагерцового поля (диаметром несколько микрометров), и учесть степенную зависимость люминесценции от поля (Рисунок 4.22(а)), то оценка даст трехкратное усиление электрического поля вблизи острия. Это находится в разумном согласии с численными расчетами структуры ближнего поля [211]. Стоит отметить, что

сильная нелинейность сигнала люминесценции в этих измерениях сыграла важную роль. Действительно, если бы люминесценция линейно зависела от терагерцовой интенсивности, то дополнительный сигнал из-за усиления поля в одном пикселе CCD камеры составил бы всего несколько процентов (эта оценка получена как произведение коэффициента усиления по интенсивности на игле на отношение площадей области усиления к площади пикселя). Таким образом, изображение терагерцового пучка на основе эффекта люминесценции позволяет подчеркнуть изменения в профиле терагерцового пучка. Использование матрицы камеры с меньшим размером пикселя в сочетании с большим оптическим увеличением системы переноса изображения позволит измерить более подробный профиль распределения ближнего поля, близкий к оптическому разрешению системы переноса изображения (~ 1 мкм).

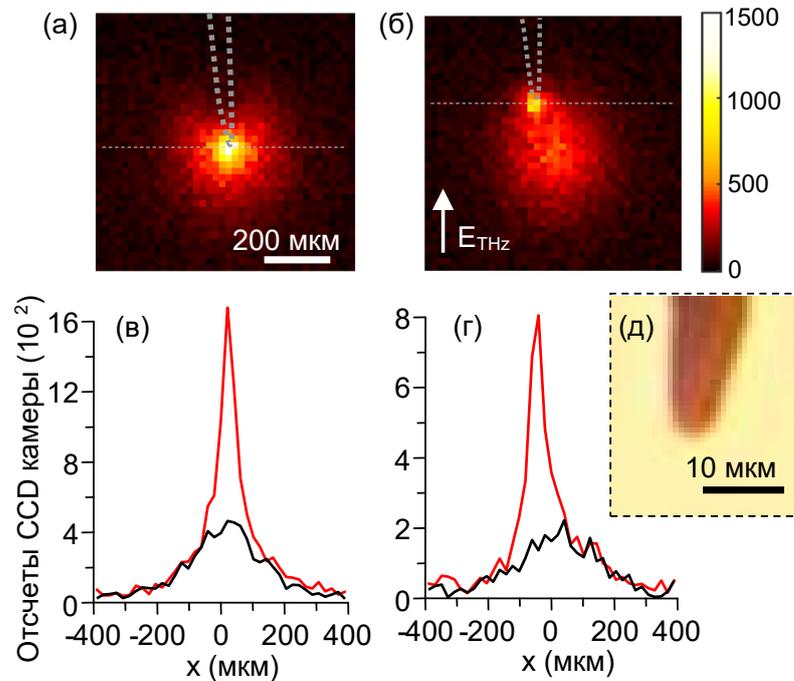


Рисунок 4.24. Фотографии, демонстрирующие усиление люминесценции вблизи кончика иглы, помещенной в центр (а,в) и на периферии (б,г) терагерцового пучка ($z = 0$, терагерцовое поле ~ 150 кВ/см). На двумерных изображениях (а,б) пунктирная серая кривая показывает границу иглы. Красные кривые на (в) и (г) соответствуют сечениям области люминесценции, вдоль белых пунктирных линий, изображенных на (а) и (б), соответственно. Черные кривые на (в) и (г) представляют собой сечения люминесценции без иглы. (д) Фотография кончика иглы, сделанная с помощью оптического микроскопа.

Обсудим возможности и перспективы практического применения методики измерения терагерцового пучка по наведенной в графене оптической люминесценции. Во-первых, чувствительность предлагаемого метода может быть увеличена в несколько раз за счет увеличения угла сбора оптического излучения, например, путем прижатия графена непосредственно на матрицу CCD камеры. Также существенное улучшение в детектировании более слабого, чем в данной работе, терагерцового излучения может быть получено за счет использования микроструктурированной подложки (или покрытия) для графена с металлическими микроиглами или микрорезонаторами, что приводит к профилированию пучка двумерным массивом люминесцентных точек (аналогично работам [114], [115], где терагерцовый пучок визуализировался по люминесценции квантовых точек, возбуждаемых за счет усиления терагерцового поля в поверхностной структуре, состоящей из параллельных полос с микро-зазорами). Во-вторых, по сравнению с прямой визуализацией терагерцового пучка инфракрасными камерами [212], использование эффекта люминесценции и детектирование кремниевыми матрицами позволяет избежать тепловой засветки, способное существенно затруднить измерения (экранировать видимый свет гораздо проще). В-третьих, можно ожидать, что предлагаемая методика будет широкополосной, охватывающей большую часть терагерцового диапазона (или даже за ее пределами). Действительно, переход Ландау-Зенера (определяющий люминесценцию, вызванную терагерцовым полем) является нерезонансным процессом, определяемым в основном величиной поля [117], что не должно давать значительной зависимости чувствительности люминесценции от частоты терагерцового излучения. Ограничение может возникнуть, когда возможно будут проявляться другие процессы, такие как тепловой нагрев или прямые межзонные переходы. В-четвертых, при увеличении напряженности терагерцового поля до умеренного уровня МВ/см (что уже доступно во многих лабораториях [1]) сигнал люминесценции может возрасти в несколько тысяч раз (см. Рисунок 4.22(a)), что достаточно для регистрации обычными (не охлаждаемыми) и более дешевыми CCD камерами. В этом аспекте стоит отметить работу [213], где терагерцовый пучок ближнего спектрального диапазона (1-3 ТГц) но со сверхсильным полем, более 10 МВ/см, наблюдался напрямую обычной кремниевой CCD-камерой. В-пятых, как было отмечено выше, из-за сильно нелинейной зависимости люминесценции от напряженности терагерцового поля данная методика может быть полезна в нелинейных терагерцовых

исследованиях, например, для точного определения фокуса терагерцового пучка, поиска области усиленного поля и т.п. В этом аспекте наиболее интересным представляется применение метода для картирования ближнего поля, формируемого на микроструктурах. По сравнению с оптической визуализацией ближнего поля терагерцового излучения методом электрооптического стробирования [212], метод наведенной люминесценции не требует ни временного, ни растрового сканирования. Кроме того, разрешение по глубине в методе электрооптического стробирования ограничено толщиной детектирующих кристаллов. В случае же метода наведенной оптической люминесценции, благодаря атомарной толщине графена, разрешение по глубине будет определяться в основном технологий позиционирования слоя графена, а поперечное разрешение определяется в основном длиной волны оптической люминесценции, и при спектральной фильтрации может достигать субмикронного масштаба.

4.6. Выводы по главе 4

Проведены теоретические и экспериментальные исследования нелинейных эффектов, таких как генерация второй оптической гармоники, эффект Керра и люминесценция, наводимые интенсивными терагерцовыми импульсами в различных средах. Продемонстрированы особенности этих эффектов (по сравнению с постоянным полем), возникающие из-за короткой длительности терагерцовых импульсов, а также вследствие большой напряженности электрического поля, что открывает новые возможности по расширению методов нелинейно-оптической диагностики. В частности:

- Разработана одномерная теория генерации второй оптической гармоники при совместном распространении фемтосекундного оптического и пикосекундного терагерцового импульсов в прозрачных средах с кубической нелинейностью. Получено и проанализировано приближенное аналитическое выражение поля второй гармоники (ВГ) для случая адиабатической генерации, когда длина когерентности между основной и второй гармониками оптического импульса значительно меньше длины разбега между основным оптическим и терагерцовым импульсами. Показано, что в таком адиабатическом режиме излучение ВГ возникает, когда основной оптический и терагерцовый импульсы перекрываются вблизи входной и выходной границ нелинейного слоя, и отсутствует при наложении импульсов в объеме слоя. Проведена

экспериментальная проверка теоретических предсказаний с использованием пластины плавленого кварца толщиной 3 мм. Получено хорошее согласие с теорией.

- На основе обнаруженного эффекта гашения наведенной ВГ при адиабатическом взаимодействии совместно распространяющихся терагерцового и оптического импульсов в объеме прозрачных сред, предложен и экспериментально продемонстрирован новый метод обнаружения невидимых (или малоконтрастных) границ, в частности, тонких слоев, заглубленных в толще материалов. Местоположение слоя внутри материала можно найти, измерив временную задержку между сигналами второй гармоники, излучаемыми от входной границы материала и от заглубленного слоя. Измеряя величины этих сигналов, можно получить отношение нелинейных восприимчивостей слоя и объемного материала. Предложенный метод экспериментально реализован для диагностики тонкого (15-35 мкм) слоя оптического клея, помещенного между пластинами плавленого кварца (толщиной 1-3 мм).

- Продемонстрирована возможность абсолютного измерения коэффициента нелинейной восприимчивости третьего порядка $\chi^{(3)}(2\omega; \omega, \omega, 0)$ непрозрачных материалов, путем измерения энергии отраженной второй оптической гармоники, генерируемой при облучении этой поверхности оптическим и терагерцовым импульсами. Показано, что особенностью данного метода является необходимость учета фонового (паразитного) сигнала ВГ, генерируемого в окружающем газе. В воздушной среде этот паразитный сигнал может превышать сигнал от образца, но может быть значительно уменьшен при замещении воздуха гелием. Но даже в этом случае вклад в сигнал ВГ от газа не всегда можно игнорировать, особенно для материалов с низкой нелинейностью, сравнимой с нелинейностью плавленого кварца. Используя серию измерений с калиброванным образцом (плавленый кварц), удалось оценить вклад газа и измерить абсолютные нелинейные восприимчивости $\chi^{(3)}(2\omega; \omega, \omega, 0)$ образцов теллуридных и халькогенидных стекол, а также кремния. Для стекол проведено сравнение этих коэффициентов с соответствующими коэффициентами $\chi^{(3)}(\omega; \omega, -\omega, \omega)$, ответственными за эффект самовоздействия. Показано близкое значение $\chi^{(3)}(2\omega; \omega, \omega, 0)$ и $\chi^{(3)}(\omega; \omega, -\omega, \omega)$. С фундаментальной точки зрения это доказывает общепринятое предположение о применимости симметрии Клеймана для стекол [214]. Также для высокоомного кристаллического кремния продемонстрирована возможность измерения встроенного

(поверхностного) электрического поля. Для этого выполнены измерения сигнала второй гармоники в зависимости от азимутального поворота образца (без терагерцового поля) при разных поляризационных соотношениях первой и второй гармоник, а также от напряженности терагерцового поля. Из полученных данных, при известном значении величины терагерцового поля (из измерений методом электрооптического стробирования), определено встроенное поле в исследуемом образце кремния.

- Экспериментально исследован терагерцовый эффект Керра в различных средах, а именно динамика анизотропии оптического показателя преломления, наведенной субпикосекундными терагерцовыми импульсами в плавленом кварце, полярных (ацетон, хлороформ) и неполярных (бензол, четыреххлористый углерод) жидкостях. Путем измерения деполяризации зондирующего фемтосекундного оптического импульса и аккуратного моделирования распространения терагерцового импульса через исследуемые материалы были получены быстрые и медленные вклады в нелинейный отклик Керра. В плавленом кварце и четыреххлористом углероде (обладающих только электронным нелинейным откликом), а также в неполярном бензоле (с нулевым дипольным моментом, но ненулевой молекулярной анизотропией) полученные константы Керра совпали с известными из литературных источников константами Керра V_{OzK} и V_{DC} , обусловленными воздействием оптического и постоянного полей, соответственно. В полярных жидкостях (ацетон и хлороформ) измеренные константы Керра находятся между V_{OzK} и V_{DC} , что объясняется значительным вкладом постоянного дипольного момента молекул и его инерционностью на субпикосекундном временном масштабе воздействия терагерцового импульса. Сравнение полученных результатов с литературными данными фемтосекундного оптического эффекта Керра показало, что для неполярных жидкостей динамика терагерцового сигнала Керра эквивалента (по соотношению быстрых и медленных движений молекул). Для полярных жидкостей наблюдался возрастающий вклад от медленной ориентационной диффузии, что объясняется ненулевым (в отличие от оптики) крутящим моментом, действующим на постоянный диполь полярной молекулы, и возмущением углового распределения молекулярной ориентации на протяжении длительности терагерцового импульса [111]. Как результат, терагерцовое возбуждение может приводить как к увеличению (ацетон), так и к уменьшению (хлороформ) отклика ориентационной диффузии, что согласуется с данными работы [111].

- При воздействии интенсивного терагерцового импульса на монослой графена, расположенного на подложке полиэтилентерефталата (ПЭТ), измерен спектр оптической люминесценции в диапазоне от 400 до 1000 нм при напряженности терагерцового поля 250 кВ/см, а также зависимость энергии люминесценции от напряженности терагерцового поля. Показано, что спектр люминесценции хорошо описывается формулой теплового излучения (формулой Планка) с температурой около 2500 К. Зависимость энергии люминесценции (во всем измеряемом диапазоне 400-1000 нм) от напряженности терагерцового поля имеет сильно-степенную зависимость (с показателем степени около 6). Полученные результаты согласуются с предыдущими измерениями пионерской работы [117], где аналогичные результаты были получены для монослоя графена на стеклянной подложке и в более узком частотном диапазоне детектирования люминесценции (350-600 нм). Показано, что эффект наведенной оптической люминесценции может быть использован для визуализации пучка довольно интенсивного (>100 кВ/см) терагерцового излучения с помощью коммерческой CCD камеры с кремниевой матрицей. Проведено сравнение данного метода визуализации с традиционным методом двумерного электрооптического стробирования. Продемонстрировано локальное усиление люминесценции за счет усиления терагерцового поля вблизи кончика металлической иглы с радиусом кривизны около 2 мкм. Данный эффект может быть использован для картирования ближнего поля терагерцового излучения, формируемого в микроструктурах.

Глава 5. Диагностика электронной плотности в плазменном филаменте по рассеянию терагерцовых импульсов

Плазменный филамент – протяженный плазменный канал, формируемый в среде при распространении достаточного мощного лазерного излучения как результат динамического баланса между керровской самофокусировкой и дефокусировкой на фотогенерируемых носителях. Электронная плотность в филаменте, формируемом в воздухе, достигает в момент его создания $10^{15} \text{ см}^{-3} - 10^{17} \text{ см}^{-3}$, что близко к критической концентрации плазмы, соответствующей терагерцовому частотному диапазону (0.3-3 ТГц), а поперечный размер филамента ($\sim 100 \text{ мкм}$) сравним с длиной терагерцовой волны ($\sim 300 \text{ мкм}$) [73]. Таким образом, терагерцовое излучение может испытывать существенное рассеяние на таком плазменном канале, при этом эффективность рассеяния должна зависеть от концентрации плазмы.

Следуя этому предположению, в диссертации предлагается диагностировать электронную плотность в филаменте путем измерения коэффициента рассеяния (по энергии) терагерцового импульса на данном филаменте. Варьируя время задержки между лазерным импульсом, создающим филамент, и зондирующим терагерцовым импульсом, реализуется возможность измерения динамики распада плазменного канала.

Основные результаты главы опубликованы в работах [A8, A11, A14].

5.1. Описание метода

Для расчета рассеяния терагерцового импульса на филаменте воспользуемся следующей моделью. Пусть электромагнитный импульс (терагерцового диапазона частот) распространяется вдоль оси x и падает перпендикулярно на бесконечно длинный (вдоль оси z) плазменный канал с радиально-симметричным распределением электронной плотности $n_e(r)$ (см. Рисунок 5.1). Электромагнитный импульс поляризован вдоль оси z и имеет спектральное распределение интенсивности $I(\omega)$ (с соответствующим распределением амплитуды электрического поля $E_0(\omega)$), а также гауссово поперечное распределение $\sim \exp(-r^2/\ell^2(\omega))$. Поперечный размер $\ell(\omega)$ каждой спектральной компоненты ω в импульсе будем полагать существенно большим соответствующей длины волны, поэтому воспользуемся аппроксимацией плоской электромагнитной волны. В этом приближении падающее электрическое поле в фурье-пространстве $E_z^i(\omega, r, \varphi)$ можно записать в виде разложения в ряд по функциям Бесселя [215]

$$E_z^i(\omega, r, \varphi) = E_0(\omega) \sum_{l=-\infty}^{\infty} (-i)^l J_l(k_0 r) e^{il\varphi}, \quad (5.1)$$

где J_l – функция Бесселя первого рода, φ – азимутальный угол в плоскости (x, y) отсчитываемый от оси x , $k_0 = \omega/c$, а c – скорость света в вакууме.

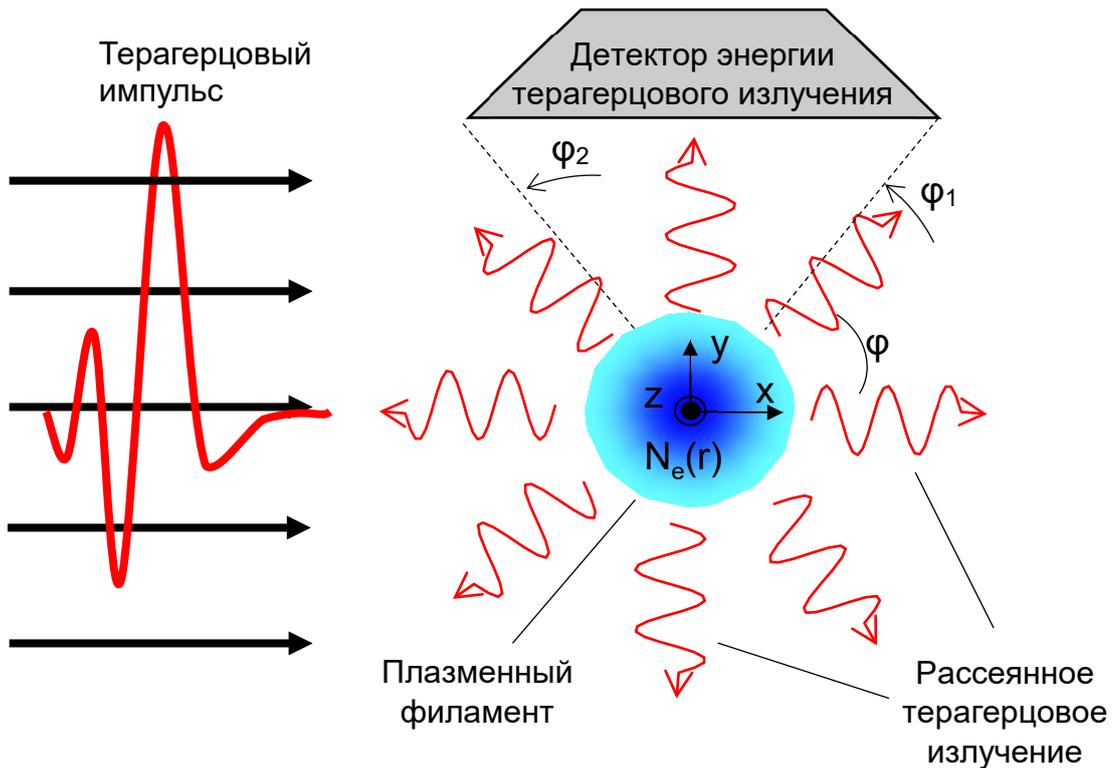


Рисунок 5.1. Геометрия задачи: терагерцовый импульс с большим поперечным размером падает на плазменный цилиндр с распределением плотности плазмы $n_e(r)$ и рассеивается под произвольный углом φ . Энергия рассеянного терагерцового излучения измеряется в диапазоне углов от φ_1 до φ_2 .

Фурье-компонента рассеянного поля записывается аналогичным образом:

$$E_z^s(\omega, r, \varphi) = \sum_{l=-\infty}^{\infty} a_l^s H_l^{(2)}(k_0 r) e^{il\varphi}, \quad (5.2)$$

где $H_l^{(2)}$ – функция Ханкеля второго рода, а a_l^s – неизвестные коэффициенты. Для проведения численного расчета плавное радиальное распределение плотности плазмы $n_e(r)$ в канале будем аппроксимировать ступенчатой функцией с конечным числом ступеней M . В каждом m -м слое плотность плазмы n_{em} считается постоянной в области

$r_m < r < r_{m+1}$, так что электрическое поле в каждом цилиндрическом слое записывается как

$$E_z^m(\omega, r, \varphi) = \sum_{l=-\infty}^{\infty} (a_l^m J_l(k_m r) + c_l^m N_l(k_m r)) e^{il\varphi}, \quad (5.3)$$

где N_l – функция Бесселя второго рода, $k_m = \sqrt{\varepsilon_m} \omega / c$ – волновое число, $\varepsilon_m = 1 - \omega_{pm}^2 / (\omega^2 - i\omega\nu)$ – диэлектрическая проницаемость m -го слоя, ν – частота столкновений электронов (предполагается не зависимой от номера слоя), $\omega_{pm} = \sqrt{4\pi n_{em} e^2 / \mu}$, e и μ – заряд и масса электрона, соответственно. Магнитное поле в вакууме и в плазменном канале можно записать аналогичным образом. В результате сшивания граничных условий на каждой границе m -го слоя, можно получить систему алгебраических уравнений, из которых находятся коэффициенты a_l^s , a_l^m и c_l^m .

Коэффициент рассеяния терагерцового излучения в диапазоне углов от φ_1 до φ_2 в плоскости (x, y) (см. Рисунок 5.1) определяется как $\eta = W_s / W_0$, где $W_0 = \pi \int_0^\infty d\omega I(\omega) \ell(\omega)^2$ – энергия падающего терагерцового импульса, а W_s – энергия рассеянного импульса, которая вычисляется через интеграл от вектора Пойнтинга:

$$W_s = \frac{2}{\pi} \int_0^\infty d\omega \frac{c}{\omega} \ell(\omega) \int_{\varphi_1}^{\varphi_2} d\varphi \left| a_0^s + \sum_{l=1}^{\infty} 2 \frac{a_l^s}{i^l} \cos(l\varphi) \right|^2. \quad (5.4)$$

На Рисунке 5.2 показана зависимость η от плотности плазмы в центре канала n_{e0} при различных радиусах плазменного канала r_0 (с гипер-гауссовым распределением $n_e = n_{e0} \exp[-(r/r_0)^{12}]$) и частотах столкновений электронов ν . В расчетах, для определенности, взято $\ell(\omega) = 1,8$ мм (одинаково для всех частотных компонент), $\varphi_1 = 80^\circ$ и $\varphi_2 = 100^\circ$, а частотный спектр $I(\omega)$ аппроксимирует экспериментальный спектр с максимумом около 0,9 ТГц и шириной до 2 ТГц (см. далее измеренный спектр поля во вставке на Рисунке 5.3). Как видно из Рисунка 5.2, при увеличении плотности плазмы наблюдается насыщение коэффициента рассеяния при некоторой пороговой плотности плазмы n_{th} , которая зависит от диаметра плазменного канала. Для больших диаметров (> 300 мкм) n_{th} близка к критической концентрации $n_{cr} = 10^{16}$ см⁻³ для центральной частоты терагерцового импульса 0,9 ТГц. Согласие между n_{th} и n_{cr} достаточно хорошее для диаметра плазменного канала 130 мкм (кривые 2, 3 и 4). Для меньших диаметров n_{th} смещается в большую сторону, и тенденция η к насыщению становится более плавной

(кривая 5). Это объясняется тем, что при малых диаметрах канала (<100 мкм) начинает играть значительную роль конечный масштаб спада поля. Значения насыщения коэффициента рассеяния на филаменте с большой концентрацией ($n_{e0} \gg n_{th}$) хорошо согласуются с коэффициентом рассеяния на металлической проволоке соответствующего радиуса $r_m = r_0$ (кривые 1', 2' и 5'). В расчетах металлическая проволока аппроксимировалась плазменным цилиндром с большой (по модулю) диэлектрической проницаемостью.

Для $n_{e0} \ll n_{th}$ коэффициент рассеяния $\eta \sim n_{e0}^2$, что согласуется с аналитической теорией для случая рассеяния излучения на цилиндре с диэлектрическими постоянными, близкой к единице [215]. Столкновения электронов в плазме приводят к уменьшению коэффициента рассеяния. Однако этот эффект заметен только в том случае, если частота столкновений ν значительно превышает центральную частоту зондирующего терагерцового импульса. Например, коэффициенты рассеяния получаются в 1.3 и 2.5 раза меньше при $\nu = 2 \times 10^{12}$ Гц и $\nu = 5 \times 10^{12}$ Гц, соответственно, чем в безстолкновительном случае (см. кривые 3, 4 и 2 на Рисунке 5.2).

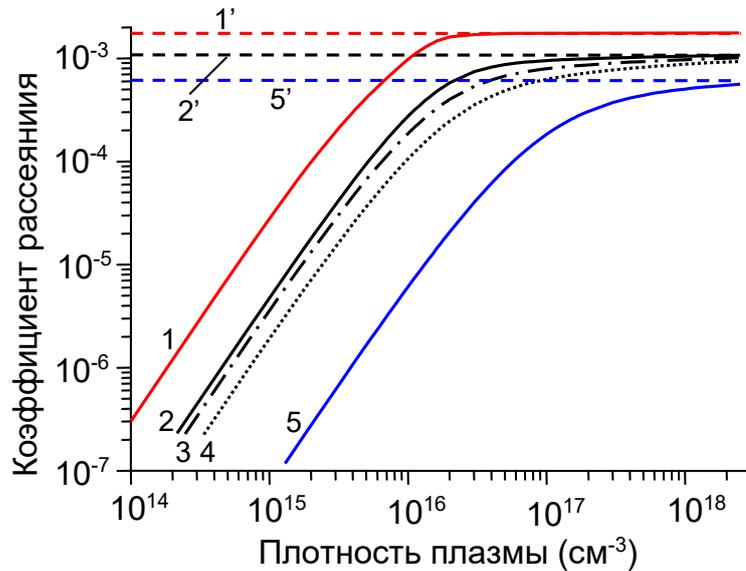


Рисунок 5.2. Коэффициент рассеяния терагерцового излучения η на плазменном цилиндре с распределением плотности плазмы $n_e = n_{e0} \exp[-(r/r_0)^{12}]$ в зависимости от n_{e0} для безстолкновительной плазмы ($\nu = 0$) при $r_0 = 150$ мкм (кривая 1), 65 мкм (кривая 2) и 20 мкм (кривая 5) и плазмы с $\nu = 2 \times 10^{12}$ Гц (кривая 3) и $\nu = 5 \times 10^{12}$ Гц (кривая 4) при $r_0 = 65$ мкм. Пунктирные горизонтальные прямые показывают коэффициент рассеяния от металлического цилиндра с радиусами $r_m = 150$ мкм (кривая 1'), 65 мкм (кривая 2') и 20 мкм (кривая 5').

Насыщение коэффициента рассеяния, показанное на Рисунке 5.2, ограничивает диапазон плотностей плазмы, который можно измерить методом терагерцового рассеяния, значением ниже n_{th} . Для диаметра плазменного канала около 130 мкм, соответствующему экспериментальным измерениям (см. далее), теоретический расчет дает $n_{th} \sim 2 \times 10^{16} \text{ см}^{-3}$.

На коэффициент рассеяния терагерцового излучения наиболее сильно влияет концентрация плазмы и радиус канала. Частота столкновений (при ν меньше или порядка частоты зондирующего терагерцового излучения) и форма поперечного распределения $n_e(r)$, также оказывают влияние, но в меньшей степени. Поэтому для оценки концентрации плазмы методом терагерцового рассеяния необходимо иметь некоторую априорную информацию. Радиус филаменты приблизительно можно определить по ее светящейся области с помощью, например, CCD камеры или другими способами, например, используя данные интерферометрических измерений. Именно последний способ был использован для калибровки метода терагерцового рассеяния в ходе последующих экспериментальных исследований динамики распада плазмы. Для этого при концентрации сравнимой или меньшей n_{th} измерялся сигнал рассеяния от филаменты и методом интерферометрии измерялось «начальное» распределение концентрации плазмы в канале. Данные значения сопоставлялись с «начальным» рассчитанным (с помощью выражения (5.4)) коэффициентом рассеяния. На больших временах, когда концентрация уменьшалась (и метод интерферометрии уже не позволял выделить плазменный канал), из значений энергии рассеянного терагерцового сигнала в начальный и последующие моменты времени, путем решения обратной задачи рассеяния (итерационным методом), определялась плотность плазмы. В зависимости от условий эксперимента радиус и форма распределения плотности плазмы, а также частота столкновений считались постоянными или изменялись в рамках наперед заданной модели (см. далее).

Стоит заметить, что измерение динамики плотности плазмы методом терагерцового рассеяния, можно в некоторой ситуации проводить и без привлечения других методов. Действительно, если известно, что начальная концентрация плазмы (сразу после ионизации) заведомо больше n_{th} (случай сверх-критической плазмы), то коэффициент рассеяния определяется только радиусом канала. Измеряя абсолютное значение коэффициента рассеяния в начальный момент времени можно определить

радиус канала. На практике более удобно (и точнее) сравнить начальную (сразу после создания филамента) рассеянную терагерцовую энергию с энергией, рассеянной на металлическом цилиндре известного диаметра (эквивалентный каналу со сверхкритической плазмой). Из данного сравнения можно определить радиус канала. Дальнейшее определение плотности плазмы в филаменте аналогично описанной выше процедуре (при этом абсолютное значение плотности плазмы можно определить по величине n_{th} , при которой начинает уменьшаться энергия рассеянного излучения).

5.2. Экспериментальная демонстрация в воздухе при нормальных условиях

На основе предложенного метода диагностики была проведена серия экспериментов по измерению распада плазмы в филаменте, созданном в воздушной среде при различных условиях. Схема эксперимента показана на Рисунке 5.3. Для создания и характеристики плазменного филамента использовалась титан-сапфировая фемтосекундная лазерная система (795 нм, 60 фс, 10 Гц, 10 мДж) с диаметром пучка (по уровню половины интенсивности) около 6 мм. Лазерный импульс фокусировался в атмосферном воздухе сферическим зеркалом (СЗ) с фокусным расстоянием 125 см. Плазменный филамент формировался вблизи фокальной перетяжки. Наблюдаемая длина плазменного канала составляла 3-10 см в зависимости от энергии лазерного импульса (см. фотографию светящейся области филамента на Рисунке 5.3). Часть лазерного излучения (около 1/4 энергии) отводилась до фокусировки и использовалась в качестве зондирующего излучения в методе поперечной оптической интерферометрии (1-я схема на Рисунке 5.3) и генерации терагерцового излучения в методе рассеяния терагерцовых импульсов (2-я схема на Рисунке 5.3). В методе поперечной оптической интерферометрии зондирующий импульс после прохождения линии задержки пересекал плазменный филамент перпендикулярно. Затем он разделялся на два импульса в интерферометре Майкельсона и формировал интерференционное изображение на матрице ССД камеры, установленной в одном из плеч интерферометра. Для улучшения пространственного разрешения перед интерферометром использовалась 7-кратная телескопическая система.

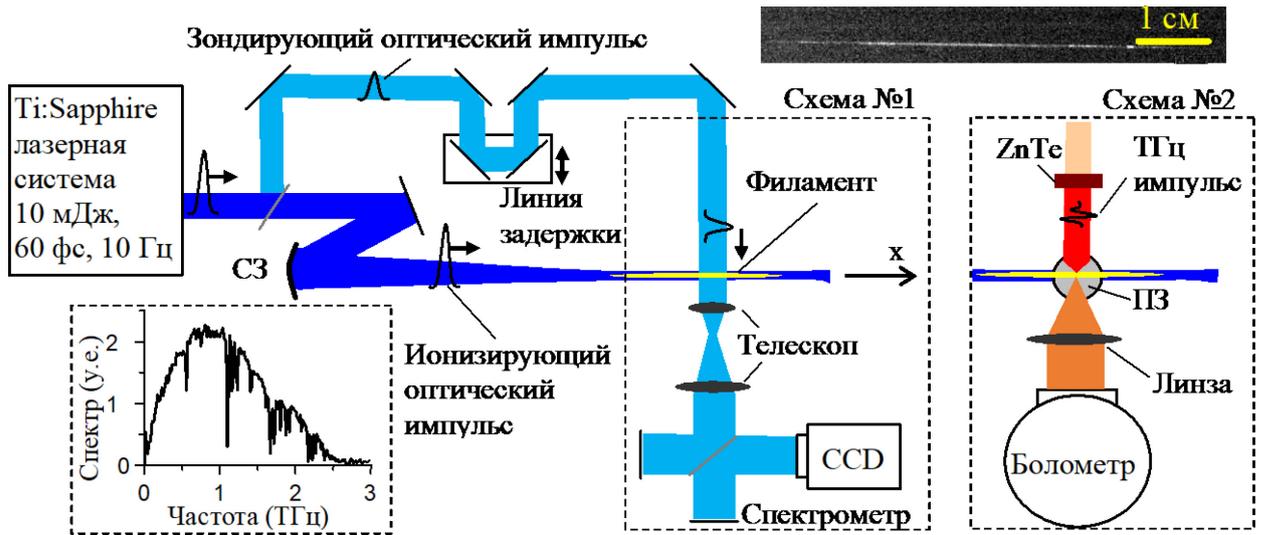


Рисунок 5.3. Экспериментальная установка для измерения динамики плотности плазмы в филаменте. В схемах №1 и №2 используются методы оптической интерферометрии и рассеяния терагерцового импульса, соответственно. Во вставке внизу слева показан спектр терагерцового поля, генерируемого в кристалле ZnTe (схема №2). СЗ – сферическое зеркало, ПЗ – внеосевое параболическое зеркало. Во вставке сверху справа показана фотография светящейся области филамента.

На Рисунке 5.4(а) показана динамика поперечного профиля плазменного канала на первых 200 пс, измеренная методом поперечной интерферометрии. (Для получения данного профиля, из интерференционных картин методом Фурье преобразования выделялась двумерная картина фазового сдвига, обусловленная плазмой, затем этот фазовый сдвиг усреднялся вдоль филамента на длине около 1 мм и, после последующей симметризации, к полученному профилю применялось обратное преобразование Абеля). Из Рисунка 5.4(а) видно, что сразу после создания филамента поперечное распределение имеет гипер-гауссовый профиль с максимальным значением около $0,9 \times 10^{17} \text{ см}^{-3}$. За время 200 пс максимальная плотность уменьшается до $\sim 0,25 \times 10^{17} \text{ см}^{-3}$, при этом на периферии канала плотность плазмы спадает медленнее. Радиус канала почти не изменяется. Действительно, скорость расширения плазменного канала за счет амбиполярной диффузии примерно равняется скорости ионного звука [216]

$$c_s = \left(\frac{Z\gamma_e k T_e + \gamma_i k T_i}{m_i} \right)^{1/2}, \quad (5.5)$$

где $Z = 1$ - относительный заряд иона, k - постоянная Больцмана, T_e и T_i - температуры электронов и ионов соответственно, m_i - масса иона, γ_e и γ_i - показатели адиабаты электронного и ионного газов соответственно. Можно принять $\gamma_i = 7/5$, так как большинство ионов являются двухатомными, и $\gamma_e = 1$, поскольку электроны в ионно-звуковых волнах являются изотермическими [216]. Температура ионов T_i при нормальных условиях примерно равна температуре газа из-за малой степени ионизации. При атмосферном давлении расчеты предсказывают температуру электронов T_e в диапазоне 0,1-0,3 эВ на наносекундном временном масштабе (см. обсуждение далее), в то время как ионы остаются при комнатной температуре ($T_i \sim 0,03$ эВ). Тогда из выражения (5.5) получаем $C_s \sim 1$ мкм/нс. Таким образом, радиальным расширением можно пренебречь в течение первых десяти наносекунд, если начальный радиус плазменного канала составляет около 60 мкм (см. Рисунок 5.4(a)).

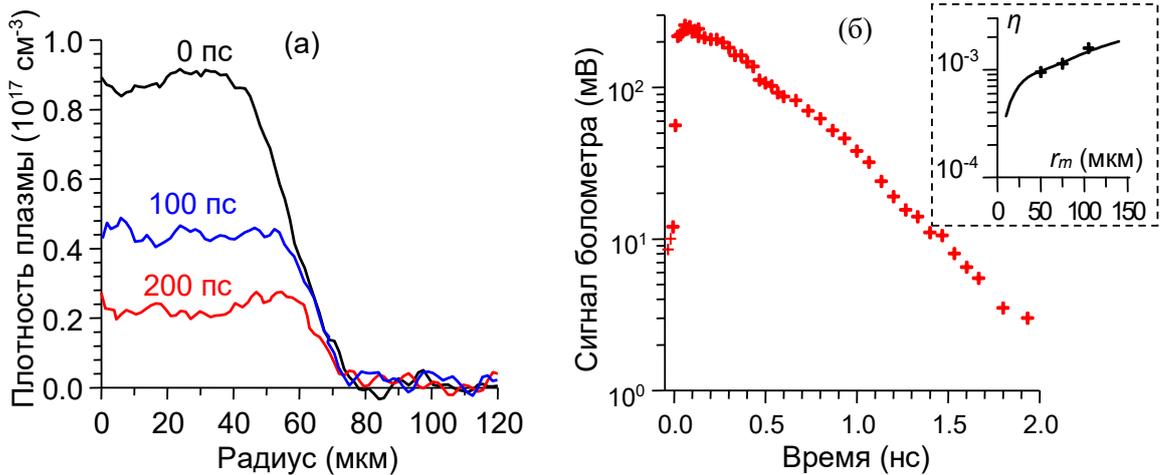


Рисунок 5.4. (а) Поперечное распределение плотности плазмы, полученное методом интерферометрии при энергии ионизирующего оптического импульса 5,4 мДж. (б) Сигнал болометра в зависимости от времени задержки. Во вставке показан коэффициент рассеяния от металлического цилиндра в зависимости от его радиуса r_m (сплошная линия). Крестики соответствуют нормированным экспериментальным данным.

Метод интерферометрии позволил определить распад плазмы на временах до 300 пс. На больших временах концентрация плазмы уже была порядка 10^{16} cm^{-3} , что давало фазовый набег менее 0,003 рад – на пределе чувствительности интерференционных

измерений. И уже на таких временах был использован метод терагерцового рассеяния. Для реализации данного метода зондирующий лазерный импульс (прошедший линию задержки) генерировал терагерцовый импульс в кристалле ZnTe толщиной 1 мм. Длительность импульса составляла ~ 1 пс с максимумом спектра около 0.9 ТГц (см. вставку на Рисунке 5.3). Терагерцовый импульс фокусировался на плазменный филамент с помощью параболического зеркала ПЗ (фокусное расстояние $F = 5$ см) в направлении перпендикулярном плоскости Рисунка 5.4(а). Поляризация терагерцового поля была ориентирована вдоль оси филамента. Рассеянное на плазме излучение (под углом 90° , в плоскости рисунка) собиралось тефлоновой линзой ($F = 4$ см, $D = 4$ см) и регистрировалось болометром, охлаждаемым жидким гелием (QMS Instruments, модель QFI/4).

На Рисунке 5.4(б) показан сигнал болометра в зависимости от времени задержки между оптическим импульсом, формирующим филаменту, и зондирующим терагерцовым импульсом. После резкого роста сигнала болометра (за время ~ 10 пс, соответствующего времени прохождения ионизирующего лазерного импульса через терагерцовый пучок), в течение последующих 200 пс сигнал болометра практически не изменяется, в то время как плотность плазмы, согласно интерферометрическим измерениям, уменьшается в 4-5 раз. Этот эффект объясняется насыщением регистрируемой энергии рассеянного терагерцового излучения из-за сверхкритической плотности плазмы. Действительно, болометр имеет максимальную частоту детектирования 1.5 ТГц, что соответствует критической плотности плазмы $\sim 3 \times 10^{16}$ см⁻³. Следовательно, сигнал болометра не должен существенно изменяться при варьировании плотности плазмы более 3×10^{16} см⁻³. Такая пограничная плотность, согласно интерферометрическим измерениям, достигается при $t = 200$ пс. А значит, заметное уменьшение сигнала болометра должно наблюдаться при $t > 200$ пс, что и было зафиксировано в эксперименте (см. Рисунок 5.4(б)). Максимальное время измерения распада электронной плотности составило ~ 2 нс из-за ограниченной чувствительности болометра.

В ходе эксперимента также был протестирован описанный в п. 5.1 способ калибровки метода терагерцового рассеяния с применением металлического цилиндра. В качестве такого цилиндра была использована металлическая проволока, помещенная в терагерцовый пучок вместо филамента. Нормированный коэффициент рассеяния,

измеренный для проволоки с тремя радиуса r_m показан крестиками на вставке на Рисунке 5.4(б). Нормировка проведена по одной точке ($r_m = 50$ мкм), совмещенной с теоретической кривой, которая также показана на вставке. Видно, что остальные две экспериментальные точки ($r_m = 75$ и 105 мкм) хорошо ложатся на теоретическую кривую. Учитывая, что насыщенный рассеянный сигнал от филамента равен рассеянному сигналу от проволоки соответствующего радиуса, был определен радиус филамента $\sim 75 - 80$ мкм. Это значение лишь немного больше, чем радиус, полученный из интерферометрических измерений (~ 65 мкм).

Из данных, приведенных на Рисунке 5.4(б), был проведен расчет плотности плазмы описанной в п. 5.1 процедурой решения обратной задачи рассеяния. Для калибровки использовались данные интерферометрических измерений при $t = 200$ пс на Рисунке 5.4(а). Плотность плазмы в данный момент времени считалась равной $n_{e0} = 2,5 \cdot 10^{16}$ см⁻³, профиль канала $n_e(r) \sim \exp[-(r/r_0)^{12}]$ с $r_0 = 65$ мкм считался неизменным. Частота столкновений электронов вычислялась в каждый момент времени с помощью численного кода [217] в согласовании с численным расчетом динамики электронной плотности и температуры электронов (см. далее). Как оказалось, частота столкновений существенна (превышает 10^{12} Гц) только в первые несколько сотен пикосекунд, а на больших временах ее влияние почти не сказывается на расчет концентрации плазмы из экспериментальных данных.

Результат двух методов измерений динамики плотности плазмы показан на Рисунке 5.5. Видно хорошее согласование методов в области их перекрытия по времени задержки (100-300 фс). На временах более 300 фс, метод терагерцового рассеяния дает уменьшение до 10^{15} см⁻³ за время 2 нс. Таким образом, за время 2 нс плотность плазмы спадает от $0,9 \times 10^{17}$ см⁻³ на два порядка.

Для теоретического описания распада плазмы и согласования с экспериментальными измерениями был проведен детальный анализ многочисленных плазмохимических реакций, возможных в атмосферном воздухе [218]. Среди множества возможных реакций только несколько процессов вносят значительный вклад в уменьшение плотности плазмы после образования филамента (в течение первых нескольких наносекунд). Реакции, включенные в расчет, перечислены в Таблице 5.1.

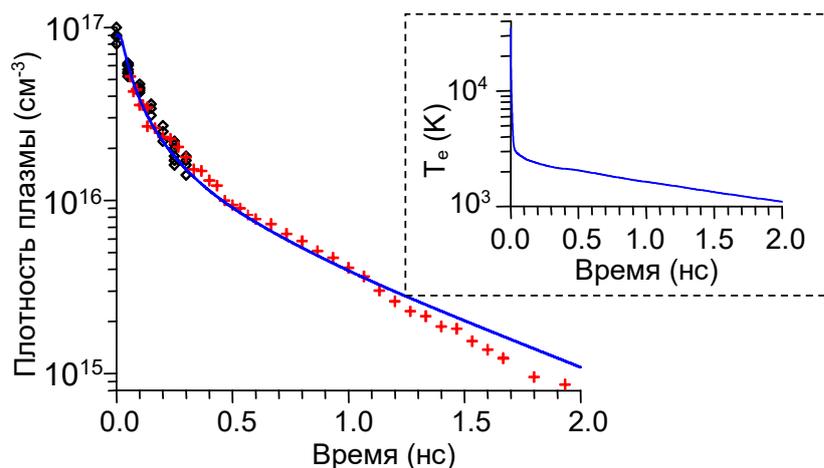


Рисунок 5.5. Динамика плотность плазмы n_{e0} в центре филамента. Крестики и ромбы соответствуют экспериментальным данным, полученным методами терагерцового рассеяния и оптической интерференции, соответственно. Сплошная кривая показывает теоретические расчеты. Во вставке представлена зависимость температуры электронов T_e от времени.

Под действием фемтосекундного лазерного импульса в воздухе образуются в основном ионы O_2^+ , поскольку кислород обладает более низкой энергией ионизации (12.2 эВ) по сравнению с азотом (14.5 эВ). Комплексные ионы (O_4^+ и $N_2O_2^+$) могут формироваться в результате ион-молекулярных реакций (реакции 6-10) только во время распада плазмы (перед рекомбинацией с электронами). В атмосферном воздухе молярная доля молекул H_2O может составлять около 1 %, поэтому было учтено образование ионов $H_2O \cdot O_2^+$ (реакция 11). В результате были учтены пять каналов рекомбинации электронов: диссоциативная и трехчастичная рекомбинация электронов с ионами O_2^+ (реакции 1 и 2, соответственно), а также диссоциативная рекомбинация электронов с комплексными ионами $N_2O_2^+$, O_4^+ и $H_2O \cdot O_2^+$ (реакции 3, 4 и 5). Заметим, что коэффициент скорости реакции 2 малоизвестен для концентрации плазмы 10^{15} - 10^{17} cm^{-3} , и в данном расчете он был принят $0.6 \cdot 10^{-19} \cdot (300/T_e)^{9/2}$ cm^6/c [219] и затем уточнен в последующих исследованиях (см. далее). Реакция присоединения электронов к молекулам O_2 не учитывалась в расчетах, поскольку она играет незначительную роль на временном масштабе несколько наносекунд (характерное время присоединения составляет около 10 нс [218]).

Таблица 5.1. Реакции и соответствующие коэффициенты скорости реакций, используемые для расчета динамики плотности плазмы в филаменте.

No	Реакции	Коэффициенты скорости реакций
1	$e^- + O_2^+ \rightarrow O + O$	$1.95 \cdot 10^{-7} \cdot (300/T_e)^{0.7} \text{ м}^3/\text{с}$ [220]
2	$e^- + e^- + O_2^+ \rightarrow O_2 + e^-$	$A \cdot 10^{-19} \cdot (300/T_e)^{9/2} \text{ см}^6/\text{с}$ ($A = 0.6$ [219] и $A = 2$ после уточнения, см. текст)
3	$e^- + N_2O_2^+ \rightarrow N_2 + O_2$	$1.3 \cdot 10^{-6} \cdot (300/T_e)^{1/2} \text{ см}^3/\text{с}$ [218]
4	$e^- + O_4^+ \rightarrow O_2 + O_2$	$4.2 \cdot 10^{-6} \cdot (300/T_e)^{1/2} \text{ см}^3/\text{с}$ [220]
5	$e^- + H_2O \cdot O_2^+ \rightarrow O_2 + H_2O$	$2 \cdot 10^{-6} \cdot (300/T_e)^{1/2} \text{ см}^3/\text{с}$ [221]
6	$O_2^+ + 2N_2 \rightarrow N_2O_2^+ + O_2$	$0.9 \cdot 10^{-30} \cdot (300/T)^2 \text{ см}^6/\text{с}$ [218]
7	$N_2O_2^+ + N_2 \rightarrow 2N_2 + O_2^+$	$1.1 \cdot 10^{-6} \cdot (300/T)^{5.3} e^{-2357/T} \text{ см}^3/\text{с}$ [218]
8	$O_2^+ + 2O_2 \rightarrow O_4^+ + O_2$	$2.4 \cdot 10^{-30} \cdot (300/T)^{3.2} \text{ см}^6/\text{с}$ [218]
9	$O_4^+ + O_2 \rightarrow O_2^+ + 2O_2$	$3.3 \cdot 10^{-6} \cdot (300/T)^4 e^{-5030/T} \text{ см}^3/\text{с}$ [218]
10	$N_2O_2^+ + O_2 \rightarrow O_4^+ + N_2$	$10^{-9} \text{ см}^3/\text{с}$ [218]
11	$H_2O + O_2^+ + M \rightarrow H_2O \cdot O_2^+ + M$ $M = O_2, N_2$	$0.6 \cdot 10^{-28} \text{ см}^6/\text{с}$ [221]

Для численного моделирования распада плазменного филамента был проведен расчет системы балансных уравнений для заряженных и нейтральных частиц

$$\frac{dn_e}{dt} = -k_3(T_e)n_e^2n_{p,O_2} - n_e \sum_j k_{2j}(T_e)n_{p,j}, \quad (5.6)$$

$$\frac{dn_{pj}}{dt} = Q_{pj} - R_{pj}, \quad \frac{dN_j}{dt} = Q_j - R_j. \quad (5.7)$$

Здесь n_{pj} – плотность положительных ионов j -го вида (в частности, n_{p,O_2} – плотность ионов O_2^+), N_j – плотность нейтральных частиц j -го вида, k_3 – константа скорости трёхчастичной рекомбинации ионов O_2^+ (реакция 2), k_{2j} – константы скорости двухчастичной диссоциативной рекомбинации ионов j -го вида (реакции 1, 3-5), а Q_{pj} (Q_j) и R_{pj} (R_j) – члены, описывающие образование и потерю ионов (нейтральных частиц), соответственно (реакции 6-11). В расчетах предполагается, что плазма является

однородной. Начальная плотность электронов и ионов кислорода была взята из экспериментальных измерений методом интерферометрии ($0.9 \times 10^{17} \text{ см}^{-3}$).

Согласно Таблице 5.1, коэффициенты скоростей реакций сильно зависят от температуры электронов T_e . Поэтому при решении уравнений (5.6), (5.7) одновременно решалось балансное уравнение для температуры электронов [221]

$$\frac{3}{2} \frac{dT_e}{dt} = -\frac{3}{2} (T_e - T) \nu_\varepsilon(T_e) + I_{O_2} k_3 n_e n_{p,O_2} - T_e^2 \frac{dk_3}{dT_e} n_e n_{p,O_2} - T_e^2 \sum_j \frac{dk_{2j}}{dT_e} n_{p,j}, \quad (5.8)$$

где T – температура газа (которую при малой степени ионизации можно считать постоянной), $\nu_\varepsilon(T_e)$ – частота релаксации энергии электронов при столкновениях с молекулами и ионами, которая рассчитывалась с помощью численного кода [217], и I_{O_2} – энергия ионизации молекул O_2 . Первое слагаемое в правой части уравнения (5.8) описывает потери электронов при упругих столкновениях с молекулами. Второй слагаемое обусловлено тем, что энергия, выделяющаяся в реакции (3), расходуется на нагрев свободных электронов (пренебрегая излучением и диссоциацией молекул). Наличие третьего и четвертого членов в правой части уравнения (5.8) объясняется тем, что вероятность рекомбинации увеличивается с уменьшением энергии электронов. В результате, преимущественная потеря низкоэнергетических электронов приводит к увеличению температуры электронов. Последние три члена в правой части уравнения (5.8) описывают эффект так называемого "рекомбинационного нагрева", который становится важным, когда потеря электронов определяется в основном электрон-ионной рекомбинацией. При решении (5.8) можно принять начальную температуру электронов равной 3 эВ, что соответствует колебательной энергии электронов в лазерном импульсе накачки. Стоит заметить, что результаты расчетов практически не зависят от этой начальной величины. Действительно, электроны с высокой энергией быстро теряют свою энергию при неупругих столкновениях с возбуждением электронных состояний молекул N_2 и с диссоциацией молекул O_2 (см. вставку на Рисунке 5.5)). Однако, когда энергия электронов падает ниже энергетических порогов этих процессов (около 0.3 эВ), частота ν_ε резко уменьшается. Причина в том, что такие электроны теряют свою энергию только в упругих столкновениях и в неупругих столкновениях с колебательным и вращательным возбуждением молекул.

Рассчитанная на основе уравнений (5.6)-(5.8) динамика плотности электронов приведена сплошной кривой на Рисунке 5.5. Наблюдается хорошее согласие между

экспериментальными результатами и расчетом. Из анализа концентрации ионов (не показано на графике) следует, что на временах < 1 нс реакции диссоциативной и трехчастичной рекомбинации с ионом O_2^+ (реакции 1 и 2) играют основную роль в уменьшении плотности плазмы. На больших временных масштабах доминирует рекомбинация с комплексными ионами (реакции 3, 4 и 5). Тем не менее, все пять каналов потерь электронов важны для обеспечения качественного согласия с экспериментальными данными.

5.3. Влияние внешнего поля и пониженного давления на распад плазмы в филаменте

Быстрый распад плазмы, наблюдаемый на Рисунке 5.5, накладывает существенные ограничения на применение филаментов, такие как защита от молний, дистанционное зондирование атмосферы и др. Для поддержания высокой концентрации плазмы в ряде работ было предложено использовать дополнительный мощный наносекундный лазер [222] или последовательность фемтосекундных лазерных импульсов [223]. Еще один способ замедлить распад плазмы заключается в наложении внешнего электрического поля вдоль филамента. В этом случае за счет протекания тока возможен дополнительный разогрев плазмы, что способствует замедлению рекомбинации электронов с ионами. Так, в работе [223] было продемонстрировано, что при электрическом поле ~ 3.5 кВ/см созданном двумя точечными электродами, расположенными рядом с плазменным филаментом, время жизни увеличивается с ~ 20 нс до ~ 60 нс. Однако важно отметить, что эти результаты были получены на больших временных масштабах, когда плотность плазмы была довольно малой, ниже 10^{15} см⁻³ (измерения проводились методом проводимости), что представляет ограниченный интерес для вышеупомянутых приложений.

Для исследования влияния внешнего электрического поля на распад плазмы в течении первых нескольких наносекундах были проведены экспериментальные измерения методом терагерцового рассеяния. Для создания постоянного электрического поля были использованы два круглых плоских электрода (диаметром 25 см) с отверстиями (диаметром 2 мм) в центре для прохождения лазерного излучения. Электроды располагались на расстоянии 5 см друг от друга. Таким образом, филамент (длинной около 7 см) полностью перекрывал промежуток между электродами. Высокое напряжение прикладывалось между электродами для создания внешнего электрического

поля E_{DC} в области плазменного филамента. Из-за разряда в воздухе, стимулированного филаментом, максимальная напряженность электрического поля была ограничена величиной 7-8 кВ/см. Остальная часть экспериментальной схемы была аналогична Рисунку 5.3.

В ходе эксперимента было обнаружено, что филаментация лазерного импульса во внешнем электрическом поле сопровождалась генерацией терагерцового излучения, сравнимого по энергии с рассеянным зондирующим терагерцовым излучением. Энергия этого генерируемого излучения имело примерно квадратичную зависимость от приложенного электрического поля E_{DC} (см. Рисунок 5.6(a)), что согласуется с более ранними публикациями [224].

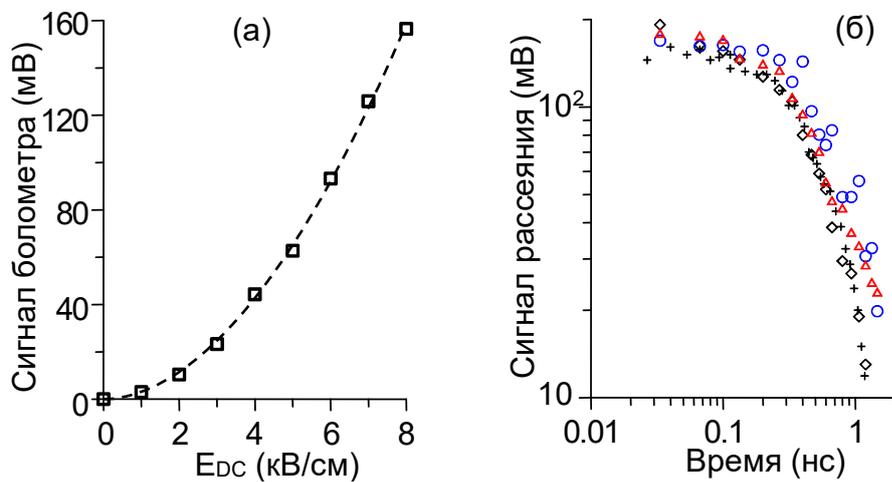


Рисунок 5.6. (а) Сигнал болометра в зависимости от внешнего электрического поля E_{DC} в отсутствие зондирующих терагерцовых импульсов (квадраты). Аппроксимирующая кривая $E_{DC}^{1.9}$ показана пунктирной линией. (б) Сигнал рассеяния (см. текст) в зависимости от времени задержки для $E_{DC} = 0$ кВ/см (ромбы), $E_{DC} = 3$ кВ/см (треугольники) и $E_{DC} = 7$ кВ/см (кружочки). Крестиками показан сигнал из Рисунка 5.4(б), нормированный на текущие данные.

Терагерцовое излучение, генерируемое в филаменте и рассеянное зондирующее, детектировались болометром одновременно. Для нахождения сигнала болометра от рассеянного излучения (сигнал рассеяния) проводились два измерения: с зондирующим терагерцовым импульсом и без него. Разница двух сигналов давала искомый сигнал рассеяния, который показан на Рисунке 5.6(б) в зависимости от времени задержки для различных значений приложенного электрического поля E_{DC} . Предыдущие результаты,

полученные на Рисунке 5.4(б), хорошо согласуются с текущими данными (см. крестики и ромбы для $E_{DC} = 0$). Это говорит о том, что электроды не влияют на формирование филамента. В течение первых 200 – 400 пс распада плазмы сигнал существенно не изменяется, а затем уменьшается более чем на порядок за время ~ 1 нс. Приложение внешнего электрического поля приводит к замедлению спада сигнала. Большие флуктуации сигнала наблюдались при $E_{DC} = 7$ кВ/см, поскольку в этом случае энергия рассеянного зондирующего терагерцового импульса была сравнима с энергией, генерируемой в филаменте.

Динамика плотности плазмы, полученная из экспериментальных данных, показана на Рисунке 5.7 символами. Видно, что скорость распада плазмы уменьшается при наличии внешнего электрического поля. Так, при времени 1 нс плотность плазмы при $E_{DC} = 7$ кВ/см примерно в 2 раза выше, чем при $E_{DC} = 0$ (разница в динамике распада между $E_{DC} = 7$ кВ/см и $E_{DC} = 3$ кВ/см менее значительна). На этом же рисунке кривыми показаны результаты численных расчетов на основании уравнений (5.6), (5.7) и модифицированного уравнения (5.8). В уравнении (5.8) в правую часть добавлено слагаемое $e v_d E_{DC}$, где v_d – дрейфовая скорость электронов, рассчитываемая на основании численного кода [217]. Данное слагаемое описывает нагрев электронов во внешнем электрическом поле. В расчетах были учтены все реакции, приведенные в Таблице 5.1. Кроме того, для лучшего согласования с экспериментом была уточнена константа скорости трехчастичной рекомбинации с O_2^+ и получено ее значение $2 \cdot 10^{-19} \cdot (300/T_e)^{9/2}$ см⁶/с. Основная причина замедления скорости распада плазмы связана с более медленным остыванием электронов из-за дополнительного нагрева электрическим полем (см. вставку на Рисунке 5.7).

В следующей серии экспериментов, исследование распада плазменного филамента проводилось при пониженном давлении воздуха (без внешнего поля). При давлениях ниже атмосферного плазменные филаменты изучались преимущественно на начальной стадии формирования [225]. Распад плазменного филамента при давлениях 1.5-20 Торр рассматривался в работе [226], но на микросекундном временном масштабе. На наносекундном временном масштабе такие исследования не проводились.

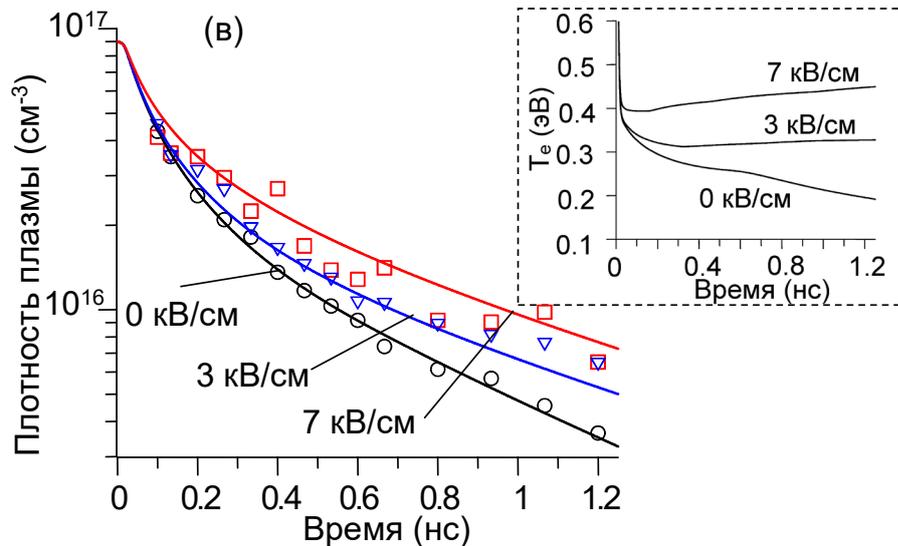


Рисунок 5.7. Динамика плотности плазмы при различных значениях внешнего электрического поля (указано на графике около соответствующих кривых и символов). Символы соответствуют экспериментальным данным, кривые - результаты численных расчетов. Во вставке показана расчетная динамика температуры электронов.

Для проведения измерений при пониженном давлении часть экспериментальной установки была помещена в вакуумную камеру. В этой камере и формировалась филамента. Используя методы оптической интерферометрии и рассеяния зондирующего терагерцового импульса была измерена динамика плотности плазмы при давлениях 50 Торр и 2 Торра (калибровка терагерцовых измерений в начальных точках 100-300 пс проводилась по интерферометрическим данным), а также проведены численные расчеты в приближении фиксированного радиуса канала (см. красные символы и кривые на Рисунке 5.8). Результаты теории и эксперимента показали довольно заметное расхождение, особенно на больших временах распада. Как оказалось, использование приближения фиксированного радиуса канала является не совсем корректным. Действительно, при низких давлениях (<50 Торр) остывание электронов происходит медленнее, в то время как температура ионов увеличивается из-за выделения энергии при электрон-ионной рекомбинации. Например, при давлении 2 Торра температура электронов на временах 4-8 нс составляет 1-2 эВ (см. Рисунок 5.9(а)), когда как при атмосферном давлении – около 0.1-0.2 эВ, а температура газа (при давлении 2 Торра) увеличивается от комнатной до 0.6-0.8 эВ (см. Рисунок 5.9(б)). В результате, согласно выражению (5.5) скорость радиального расширения канала увеличивается в несколько

раз. Дополнительно к вышесказанному, при низких давлениях интерферометрические измерения показали меньший начальный радиус плазменного канала ~ 40 мкм. Следовательно, увеличение радиуса плазменного канала в течение первых пяти наносекунд оказывается сравнимым с начальным радиусом. Это означает, что расширение канала должно учитываться при расчете плотности плазмы.

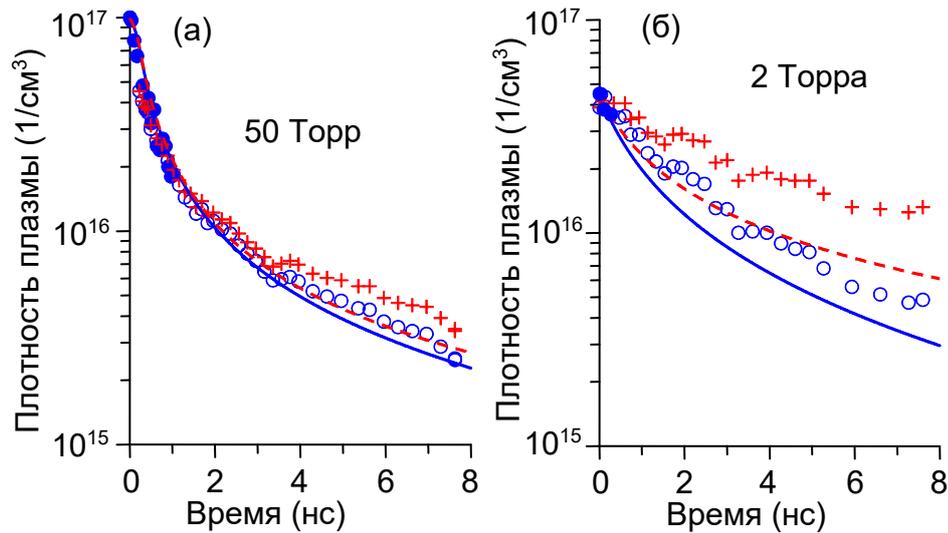


Рисунок 5.8. Динамика плотности плазмы в филаменте при давлении воздуха (а) 50 Торр и (б) 2 Торра. Символы соответствуют экспериментальным данным, кривые - результаты численных расчетов. Крестики и пунктирные кривые получены в предположении фиксированного радиуса канала, кружочки и сплошные кривые – при учете расширения канала.

Предполагая равномерное распределение плотностей всех компонентов плазмы в цилиндрическом филаменте и принимая C_s за скорость границы филамента, уменьшение плотности за счет расширения может быть записана как

$$\frac{dn}{dt} = -\frac{2C_s}{r(t)}n, \quad (5.9)$$

где n – плотность заряженной или нейтральной компоненты,

$$r(t) = r_0 + \int_0^t C_s(t')dt'. \quad (5.10)$$

– радиус плазменного канала в момент времени t , а r_0 - начальный радиус канала, взятый из интерферометрических измерений. Уравнение (5.9) было добавлено в правую часть балансных уравнений (5.6) и (5.7), а уравнение (5.10) использовалось для получения

концентрации плазмы из экспериментальных данных терагерцовых измерений при решении обратной задачи рассеяния. Результаты расчета плотности плазмы при учете расширения канала показаны синими символами (эксперимент) и сплошными кривыми (теория) на Рисунке 5.8. Видно, что хоть теория и дает более быстрый распад плазмы, но согласование с экспериментом значительно лучше, особенно при давлении 50 Торр.

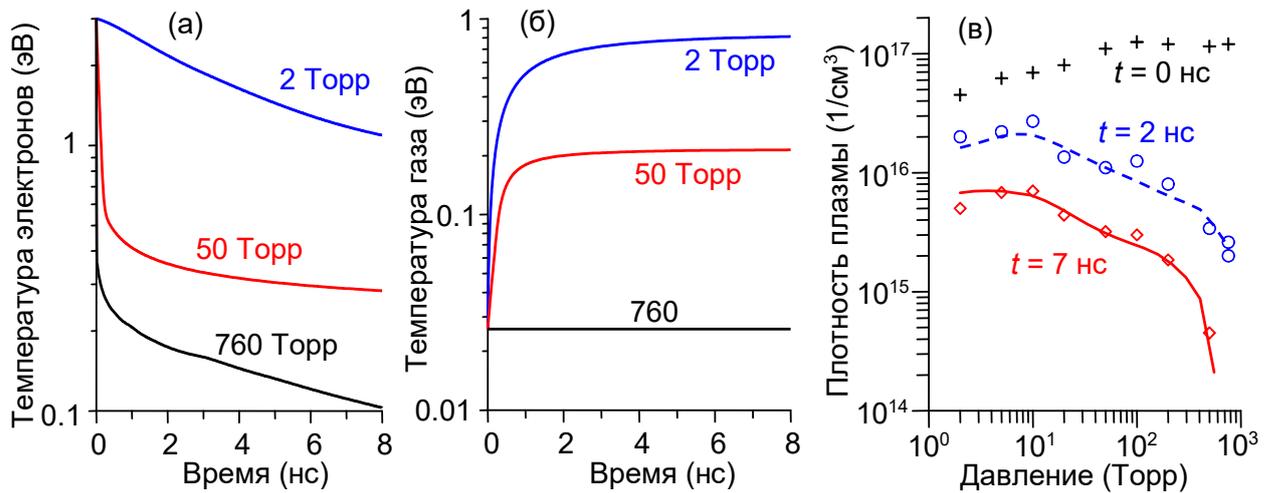


Рисунок 5.9. Теоретически рассчитанная динамика температуры (а) электронов и (б) газа при разных давлениях воздуха (указано около соответствующих кривых). (в) Плотность плазмы в зависимости от давления воздуха в фиксированные моменты времени (значения указаны около кривых). Символы – эксперимент, кривые – теоретический расчет.

Рисунок 5.9(в) показывает значения плотности плазмы в зависимости от давления воздуха в фиксированные моменты времени (измерения при $t = 0$ сделаны методом интерферометрии, а при $t = 2$ нс и 7 нс – методом терагерцового рассеяния). Видно, что начальная концентрация электронов практически не зависит от давления в диапазоне 100 – 760 Торр, и уменьшается с понижением давления. Чем ниже давление газа, тем медленнее происходил распад плазмы (это также видно при сравнении Рисунков 5.5 и 5.8). В частности, плотность плазмы уменьшается на два порядка за первые 7 нс при высоких давлениях (500 – 760 Торр), а при давлении 2 Торра – только на один порядок за то же время.

5.4. Выводы по главе 5

Предложен и экспериментально продемонстрирован новый метод диагностики концентрации электронов в плазменном филаменте, формируемом в газах фемтосекундными лазерными импульсами. В данном методе пикосекундный терагерцовый оптический импульс направляется перпендикулярно на плазменный филамент и измеряется энергия рассеянного терагерцового излучения. Во величине рассеянного излучения, а также некоторой априорной информации можно судить о параметрах плазменного канала. В частности, если известно, что плотность плазмы заведомо больше критической для центральной частоты терагерцового импульса, из величины рассеянного сигнала (или путем сравнения с сигналом, рассеянным на металлической проволоке) можно определить поперечный размер филамента. Если известен поперечный размер канала из данных других измерений, например методом интерферометрии, то можно определить электронную концентрацию в филаменте.

С помощью предложенного метода исследован распад плазмы в воздушной филаменте на наносекундных временах, когда другие методы диагностики испытывают значительные затруднения. Путем калибровки по начальной концентрации плазмы из данных интерферометрических измерений, показано, что при атмосферном давлении концентрация плазмы уменьшается от начального значения $\sim 10^{17} \text{ см}^{-3}$ до уровня $\sim 10^{15} \text{ см}^{-3}$ за 2 нс. При уменьшении давления скорость распада замедляется: за время ~ 8 нс концентрация плазмы спадает при 50 Торр от 10^{17} см^{-3} до $\sim 3 \times 10^{15} \text{ см}^{-3}$, а при давлении 2 Торра – от $4 \times 10^{16} \text{ см}^{-3}$ до $\sim 5 \times 10^{15} \text{ см}^{-3}$.

Также исследована возможность замедления распада плазмы с помощью внешнего электрического поля, направленного вдоль филамента (создаваемого конденсатором). Показано, что при максимальном электрическом поле 7 кВ/см (ограниченном в исследуемой геометрии стимулированным филаментом разрядом конденсатора) время жизни плазмы с плотностью выше 10^{16} см^{-3} увеличивается с 0.5 до 1 нс, что объясняется дополнительным разогревом электронов в электрическом поле и, как следствие, уменьшением скорости рекомбинационных процессов.

Проведено сравнение экспериментальных данных с теоретическими расчетами распада плазмы, учитывающих диссоциативную и трехчастичную рекомбинации электронов с ионами O_2^+ (формируемыми в момент ионизации), а также диссоциативные

рекомбинации электронов с комплексными ионами $N_2O_2^+$, O_4^+ и $H_2O \cdot O_2^+$ (формируемыми в результате ион-молекулярных реакций при распаде плазмы). Получено хорошее согласование экспериментальных измерений с численными расчетами.

Заключение

Основные результаты работы заключаются в следующем.

1. Разработана последовательная двумерная теория, описывающая генерацию терагерцового излучения при оптическом выпрямлении обычных и скошенных фемтосекундных лазерных импульсов в слое электрооптического кристалла. Получены аналитические выражения для поля и энергии генерируемого излучения, которые включают параметры импульса (ширину, длительность, групповую скорость), а также свойства материала (дисперсию и поглощение терагерцовых волн в кристалле, а также длину кристалла). Введены характеристические длины, позволяющие адекватно описать динамику формирования терагерцового поля.
2. Записаны модифицированные формулы Френеля и закон Снелля для описания трансформации ближнего (вынужденного) терагерцового поля лазерного импульса при выходе импульса из электрооптического кристалла. Показано, что в случае наклонного падения импульса на границу кристалла возможны режимы трансформации без генерации свободных терагерцовых волн – отраженной, прошедшей или обеих сразу.
3. Сделано обобщение теории генерации терагерцового излучения скошенными лазерными импульсами, формируемыми в призме из LiNbO_3 с помощью дифракционной решетки и оптической системы переноса изображения, на случай, когда фронт интенсивности формируемого импульса наклонен под произвольными углами к плоскости изображения решетки и выходной грани призмы. Показано, что высокая эффективность оптико-терагерцовой конверсии и хорошее качество терагерцового пучка могут быть достигнуты без считавшейся ранее необходимой параллельности фронта интенсивности и плоскости изображения решетки.
4. Экспериментально выяснена зависимость эффективности генерации терагерцового излучения от энергии оптической накачки в распространенной схеме оптического выпрямления скошенных лазерных импульсов в призме из кристалла LiNbO_3 при различных значениях длительности лазерного импульса (120 и 200 фс), длины распространения импульса в призме (5 и 9 мм) и температуры кристалла (от 10 К до 300 К). Показано, что независимо от температуры кристалла эффективность в отсутствие насыщения растет с энергией накачки быстрее при больших значениях длительности импульса (200 фс) и длины распространения (9 мм), что согласуется с теоретическими

предсказаниями. В режиме насыщения эффективность выше при более коротких импульсах (120 фс) и длинах распространения (5 мм). На основе оценок нелинейной фазы показана существенность эффекта самовоздействия накачки в режиме насыщения. Обнаружено, что энергия накачки, при которой происходит насыщение эффективности, не зависит от температуры кристалла. Это демонстрирует слабое влияние на насыщение эффекта поглощения терагерцового излучения носителями, генерируемыми при многофотонном поглощении накачки, в отличие от того, что предполагалось в других работах.

5. Предложена, теоретически описана и экспериментально апробирована новая схема преобразования скошенных лазерных импульсов в терагерцовое излучение, в которой лазерный импульс вводится в пластину из LiNbO_3 через диэлектрическую призму, а генерируемое терагерцовое излучение выводится из пластины с противоположной стороны через другую призму. В эксперименте с накачкой пластины LiNbO_3 толщиной 1 мм и поперечными размерами 1 см \times 2 см, расположенной между призмами из воды (в специальной кювете) и кремния, импульсами фемтосекундного титан-сапфирового лазера мДж уровня энергии получена высокая эффективность оптико-терагерцового преобразования $\sim 0,1\%$. Указано, что предложенная схема имеет потенциал масштабирования генерируемой терагерцовой энергии за счет использования коммерчески доступных широкоапертурных пластин LiNbO_3 и лазерной накачки тераваттного уровня мощности.

6. Предложены, теоретически описаны и экспериментально апробированы высокоэффективные оптико-терагерцовые преобразователи в виде прикрепленного к кремниевой призме тонкого (толщиной 30-50 мкм) слоя электрооптического кристалла (LiNbO_3), в которых оптическая накачка распространяется вдоль кристаллического слоя в виде волноводной моды и в результате оптического выпрямления генерирует черенковский конус терагерцового излучения, выходящий через призму в свободное пространство. Экспериментально продемонстрировано, что при накачке преобразователя сфокусированными в линию импульсами титан-сапфирового лазера (длина волны ~ 800 нм) длительностью 50-200 фс и энергией до нескольких сотен мкДж могут генерироваться терагерцовые импульсы с максимумом спектра на частоте 1-2 ТГц и шириной спектра до 5-6 ТГц при эффективности преобразования до 0,2-0,4%. Продemonстрировано также, что увеличение длины волны накачки до ~ 2 мкм позволяет

повысить эффективность преобразования до $\sim 1\%$. В преобразователях с большой (5 см) шириной слоя LiNbO_3 при накачке широким лазерным пучком с энергией лазерного импульса 0,6 мДж достигнута генерация терагерцовых импульсов с энергией 1,2 мкДж и напряженностью терагерцового поля (при острой фокусировке) 350-500 кВ/см.

7. Экспериментально продемонстрирована возможность генерации широкополосного терагерцового излучения фемтосекундными лазерными импульсами в кристалле DKDP, обладающим сильным поглощением в терагерцовом диапазоне частот ($> 200 \text{ см}^{-1}$ на частотах более 1 ТГц). Генерация основана на черенковском механизме излучения в геометрии поверхностного вывода, когда оптическая накачка распространяется вблизи боковой грани кристалла, а вывод генерируемого излучения происходит через кремниевую призму, прижатую к этой боковой поверхности. В эксперименте получены терагерцовые импульсы со спектром шириной 3-4 ТГц и частотой максимума 0,5 ТГц. Достигнута эффективность оптико-терагерцовой конверсии 8×10^{-6} . Из экспериментальных данных определен нелинейный коэффициент кристалла DKDP при оптическом выпрямлении фемтосекундных импульсов $d_{36}^{\text{OR}} \sim 3 \text{ пм/В}$, что на порядок выше соответствующего нелинейного коэффициента для генерации второй оптической гармоники, но в тоже время на порядок меньше значения, которого можно было бы ожидать, исходя из электрооптического коэффициента r_{63} для МГц диапазона частот. Полученное значение согласуется с правилом Миллера, учитывающим дисперсию ионного вклада в нелинейность.

8. Разработана теория генерации второй оптической гармоники при коллинеарном распространении фемтосекундного оптического и пикосекундного терагерцового импульсов в прозрачной центрально-симметричной среде с кубической нелинейностью. Показано, что вторая оптическая гармоника генерируется только на границах среды, если выполнено типичное для большинства материалов условие малости длины когерентности между основной оптической частотой и ее второй гармоникой по сравнению с длиной разбегания оптического и терагерцового импульсов. Теоретические предсказания подтверждены в экспериментах с пластиной плавленого кварца.

9. Предложен метод обнаружения оптически малоконтрастных границ раздела в прозрачных центрально-симметричных средах, основанный на пространственно локализованной генерации второй оптической гармоники в присутствии электрического

поля терагерцового импульса. Экспериментально продемонстрировано обнаружение слоя оптического клея толщиной 10-20 мкм между двумя пластинами плавленого кварца, а также измерены глубина залегания слоя и нелинейный коэффициент клея.

10. Путем измерения энергии второй оптической гармоники, излученной с поверхности непрозрачного материала в присутствии электрического поля терагерцового импульса найдены нелинейные восприимчивости третьего порядка $\chi^{(3)}(2\omega; \omega, \omega, 0)$ теллуридных и халькогенидных стекол, а также кремния. Показана необходимость учета паразитного сигнала второй гармоники, генерируемой в окружающем газе. Для стекол продемонстрировано близкое значение измеренных восприимчивостей с восприимчивостями $\chi^{(3)}(\omega; \omega, -\omega, \omega)$, отвечающими за эффект самовоздействия. В результате измерения зависимости энергии второй оптической гармоники от ориентации кремниевого образца и от напряженности терагерцового поля определено встроенное (приповерхностное) электрическое поле в высокоомном кремнии (111) *n*-типа.

11. Измерена динамика анизотропии оптического показателя преломления, наведенной субпикосекундными терагерцовыми импульсами в плавленом кварце, полярных (ацетон, хлороформ) и неполярных (бензол, четыреххлористый углерод) жидкостях. Для плавленого кварца и четыреххлористого углерода (обладающих только электронным нелинейным откликом), а также для неполярного бензола (с нулевым дипольным моментом, но ненулевой молекулярной анизотропией) получены константы Керра V_{THz} , совпадающие с известными константами $V_{\text{ОЭК}}$ и V_{DC} для эффекта Керра в оптическом и постоянном полях ($V_{\text{THz}} \approx V_{\text{ОЭК}} \approx V_{\text{DC}}$). Для полярных жидкостей (ацетона и хлороформа) получено промежуточное между $V_{\text{ОЭК}}$ и V_{DC} значение V_{THz} , что объяснено вкладом постоянного дипольного момента молекул и его инерционностью на субпикосекундном временном масштабе воздействия терагерцового импульса.

12. Показано, что при воздействии терагерцового импульса с пиковой напряженностью электрического поля 250 кВ/см на монослой графена, расположенный на подложке из полиэтилентерефталата (ПЭТ), возбуждается оптическая люминесценция со спектром, имеющим в диапазоне длин волн 400-1000 нм тепловой характер с температурой около 2500 К. Энергия люминесценции растет с увеличением напряженности терагерцового поля от 100 кВ/см до 250 кВ/см по степенному закону с показателем степени около 6.

13. Показано, что оптическая люминисценция, наводимая в графене терагерцовым излучением, может быть использована для визуализации терагерцовых пучков с напряженностью электрического поля более 100 кВ/см при регистрации люминисценции охлаждаемой ССD камерой с кремниевой матрицей. Продемонстрировано локальное усиление люминисценции графена вследствие увеличения терагерцового поля вблизи кончика металлической иглы с радиусом кривизны около 2 мкм. Предложено использовать данный эффект для картирования ближнего терагерцового поля в микроструктурах.

14. Предложен и экспериментально продемонстрирован метод диагностики электронной концентрации в плазменной филаменте, создаваемой в газе мощным лазерным излучением, который основан на измерении энергии рассеянного на филаменте зондирующего импульсного терагерцового излучения. Путем калибровки по данным интерферометрических измерений предложенным методом измерена динамика электронной концентрации в созданной в воздухе филаменте на наносекундных временах, когда применение других диагностических методов затруднено. Показано, что в хорошем соответствии с численными расчетами при атмосферном давлении концентрация плазмы уменьшается от начального значения $\sim 10^{17} \text{ см}^{-3}$ до $\sim 10^{15} \text{ см}^{-3}$ за 2 нс, а при уменьшении давления скорость распада плазмы замедляется: при 50 Торр концентрация за ~ 8 нс спадает от 10^{17} см^{-3} до $\sim 3 \times 10^{15} \text{ см}^{-3}$, а при 2 Торр за то же время спадает от $4 \times 10^{16} \text{ см}^{-3}$ до $\sim 5 \times 10^{15} \text{ см}^{-3}$. В присутствии направленного вдоль филаменты внешнего электрического поля с напряженностью 7 кВ/см время жизни плазмы с плотностью выше 10^{16} см^{-3} увеличивается при атмосферном давлении с 0,5 до 1 нс, что объяснено дополнительным разогревом электронов в электрическом поле и уменьшением вследствие этого скорости рекомбинационных процессов.

Список литературы

- [1] Fülöp J. A. Laser-driven strong-field terahertz sources / J. A. Fülöp, S. Tzortzakis, T. Kampfrath // *Advanced Optical Materials*. – 2020. – V. 8. – №. 3. – P. 1900681.
- [2] Hwang H. Y. A review of non-linear terahertz spectroscopy with ultrashort tabletop-laser pulses / H. Y. Hwang, S. Fleischer, N. C. Brandt, B. G. Perkins Jr., M. Liu, K. Fan, A. Sternbach, X. Zhang, R. D. Averitt & K. A. Nelson // *Journal of Modern Optics*. – 2015. – V. 62. – №. 18. – P. 1447-1479.
- [3] Neu J. Optical pump terahertz probe (OPTH) and time resolved terahertz spectroscopy (TRTS) of emerging solar materials / J. Neu // *APL Photonics*. – 2023. – V. 8. – №. 7. – P. 071103.
- [4] Wu Q. Free-space electro-optic sampling of terahertz beams / Q. Wu, X. C. Zhang // *Applied Physics Letters*. – 1995. – V. 67. – №. 24. – P. 3523-3525.
- [5] Koch M. Terahertz time-domain spectroscopy / M. Koch, D.M. Mittleman, J. Ornik, E. Castro-Camus // *Nature Reviews Methods Primers*. – 2023. – V. 3. – №. 1. – P. 48.
- [6] Auston D. H. Cherenkov radiation from femtosecond optical pulses in electro-optic media / D.H. Auston, K.P. Cheung, J.A. Valdmanis, D.A. Kleinman // *Physical Review Letters*. – 1984. – P. 53. – №. 16. – V. 1555.
- [7] Zhu X. High field single-to few-cycle THz generation with lithium niobate / X. Zhu, D.R. Bacon, J. Madéo, K.M. Dani // *Photonics*. – Multidisciplinary Digital Publishing Institute, 2021. – P. 8. – №. 6. – V. 183.
- [8] Auston D. H. Picosecond photoconducting Hertzian dipoles / D. H. Auston, K. P. Cheung, P. R. Smith // *Applied physics letters*. – 1984. – V. 45. – №. 3. – P. 284-286.
- [9] Isgandarov E. Intense terahertz generation from photoconductive antennas / E Isgandarov, X Ropagnol, M Singh, T Ozaki // *Frontiers of Optoelectronics*. – 2021. – V. 14. – P. 64-93.
- [10] Cook D. J. Intense terahertz pulses by four-wave rectification in air / D. J. Cook, R. M. Hochstrasser // *Optics letters*. – 2000. – V. 25. – №. 16. – P. 1210-1212.

- [11] Oh T. I. Intense terahertz generation in two-color laser filamentation: energy scaling with terawatt laser systems / T.I. Oh, Y.S. You, N. Jhajj, E.W. Rosenthal, H.M. Milchberg, K.Y. Kim // *New Journal of Physics*. – 2013. – V. 15. – №. 7. – P. 075002.
- [12] Jin Q. Observation of broadband terahertz wave generation from liquid water / Q. Jin, K. Williams, J. Dai, X.C. Zhang // *Applied Physics Letters*. – 2017. – V. 111. – №. 7. – P. 071103.
- [13] Dey I. Highly efficient broadband terahertz generation from ultrashort laser filamentation in liquids / I. Dey, K. Jana, V.Y. Fedorov et al. // *Nature communications*. – 2017. – V. 8. – №. 1. – P. 1184.
- [14] Li J. Spin current from sub-terahertz-generated antiferromagnetic magnons / J. Li, C.B. Wilson, R. Cheng, et al. // *Nature*. – 2020. – V. 578. – №. 7793. – P. 70-74.
- [15] Ilyakov I. Efficient ultrafast field-driven spin current generation for spintronic terahertz frequency conversion / I. Ilyakov, A. Brataas, T. V. A. G. de Oliveira, et al. // *Nature Communications*. – 2023. – V. 14. – №. 1. – P. 7010.
- [16] Gao Y. Half-cycle-pulse terahertz emission from an ultrafast laser plasma in a solid target / Y. Gao, T. Drake, Z. Chen, M.F. DeCamp // *Optics letters*. – 2008. – V. 33. – №. 23. – P. 2776-2778.
- [17] Herzer S. An investigation on THz yield from laser-produced solid density plasmas at relativistic laser intensities / S. Herzer, A. Woldegeorgis, J. Polz, et al. // *New Journal of Physics*. – 2018. – V. 20. – №. 6. – P. 063019.
- [18] Liao G. Multimillijoule coherent terahertz bursts from picosecond laser-irradiated metal foils / G. Liao, Y. Li, H. Liu et al. // *Proceedings of the National Academy of Sciences*. – 2019. – V. 116. – №. 10. – P. 3994-3999.
- [19] Wu X. Generation of 13.9-mJ terahertz radiation from lithium niobate materials / X. Wu, D. Kong, S. Hao, et al. // *Advanced Materials*. – 2023. – V. 35. – №. 23. – P. 2208947.
- [20] Ovchinnikov A. V. Generation of strong-field spectrally tunable terahertz pulses / A.V. Ovchinnikov, O.V. Chefonov, M.B. Agranat, V.E. Fortov, M. Jazbinsek, C.P. Hauri // *Optics Express*. – 2020. – V. 28. – №. 23. – P. 33921-33936.

- [21] Vicario C. Generation of 0.9-mJ THz pulses in DSTMS pumped by a Cr: Mg₂SiO₄ laser / C. Vicario, A. V. Ovchinnikov, S. I. Ashitkov, M. B. Agranat, V. E. Fortov, and C. P. Hauri // *Optics Letters*. – 2014. – V. 39. – №. 23. – P. 6632-6635.
- [22] Yu X. Q. Megaelectronvolt electron acceleration driven by terahertz surface waves / X. Q. Yu, Y. S. Zeng, L. W. Song // *Nature Photonics*. – 2023. – V. 17. – №. 11. – P. 957-963.
- [23] Mashkovich E. A. Terahertz light-driven coupling of antiferromagnetic spins to lattice / E. A. Mashkovich, K. A. Grishunin, R. M. Dubrovin, A. K. Zvezdin, R. V. Pisarev, A. V. Kimel // *Science*. – 2021. – V. 374. – №. 6575. – P. 1608-1611.
- [24] Reimann K. Two-dimensional terahertz spectroscopy of condensed-phase molecular systems / K. Reimann, M. Woerner, T. Elsaesser // *The Journal of Chemical Physics*. – 2021. – V. 154. – №. 12. – P. 120901.
- [25] Vidal S. Impact of dispersion, free carriers, and two-photon absorption on the generation of intense terahertz pulses in ZnTe crystals / S. Vidal, J. Degert, M. Tondusson, J. Oberlé, and E. Freysz // *Applied Physics Letters*. – 2011. – V. 98. – №. 19. – P. 191103.
- [26] Blanchard F. Generation of 1.5 μJ single-cycle terahertz pulses by optical rectification from a large aperture ZnTe crystal / F. Blanchard, L. Razzari, H.C. Bandulet, et al. // *Optics Express*. – 2007. – V. 15. – №. 20. – P. 13212-13220.
- [27] Chang G. Power scalable compact THz system based on an ultrafast Yb-doped fiber amplifier / G. Chang, C.J. Divin, C.H. Liu, S.L. Williamson, A. Galvanauskas, T.B. Norris // *Optics Express*. – 2006. – V. 14. – №. 17. – P. 7909-7913.
- [28] Nagai M. Generation and detection of terahertz radiation by electro-optical process in GaAs using 1.56 μm fiber laser pulses / M. Nagai, K. Tanaka, H. Ohtake, T. Bessho, T. Sgiura, T. Hirosumi, and M. Yoshida // *Applied Physics Letters*. – 2004. – V. 85. – №. 18. – P. 3974-3976.
- [29] Sinko A. Perspective on terahertz applications of molecular crystals / A. Sinko, I. Ozheredov, E. Rudneva, et al. // *Electronics*. – 2022. – V. 11. – №. 17. – P. 2731.

- [30] Hauri C. P. Strong-field single-cycle THz pulses generated in an organic crystal / C.P. Hauri, C. Ruchert, C. Vicario, F. Ardana // *Applied Physics Letters*. – 2011. – V. 99. – №. 16. – P. 161116.
- [31] Shalaby M. Demonstration of a low-frequency three-dimensional terahertz bullet with extreme brightness / Shalaby M., Hauri C. P. // *Nature communications*. – 2015. – V. 6. – №. 1. – P. 5976.
- [32] Jazbinsek M. Organic crystals for THz photonics / M. Jazbinsek, U. Puc, A. Abina, A. Zidansek // *Applied Sciences*. – 2019. – V. 9. – №. 5. – P. 882.
- [33] Roeder F. THz generation by optical rectification of intense near-infrared pulses in organic crystal BNA / F. Roeder, M. Shalaby, B. Beleites, F. Ronneberger, A. Gopal // *Optics Express*. – 2020. – V. 28. – №. 24. – P. 36274-36285.
- [34] Gollner C. Highly efficient THz generation by optical rectification of mid-IR pulses in DAST / C. Gollner, M. Shalaby, C. Brodeur, et al. // *APL Photonics*. – 2021. – V. 6. – №. 4. – P. 046105.
- [35] Hebling J. Velocity matching by pulse front tilting for large-area THz-pulse generation / J. Hebling, G. Almasi, I. Z. Kozma, J. Kuhl // *Optics Express*. – 2002. – V. 10. – №. 21. – P. 1161-1166.
- [36] Martinez O. E. Pulse distortions in tilted pulse schemes for ultrashort pulses / O. E. Martinez // *Optics communications*. – 1986. – V. 59. – №. 3. – P. 229-232.
- [37] Ofori-Okai B. K. THz generation using a reflective stair-step echelon / B.K. Ofori-Okai, P. Sivarajah, W. Ronny Huang, K. A. Nelson // *Optics Express*. – 2016. – V. 24. – №. 5. – P. 5057-5068.
- [38] Tokodi L. Optimization of the tilted-pulse-front terahertz excitation setup containing telescope / Tokodi L., Hebling J., Pálfalvi L. // *Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves*. – 2017. – V. 38. – P. 22-32.
- [39] Stepanov A. G. Efficient generation of subpicosecond terahertz radiation by phase-matched optical rectification using ultrashort laser pulses with tilted pulse fronts / Stepanov A. G., Hebling J., Kuhl J. // *Applied Physics Letters*. – 2003. – V. 83. – №. 15. – P. 3000-3002.

- [40] Hebling J. Tunable THz pulse generation by optical rectification of ultrashort laser pulses with tilted pulse fronts / J. Hebling, A. G. Stepanov, G. Almasi, B. Bartal, and J. Kuhl // *Applied Physics B*. – 2004. – V. 78. – P. 593-599.
- [41] Stepanov A. G. Scaling up the energy of THz pulses created by optical rectification / A. G. Stepanov, J. Kuhl, I. Z. Kozma, E. Riedle, G. Almasi, and J. Hebling // *Optics Express*. – 2005. – V. 13. – №. 15. – P. 5762-5768.
- [42] Tóth G., Polónyi G., Hebling J. Tilted pulse front pumping techniques for efficient terahertz pulse generation / G. Tóth, G. Polónyi, J. Hebling // *Light: Science & Applications*. – 2023. – V. 12. – №. 1. – P. 256.
- [43] Huang S. W. High conversion efficiency, high energy terahertz pulses by optical rectification in cryogenically cooled lithium niobate / S.W. Huang, E. Granados, W.R. Huang, et al. // *Optics letters*. – 2013. – V. 38. – №. 5. – P. 796-798.
- [44] Stepanov A. G. Generation of 30 μ J single-cycle terahertz pulses at 100 Hz repetition rate by optical rectification / A.G. Stepanov, L. Bonacina, S.V. Chekalin, J.P. Wolf // *Optics Letters*. – 2008. – V. 33. – №. 21. – P. 2497-2499.
- [45] Wu X. Highly efficient generation of 0.2 mJ terahertz pulses in lithium niobate at room temperature with sub-50 fs chirped Ti: sapphire laser pulses / X Wu, J Ma, B Zhang, S Chai, et al. // *Optics Express*. – 2018. – V. 26. – №. 6. – P. 7107-7116.
- [46] Pálfalvi L. Hybrid tilted-pulse-front excitation scheme for efficient generation of high-energy terahertz pulses / L. Pálfalvi, Z. Ollmann, L. Tokodi, J. Hebling // *Optics express*. – 2016. – V. 24. – №. 8. – P. 8156-8169.
- [47] Tóth G. Single-cycle scalable terahertz pulse source in reflection geometry / G. Tóth, L. Pálfalvi, Z. Tibai, L. Tokodi, J.A. Fülöp, Z. Márton, G. Almási, J. Hebling // *Optics Express*. – 2019. – V. 27. – №. 21. – P. 30681-30691.
- [48] Auston D. H. Subpicosecond electro-optic shock waves / D. H. Auston // *Applied Physics Letters*. – 1983. – V. 43. – №. 8. – P. 713-715.
- [49] Wahlstrand J. K. Cherenkov radiation emitted by ultrafast laser pulses and the generation of coherent polaritons / J. K. Wahlstrand, R. Merlin // *Physical Review B*. – 2003. – V. 68. – №. 5. – P. 054301.

- [50] Pálfalvi L. Temperature dependence of the absorption and refraction of Mg-doped congruent and stoichiometric LiNbO₃ in the THz range / L. Pálfalvi, J. Hebling, J. Kuhl, Á. Péter, and K. Polgár // *Journal of Applied Physics*. – 2005. – V. 97. – №. 12. – P. 123505.
- [51] Stepanov A. G. THz generation via optical rectification with ultrashort laser pulse focused to a line / A. G. Stepanov, J. Hebling, J. Kuhl // *Applied Physics B*. – 2005. – V. 81. – P. 23-26.
- [52] Theuer M. Efficient generation of Cherenkov-type terahertz radiation from a lithium niobate crystal with a silicon prism output coupler / M. Theuer, G. Torosyan, C. Rau, R. Beigang, K. Maki, C. Otani, and K. Kawase // *Applied Physics Letters*. – 2006. – V. 88. – №. 7. – P. 071122.
- [53] Kawase K. Unidirectional radiation of widely tunable THz wave using a prism coupler under noncollinear phase matching condition / K. Kawase, M. Sato, K. Nakamura, T. Taniuchi, and H. Ito // *Applied Physics Letters*. – 1997. – V. 71. – №. 6. – P. 753-755.
- [54] Avetisyan Y., Sasaki Y., Ito H. Analysis of THz-wave surface-emitted difference-frequency generation in periodically poled lithium niobate waveguide / Y. Avetisyan, Y. Sasaki, H. Ito // *Applied Physics B*. – 2001. – V. 73. – P. 511-514.
- [55] Bakunov M. I. Efficient Cherenkov-type terahertz generation in Si-prism-LiNbO₃-slab structure pumped by nanojoule-level ultrashort laser pulses / M. I. Bakunov, E. A. Mashkovich, M. V. Tsarev, and S. D. Gorelov // *Applied Physics Letters*. – 2012. – V. 101. – №. 15. – P. 151102.
- [56] Ravi K. Limitations to THz generation by optical rectification using tilted pulse fronts / K. Ravi, W.R. Huang, S. Carbajo, X. Wu, F. Kärtner // *Optics Express*. – 2014. – V. 22. – №. 17. – P. 20239-20251.
- [57] Ravi K. Theory of terahertz generation by optical rectification using tilted-pulse-fronts / K. Ravi, W.R. Huang, S. Carbajo, et al. // *Optics Express*. – 2015. – V. 23. – №. 4. – P. 5253-5276.
- [58] Efimenko E. S. Strong spectral broadening of Cherenkov-type terahertz radiation by free carrier generation / E. S. Efimenko, N. A. Abramovsky, M. I. Bakunov // *Phys. Rev. A*. – 2023. – V. 107. – P. 013526.

- [59] Wynne K. An integrated description of terahertz generation through optical rectification, charge transfer, and current surge / K. Wynne and J. J. Carey // *Optics Communications*. – 2005. – V. 256. – №. 4-6. – P. 400-413.
- [60] Kleinman D. A. Theory of electrooptic shock radiation in nonlinear optical media / D. A. Kleinman and D. H. Auston // *IEEE Journal of Quantum Electronics*. – 1984. – V. 20. – P. 964.
- [61] Schneider A. Generation of terahertz pulses through optical rectification in organic DAST crystals: theory and experiment / A. Schneider, M. Neis, M. Stillhart, B. Ruiz, R. U. A. Khan, and P. Gunter // *Journal of the Optical Society of America B*. – 2006. – V. 23. – №. 9. – P. 1822-1835.
- [62] Côté D. Simple method for calculating the propagation of terahertz radiation in experimental geometries / D. Côté, J. E. Sipe, and H. M. van Driel, // *Journal of the Optical Society of America B*. – 2003. – V. 20. – №. 6. – P. 1374-1385.
- [63] Hebling J. Generation of high-power terahertz pulses by tilted-pulse-front excitation and their application possibilities / J. Hebling, K.L. Yeh, M.C. Hoffmann, B. Bartal, K.A. Nelson // *Journal of the Optical Society of America B*. – 2008. – V. 25. – №. 7. – P. B6-B19.
- [64] Bartal B. Toward generation of μJ range sub-ps THz pulses by optical rectification / B. Bartal, I. Z. Kozma, A. G. Stepanov, G. Almási, J. Kuhl, E. Riedle, and J. Hebling // *Applied Physics B*. – 2007. – V. 86. – P. 419-423.
- [65] Fülöp J. A. Design of high-energy terahertz sources based on optical rectification / J. A. Fülöp, L. Palfalvi, G. Almási, and J. Hebling // *Optics Express*. – 2010. – V. 18. – №. 12. – P. 12311-12327.
- [66] Shuvaev A. V. Čerenkov radiation excited by an ultrashort laser pulse with oblique amplitude front / A.V. Shuvaev, M.M. Nazarov, A.P. Shkurinov, A.S. Chirkin // *Radiophysics and Quantum Electronics*. – 2007. – V. 50. – P. 922-928.
- [67] Braun A. Self-channeling of high-peak-power femtosecond laser pulses in air / A. Braun, G. Korn, X. Liu, D. Du, J. Squier, and G. Mourou // *Optics Letters*. – 1995. – V. 20. – №. 1. – P. 73-75.

- [68] Rodríguez M. Triggering and guiding megavolt discharges by use of laser-induced ionized filaments / M. Rodriguez, R. Sauerbrey, H. Wille, L. Wöste, T. Fujii, Y.-B. André, A. Mysyrowicz, L. Klingbeil, K. Rethmeier, W. Kalkner, J. Kasparian, E. Salmon, J. Yu, and J.-P. Wolf // *Optics Letters*. – 2002. – V. 27. – №. 9. – P. 772-774.
- [69] Kasparian J. White-light filaments for atmospheric analysis / J. Kasparian, M. Rodriguez, G. Mejean, J. Yu, E. Salmon, H. Wille, R. Bourayou, S. Frey, Y.-B. Andre, A. Mysyrowicz, R. Sauerbrey, J.-P. Wolf, and L. Wöste // *Science*. – 2003. – V. 301. – №. 5629. – P. 61-64.
- [70] Châteauneuf M. Microwave guiding in air by a cylindrical filament array waveguide / M. Châteauneuf, S. Payeur, J. Dubois, and J.-C. Kieffer // *Applied Physics Letters*. – 2008. – V. 92. – №. 9. – P. 091104.
- [71] Amico C. D. Forward THz radiation emission by femtosecond filamentation in gases: theory and experiment / C. D. Amico, A. Houard, S. Akturk, Y. Liu, J. Le. Bloas, M. Franco, B. Prade, A. Couairon, V. T. Tikhonchuk, and A. Mysyrowicz // *New Journal of Physics*. – 2008. – V. 10. – №. 1. – P. 013015.
- [72] Galletti M. Femtosecond laser-induced plasma filaments for beam-driven plasma wakefield acceleration / M. Galletti, L. Crincoli, R. Pompili et al. // *Physical Review E*. – 2025. – V. 111. – №. 2. – P. 025202.
- [73] Couairon A. Femtosecond filamentation in transparent media / A. Couairon and A. Mysyrowicz // *Phys. Rep.* – 2007. – V. 441. – P. 47.
- [74] Bodrov S. Plasma filament investigation by transverse optical interferometry and terahertz scattering / S. Bodrov, V. Bukin, M. Tsarev, A. Murzanev, S. Garnov, N. Aleksandrov, and A. Stepanov // *Optics Express*. – 2011. – V. 19. – №. 7. – P. 6829-6835.
- [75] Chen Y. H. Direct Measurement of the Electron Density of Extended Femtosecond Laser Pulse-Induced Filaments / Y.-H. Chen, S. Varma, T. M. Antonsen, and H. M. Milchberg // *Physical Review Letters*. – 2010. – V. 105. – №. 21. – P. 215005.
- [76] Tzortzakis S. Time-evolution of the plasma channel at the trail of a self-guided IR femtosecond laser pulse in air / S. Tzortzakis, B. Prade, M. Franco, and A. Mysyrowicz // *Optics communications*. – 2000. – V. 181. – №. 1-3. – P. 123-127.

- [77] Théberge F. Plasma density inside a femtosecond laser filament in air: Strong dependence on external focusing / F. Theberge, W. Liu, P. T. Simard, A. Becker, and S. L. Chin // *Physical Review E*. – 2006. – V. 74. – №. 3. – P. 036406.
- [78] Eisenmann S. Fine structure of a laser-plasma filament in air / S. Eisenmann, A. Pukhov, and A. Zigler // *Physical Review Letters*. – 2007. – V. 98. – №. 15. – P. 155002.
- [79] Tzortzakis S. Formation of a conducting channel in air by self-guided femtosecond laser pulses / S. Tzortzakis, M. A. Franco, Y.-B. Andr'e, A. Chiron, B. Lamouroux, B. S. Prade, and A. Mysyrowicz // *Physical Review E*. – 1999. – V. 60. – №. 4. – P. R3505.
- [80] Abdollahpour D. Measuring easily electron plasma densities in gases produced by ultrashort lasers and filaments / D. Abdollahpour, S. Suntsov, D. G. Papazoglou, and S. Tzortzakis // *Optics Express*. – 2011. – V. 19. – №. 18. – P. 16866-16871.
- [81] Terhune R. W. Optical harmonic generation in calcite / R. W. Terhune, P. D. Maker, and C. M. Savage // *Physical Review Letters*. – 1962. – V. 8. – №. 10. – P. 404.
- [82] Kishida H. Electric-field-induced second-harmonic generation mediated by one-dimensional excitons in polysilanes / H. Kishida, T. Hasegawa, Y. Iwasa, T. Koda, Y. Tokura, H. Tachibana, M. Matsumoto, S. Wada, T. T. Lay, and H. Tashiro // *Physical Review B*. – 1994. – V. 50. – №. 11. – P. 7786.
- [83] Xiao D. Optical probing of a silicon integrated circuit using electric-field-induced second-harmonic generation / D. Xiao, E. Ramsay, D. T. Reid, B. Offenbeck, and N. Weber // *Applied Physics Letters*. – 2006. – V. 88. – №. 11. – P. 114107.
- [84] Dadap J. I. Measurement of the vector character of electric fields by optical second-harmonic generation / J. I. Dadap, J. Shan, A. S. Weling, J. A. Misewich, A. Nahata, and T. F. Heinz // *Optics Letters*. – 1999. – V. 24. – №. 15. – P. 1059-1061.
- [85] Aktsipetrov O. A. DC-electric-field-induced and low-frequency electromodulation second-harmonic generation spectroscopy of Si (001)–SiO₂ interfaces / O. A. Aktsipetrov, A. A. Fedyanin, A. V. Melnikov, E. D. Mishina, A. N. Rubtsov, M. H. Anderson, P. T. Wilson, M. ter Beek, X. F. Hu, J. I. Dadap, and M. C. Downer // *Physical Review B*. – 1999. – V. 60. – №. 12. – P. 8924.

- [86] Manaka T. Optical second-harmonic generation measurement for probing organic device operation / T. Manaka, M. Iwamoto // *Light: Science & Applications*. – 2016. – V. 5. – №. 3. – P. e16040.
- [87] Theer P. Second-harmonic generation imaging of membrane potential with retinal analogues / P. Theer, W. Denk, M. Sheves, A. Lewis, and P. B. Detwiler // *Biophysical journal*. – 2011. – V. 100. – №. 1. – P. 232-242.
- [88] Nahata A. Detection of freely propagating terahertz radiation by use of optical second-harmonic generation / A. Nahata and T. F. Heinz // *Optics Letters*. – 1998. – V. 23. – №. 1. – P. 67-69.
- [89] Ovchinnikov A. V. Second harmonic generation in the bulk of silicon induced by an electric field of a high power terahertz pulse / A. V. Ovchinnikov, O. V. Chefonov, E. D. Mishina, and M. B. Agranat // *Scientific Reports*. – 2019. – V. 9. – №. 1. – P. 9753.
- [90] Armstrong J. A. Interactions between light waves in a nonlinear dielectric / J. A. Armstrong, N. Blgemeergen, J. Ducuing, and P. S. Pershan // *Physical Review*. – 1962. – V. 127. – №. 6. – P. 1918.
- [91] Jerphagnon J. Maker fringes: a detailed comparison of theory and experiment for isotropic and uniaxial crystals / J. Jerphagnon and S. K. Kurtz // *Journal of Applied Physics*. – 1970. – V. 41. – №. 4. – P. 1667-1681.
- [92] Hu C. Y. Theoretical solution to second-harmonic generation of ultrashort laser pulse / C.-Y. Hu, H.-J. He, B.-Q. Chen, Z.-Y. Wei, and Z.-Y. Li // *Journal of Applied Physics*. – 2017. – V. 122. – №. 24. – P. 243105.
- [93] Chen J. Terahertz-field-induced second-harmonic generation in a beta barium borate crystal and its application in terahertz detection / J. Chen, P. Han, and X.-C. Zhang // *Applied Physics Letters*. – 2009. – V. 95. – №. 1. – P. 011118.
- [94] Акципетров О.А. Нелинейная оптика кремния и кремниевых наноструктур / О.А. Акципетров, И.М. Баранова, К.Н. Евтюхов // М.: ФИЗМАТЛИТ. – 2012. – С. 544.
- [95] Nicollian E. H. MOS (Metal Oxide Semiconductor) Physics and Technology / E. H. Nicollian and J. R. Brews // JohnWiley & Sons, Somerset. – 1982.
- [96] Palumbo F. A review on dielectric breakdown in thin dielectrics: silicon dioxide, high-k, and layered dielectrics / F. Palumbo, C. Wen, S. Lombardo, S. Pazos, F. Aguirre, M.

- Eizenberg, F. Hui, and M. Lanza // *Advanced Functional Materials*. – 2020. – V. 30. – №. 18. – P. 1900657.
- [97] Alles M. L. Second harmonic generation for noninvasive metrology of silicon-on-insulator wafers / M. L. Alles, R. Pasternak, X. Lu, N. H. Tolk, R. D. Schrimpf, D. M. Fleetwood, R. P. Dolan, and R. W. Standley // *IEEE transactions on semiconductor manufacturing*. – 2007. – V. 20. – №. 2. – P. 107-113.
- [98] Fiore J. L. Second harmonic generation probing of dopant type and density at the Si/SiO₂ interface / J. L. Fiore, V. V. Fomenko, D. Bodlaki, and E. Borguet // *Applied Physics Letters*. – 2011. – V. 98. – №. 4. – P. 041905.
- [99] Ohlhoff C. Static and high-frequency electric fields in silicon MOS and MS structures probed by optical second-harmonic generation / C. Ohlhoff, G. Lupke, C. Meyer, and H. Kurz // *Physical Review B*. – 1997. – V. 55. – №. 7. – P. 4596.
- [100] Buckingham A. D. A molecular theory of the electro-optical Kerr effect in liquids / A. D. Buckingham, R. E. Raab // *Journal of the Chemical Society (Resumed)*. – 1957. – P. 2341-2351.
- [101] Myers S. A. Kerr effect in CS₂, C₆H₆, and CCl₄ / S. A. Myers, E. J. Robinson // *The Journal of Chemical Physics*. – 1973. – V. 58. – №. 8. – P. 3526-3527.
- [102] Liu A. C. Measurement of the dc Kerr and electrostrictive phase modulation in silica / A. C. Liu, M. J. F. Digonnet, and G. S. Kino // *Journal of the Optical Society of America B*. – 2001. – V. 18. – №. 2. – P. 187-194.
- [103] Coles H. J. Laser-induced birefringence in pure liquids / H. J. Coles and B. R. Jennings // *Philosophical Magazine*. – 1975. – V. 32. – №. 5. – P. 1051-1061.
- [104] Harrison N. J. Laser-Induced Kerr Constants for Pure Liquids / N. J. Harrison and B. R. Jennings // *Journal of Physical and Chemical Reference Data*. – 1992. – V. 21. – №. 1. – P. 157-163.
- [105] Etchepare J. Third-order electronic susceptibilities of liquids measured by femtosecond kinetics of optical Kerr effect / J. Etchepare, G. Grillon, I. Thomazeau, A. Migus, A. Antonetti // *Journal of the Optical Society of America B*. – 1985. – V. 2. – №. 4. – P. 649-653.

- [106] McMorrow D. Femtosecond optical Kerr studies on the origin of the nonlinear responses in simple liquids / D. McMorrow, W.T. Lotshaw, and G. A. Kenney-Wallace // *IEEE Journal of Quantum Electronics*. – 1988. – V. 24. – №. 2. – P. 443-454.
- [107] Hattori T. Ultrafast optical Kerr dynamics studied with incoherent light / T. Hattori and T. Kobayashi // *The Journal of chemical physics*. – 1991. – V. 94. – №. 5. – P. 3332-3346.
- [108] Hoffmann M. C. Terahertz kerr effect / M. C. Hoffmann, N. C. Brandt, H. Y. Hwang, K.-L. Yeh, and K. A. Nelson // *Applied Physics Letters*. – 2009. – V. 95. – №. 23. – P. 231105.
- [109] Fleischer S. Molecular orientation and alignment by intense single-cycle THz pulses / S. Fleischer, Y. Zhou, R. W. Field, and K. A. Nelson // *Physical Review Letters*. – 2011. – V. 107. – №. 16. – P. 163603.
- [110] Sajadi M. Terahertz-field-induced optical birefringence in common window and substrate materials / M. Sajadi, M. Wolf, and T. Kampfrath // *Optics Express*. – 2015. – V. 23. – №. 22. – P. 28985-28992.
- [111] Sajadi M. Transient birefringence of liquids induced by terahertz electric-field torque on permanent molecular dipoles / M. Sajadi, M. Wolf, and T. Kampfrath // *Nature communications*. – 2017. – V. 8. – №. 1. – P. 14963.
- [112] Zhang M. Terahertz kerr effect of liquids / M. Zhang, W. Xiao, C. Zhang, L. Zhang // *Sensors*. – 2022. – V. 22. – №. 23. – P. 9424.
- [113] Hirori H. Extraordinary carrier multiplication gated by a picosecond electric field pulse / H. Hirori, K. Shinokita, M. Shirai, S. Tani, Y. Kadoya, K. Tanaka // *Nature communications*. – 2011. – V. 2. – №. 1. – P. 594.
- [114] Pein B. C. Terahertz-driven luminescence and colossal stark effect in CdSe–CdS colloidal quantum dots / B.C. Pein, W. Chang, H.Y. Hwang, et al. // *Nano Letters*. – 2017. – V. 17. – №. 9. – P. 5375-5380.
- [115] Shi J. A room-temperature polarization-sensitive CMOS terahertz camera based on quantum-dot-enhanced terahertz-to-visible photon upconversion / J. Shi, D. Yoo, F. Vidal-Codina, et al. // *Nature nanotechnology*. – 2022. – V. 17. – №. 12. – P. 1288-1293.

- [116] Wade C. G. Real-time near-field terahertz imaging with atomic optical fluorescence / C. G. Wade, N. Šibalić, N. R. De Melo, J. M. Kondo, C. S. Adams, K. J. Weatherill // Nature Photonics. – 2017. – V. 11. – №. 1. – P. 40-43.
- [117] Oladyshkin I. V. Optical emission of graphene and electron-hole pair production induced by a strong terahertz field / I. V. Oladyshkin, S. B. Bodrov, Yu. A. Sergeev, A. I. Korytin, M. D. Tokman, and A. N. Stepanov // Physical Review B. – 2017. – V. 96. – №. 15. – P. 155401.
- [118] Wu Q. 7 terahertz broadband GaP electro-optic sensor/ Q. Wu and X.-C. Zhang // Applied Physics Letters. – 1997. – V. 70. – №. 14. – P. 1784-1786.
- [119] Hirori H. Single-cycle terahertz pulses with amplitudes exceeding 1 MV/cm generated by optical rectification in LiNbO₃ / H. Hirori, F. Blanchard, K. Tanaka // Applied Physics Letters. – 2011. – V. 98. – №. 9. – P. 091106.
- [120] Vodopyanov K. L. Optical generation of narrow-band terahertz packets in periodically-inverted electro-optic crystals: conversion efficiency and optimal laser pulse format / K. L. Vodopyanov // Optics Express. – 2006. – V. 14. – №. 6. – P. 2263-2276.
- [121] Nahata A. A wideband coherent terahertz spectroscopy system using optical rectification and electro-optic sampling / A. Nahata, A. S. Weling, T. F. Heinz // Applied Physics Letters. – 1996. – V. 69. – №. 16. – P. 2321-2323.
- [122] Faure J. Modelling laser-based table-top THz sources: Optical rectification, propagation and electro-optic sampling / J. Faure, J. van Tilborg, R. A. Kaindl, and W. P. Leemans // Optical and Quantum Electronics. – 2004. – V. 36. – P. 681-697.
- [123] Bakunov M. I. Phase-matched generation of a terahertz surface wave by a subluminescent optical strip/ M. I. Bakunov, A. V. Maslov, and S. B. Bodrov // Journal of Applied Physics. – 2005. – V. 98. – №. 3. – P. 033101.
- [124] Bakunov M. I. Cherenkov radiation of terahertz surface plasmon polaritons from a superluminal optical spot / M. I. Bakunov, A. V. Maslov, and S. B. Bodrov // Physical Review B. – 2005. – V. 72. – №. 19. – P. 195336.
- [125] Bakunov M. I. Two-dimensional theory of Cherenkov radiation from short laser pulses in a magnetized plasma / M. I. Bakunov, S. B. Bodrov, A. V. Maslov, and A. M. Sergeev // Physical Review E. – 2004. – V. 70. – №. 1. – P. 016401.

- [126] Xu L. Terahertz beam generation by femtosecond optical pulses in electro-optic materials / L. Xu, X.-C. Zhang, and D. H. Auston // *Applied Physics Letters*. – 1992. – V. 61. – №. 15. – P. 1784-1786.
- [127] Zinov'ev N. N. Terahertz radiation from a nonlinear slab traversed by an optical pulse / N. N. Zinov'ev, A. S. Nikoghosyan, and J. M. Chamberlain // *Physical Review Letters*. – 2007. – V. 98. – №. 4. – P. 044801.
- [128] Ginzburg V. L. Transition Radiation and Transition Scattering Hilger / V. L. Ginzburg, V. N. Tsytovich // New York. – 1990.
- [129] Stoyanov N. S. Direct visualization of a polariton resonator in the THz regime / N. S. Stoyanov, T. Feurer, D. W. Ward, E. R. Statz, and K. A. Nelson // *Optics Express*. – 2004. – V. 12. – №. 11. – P. 2387-2396.
- [130] Kim H. Ionizing terahertz waves with 260 MV/cm from scalable optical rectification/ H. Kim, C. Kang, D. Jang, Y. Roh, S. H. Lee, J. W. Lee, J. H. Sung, S. K. Lee and K-Y. Kim // *Light: Science & Applications*. – 2024. – V. 13. – №. 1. – P. 118.
- [131] Hu B. B. Free-space radiation from electro-optic crystals / B. B. Hu, X.-C. Zhang, D. H. Auston, and P. R. Smith // *Applied Physics Letters*. – 1990. – V. 56. – №. 6. – P. 506-508.
- [132] Moore W. J. Infrared dielectric constant of gallium arsenide / W. J. Moore and R. T. Holm // *Journal of Applied Physics*. – 1996. – V. 80. – №. 12. – P. 6939-6942.
- [133] Chen Q. Electro-optic transceivers for terahertz-wave applications / Q. Chen, M. Tani, Z. Jiang, and X.-C. Zhang // *Journal of the Optical Society of America B*. – 2001. – V. 18. – №. 6. – P. 823-831.
- [134] Gallot G. Measurements of the THz absorption and dispersion of ZnTe and their relevance to the electro-optic detection of THz radiation / G. Gallot, J. Zhang, R. W. McGowan, T.-I. Jeon, and D. Grischkowsky // *Applied Physics Letters*. – 1999. – V. 74. – №. 23. – P. 3450-3452.
- [135] Schall M. Fundamental and second-order phonon processes in CdTe and ZnTe / M. Schall, M. Walther, and P. U. Jepsen // *Physical Review B*. – 2001. – V. 64. – №. 9. – P. 094301.
- [136] E. D. Palik, *Handbook of Optical Constants of Solids*, Academic, Orlando, 1985.

- [137] Tanabe T. Tunable terahertz wave generation in the 3-to 7-THz region from GaP / T. Tanabe, K. Suto, J. Nishizawa, K. Saito, and T. Kimura // *Applied Physics Letters*. – 2003. – V. 83. – №. 2. – P. 237-239.
- [138] Yan W. Terahertz electric field in a three-layer system produced by parallel dipoles with a Gaussian spatial profile / W. Yan, Y.-P. Yang, H. Chen, and L. Wang // *Physical Review B*. – 2007. – V. 75. – №. 8. – P. 085323.
- [139] Lecaque R. THz near-field optical imaging by a local source / R. Lecaque, S. Gréssillon, N. Barbey, R. Peretti, J.-C. Rivoal, and C. Boccara // *Optics communications*. – 2006. – V. 262. – №. 1. – P. 125-128.
- [140] Wynne K. Superluminal terahertz pulses / K. Wynne and D. A. Jaroszynski // *Optics Letters*. – 1999. – V. 24. – №. 1. – P. 25-27.
- [141] Lecaque R. THz emission Microscopy with sub-wavelength broadband source / R. Lecaque, S. Gréssillon, and C. Boccara // *Optics Express*. – 2008. – V. 16. – №. 7. – P. 4731-4738.
- [142] Hebling J. Derivation of the pulse front tilt caused by angular dispersion / J. Hebling // *Optical and Quantum Electronics*. – 1996. – V. 28. – P. 1759-1763.
- [143] Wang L. Full 3D+ 1 modeling of tilted-pulse-front setups for single-cycle terahertz generation / L. Wang, T. Kroh, N. H. Matlis, and F. Kärtner // *Journal of the Optical Society of America B*. – 2020. – T. 37. – №. 4. – C. 1000-1007.
- [144] Fülöp J. A. Towards generation of mJ-level ultrashort THz pulses by optical rectification / J. A. Fülöp, L. Pálfalvi, M. C. Hoffmann, and J. Hebling // *Optics Express*. – 2011. – V. 19. – №. 16. – P. 15090-15097.
- [145] Pálfalvi L. Novel setups for extremely high power single-cycle terahertz pulse generation by optical rectification / L. Pálfalvi, J. A. Fülöp, G. Almási, and J. Hebling // *Applied Physics Letters*. – 2008. – V. 92. – №. 17. – P. 171107.
- [146] DeSalvo R. Infrared to ultraviolet measurements of two-photon absorption and n_2 in wide bandgap solids / R. DeSalvo, A.A. Said, D.J. Hagan, E.W. Van Stryland, M. Sheik-Bahae // *IEEE Journal of Quantum Electronics*. – 2002. – V. 32. – №. 8. – P. 1324-1333.

- [147] Fülöp J. A. Generation of sub-mJ terahertz pulses by optical rectification / J.A. Fülöp, L. Pálfalvi, S. Klingebiel, G. Almási, F. Krausz, S. Karsch, J. Hebling // *Optics Letters*. – 2012. – V. 37. – №. 4. – P. 557-559.
- [148] Grischkowsky D. An ultrafast optoelectronic THz beam system: applications to time-domain spectroscopy / D. Grischkowsky // *Optics and Photonics News*. – 1992. – V. 3. – №. 5. – P. 21-28.
- [149] Benabdelghani I. Three-photon and four-photon absorption in lithium niobate measured by the Z-scan technique / I. Benabdelghani, G. Tóth, G. Krizsán et al. // *Optics Express*. – 2024. – V. 32. – №. 5. – P. 7030-7043.
- [150] Boyd R. W. *Nonlinear Optics*/ R. W. Boyd // Academic, San Diego. – 2003.
- [151] Stepanov A. G. Spectral modification of femtosecond laser pulses in the process of highly efficient generation of terahertz radiation via optical rectification / A. G. Stepanov, A. A. Melnikov, V. O. Kompanets, and S. V. Chekalin // *JETP Letters*. – 2007. – V. 85. – P. 227-230.
- [152] Yeh K. L. Generation of 10 μ J ultrashort terahertz pulses by optical rectification / K.-L. Yeh, M. C. Hoffmann, J. Hebling, and K. A. Nelson // *Applied Physics Letters*. – 2007. – V. 90. – №. 17. – P. 171121.
- [153] Huang W. R. Highly efficient terahertz pulse generation by optical rectification in stoichiometric and cryo-cooled congruent lithium niobate / W.R. Huang, S.W. Huang, E. Granados, K. Ravi, K.H. Hong, L.E. Zapata, F.X. Kärtner // *Journal of modern optics*. – 2015. – V. 62. – №. 18. – P. 1486-1493.
- [154] Wu X. Terahertz generation in lithium niobate driven by Ti:sapphire laser pulses and its limitations // *Optics letters*. – 2014. – V. 39. – №. 18. – P. 5403-5406.
- [155] Wood W. M. Measurement of femtosecond ionization dynamics of atmospheric density gases by spectral blueshifting / W. M. Wood, C. W. Siders, and M. C. Downer // *Physical Review Letters*. – 1991. – V. 67. – №. 25. – P. 3523.
- [156] Meng Q. Damage threshold of lithium niobate crystal under single and multiple femtosecond laser pulses: theoretical and experimental study / Q. Meng, B. Zhang, S. Zhong, and L. Zhu // *Applied Physics A*. – 2016. – V. 122. – P. 1-6.

- [157] Su Z. Analysis on the damage threshold of MgO: LiNbO₃ crystals under multiple femtosecond laser pulses / Z. Su, Q. Meng, and B. Zhang // *Optical Materials*. – 2016. – V. 60. – P. 443-449.
- [158] Schiek R. Absolute measurement of the quadratic nonlinear susceptibility of lithium niobate in waveguides / R. Schiek, T. Pertsch // *Optical Materials Express*. – 2012. – V. 2. – №. 2. – P. 126-139.
- [159] Riefer A. Linear and nonlinear optical response of LiNbO₃ calculated from first principles / A. Riefer, S. Sanna, A. V. Gavrilenko, and W. G. Schmidt // *IEEE transactions on ultrasonics, ferroelectrics, and frequency control*. – 2012. – V. 59. – №. 9. – P. 1929-1933.
- [160] Schiek R. Absolute measurement of the quadratic nonlinear susceptibility of lithium niobate in waveguides / R. Schiek and T. Pertsch // *Optical Materials Express*. – 2012. – V. 2. – №. 2. – P. 126-139.
- [161] Tsarev M. V. High-average-power, intense THz pulses from a LiNbO₃ slab with silicon output coupler / M.V. Tsarev, D. Ehberger, P. Baum // *Applied Physics B*. – 2016. – V. 122. – P. 1-5.
- [162] Pacewicz A. Reconstruction and modeling of the complex refractive index of nonlinear glasses from terahertz to optical frequencies / A Pacewicz, J Cimek, B Salski, M Walczakowski, R Buczynski // *Optics Express*. – 2021. – V. 29. – №. 16. – P. 26191-26209.
- [163] Shibuya T. Widely tunable monochromatic Cherenkov phase-matched terahertz wave generation from bulk lithium niobate / T. Shibuya, K. Suizu, K. Kawase // *Applied physics express*. – 2010. – V. 3. – №. 8. – P. 082201.
- [164] Lozhkarev V. V. Compact 0.56 petawatt laser system based on optical parametric chirped pulse amplification in KDP crystals / V. V. Lozhkarev, G. I. Freidman, V. N. Ginzburg, et al. // *Laser Physics Letters*. – 2007. – V. 4. – №. 6. – P. 421.
- [165] Mounaix P. Characterization of non-linear Potassium crystals in the Terahertz frequency domain / P. Mounaix, L. Sarger, J.P. Caumes, E. Freysz // *Optics communications*. – 2004. – V. 242. – №. 4-6. – P. 631-639.

- [166] Boyd G. D. Microwave nonlinear susceptibilities due to electronic and ionic anharmonicities in acentric crystals / G.D. Boyd, T.J. Bridges, M.A. Pollack, E.H. Turner // *Physical Review Letters*. – 1971. – V. 26. – №. 7. – P. 387.
- [167] Boyd G. D. Parametric interaction of focused Gaussian light beams / G. D. Boyd, D. A. Kleinman // *Journal of Applied Physics*. – 1968. – V. 39. – №. 8. – P. 3597-3639.
- [168] Rahma M. A., Saadon H. L., Marhoon A. F. Frequency and wavelength dependences of the electro-optic coefficients r_{63} and r_{41} in congruent KDP crystals // *Iraqi Journal of Laser*. – 2013. – V. 12. – P. 7-13.
- [169] Weber M. J. *Handbook of Optical Materials* / M. J. Weber // 1st ed. CRC Press. – 2002.
- [170] Sun Z. et al. Electro-optic coefficient measurement of a K (H1– xDx) 2PO4 crystal based on $\chi(2)$ nonlinear optical technology / Z. Sun, Z. Cui, M. Sun, Y. Yuan, Q. Li, D. Liu, and J. Zhu // *Optics Express*. – 2021. – V. 29. – №. 2. – P. 2647-2657.
- [171] Srinivas N. K. M. N. Femtosecond supercontinuum generation in a quadratic nonlinear medium (KDP) / N. K. M. N. Srinivas, S. S. Harsha, and D. N. Rao, // *Optics Express*. – 2005. – V. 13. – №. 9. – P. 3224-3229.
- [172] Ganeev R. A. Characterization of nonlinear optical parameters of KDP, LiNbO3 and BBO crystals / R. A. Ganeev, I. A. Kulagin, A. I. Ryasnyansky, R. I. Tugushev, and T. Usmanov // *Optics communications*. – 2004. – V. 229. – №. 1-6. – P. 403-412.
- [173] Nahata A. A wideband coherent terahertz spectroscopy system using optical rectification and electro-optic sampling / A. Nahata, A. S. Weling, and T. F. Heinz // *Applied Physics Letters*. – 1996. – V. 69. – №. 16. – P. 2321-2323.
- [174] Naftaly M. Methodologies for determining the dynamic ranges and signal-to-noise ratios of terahertz time-domain spectrometers / M. Naftaly and R. Dudley // *Optics Letters*. – 2009. – V. 34. – №. 8. – P. 1213-1215.
- [175] Carnio B. N. Investigation of ultra-broadband terahertz generation from sub-wavelength lithium niobate waveguides excited by few-cycle femtosecond laser pulses / Carnio B. N., Elezzabi A. Y. // *Optics Express*. – 2017. – V. 25. – №. 17. – P. 20573-20583.
- [176] Carletti L. Nonlinear THz generation through optical rectification enhanced by phonon-polaritons in lithium niobate thin films / L. Carletti, C. McDonnell, U. Arregui Leon et al. // *ACS photonics*. – 2023. – V. 10. – №. 9. – P. 3419-3425.

- [177] Veithen M. Nonlinear optical susceptibilities, Raman efficiencies, and electro-optic tensors from first-principles density functional perturbation theory / M. Veithen, X. Gonze, P. Ghosez // *Physical Review B*. – 2005. – V. 71. – №. 12. – P. 125107.
- [178] Kaminow I. P. Microwave Dielectric Properties of $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$, KH_2AsO_4 , and partially deuterated KH_2PO_4 / I. P. Kaminow // *Physical Review*. – 1965. – V. 138. – №. 5A. – P. A1539.
- [179] Naftaly M. Terahertz time-domain spectroscopy for material characterization / M. Naftaly and R. E. Miles // *Proceedings of the IEEE*. – 2007. – V. 95. – №. 8. – P. 1658-1665.
- [180] Bloembergen N. Light waves at the boundary of nonlinear media / N. Bloembergen, P.S. Pershan // *Physical review*. – 1962. – V. 128. – №. 2. – P. 606.
- [181] Lehmeier H. J. Nonresonant third order hyperpolarizability of rare gases and N_2 determined by third harmonic generation / H.J. Lehmeier, W. Leupacher, A. Penzkofer // *Optics communications*. – 1985. – V. 56. – №. 1. – P. 67-72.
- [182] Naftaly M. Terahertz time-domain spectroscopy of silicate glasses and the relationship to material properties / M. Naftaly, R.E. Miles // *Journal of Applied Physics*. – 2007. – V. 102. – №. 4. – P. 043517.
- [183] Smektala F. Non-linear optical properties of chalcogenide glasses measured by Z-scan / F Smektala, C Quemard, V Couderc, A Barthélémy // *Journal of non-crystalline solids*. – 2000. – V. 274. – №. 1-3. – P. 232-237.
- [184] Sheik-Bahae M. Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam / Sheik-Bahae, M.; Said, A.A.; Wei, T.-H.; Hagan, D.J.; van Stryland, E.W. // *IEEE journal of quantum electronics*. – 2002. – V. 26. – №. 4. – P. 760-769.
- [185] Olivier T. Nanosecond Z-scan measurements of the nonlinear refractive index of fused silica / T. Olivier, F. Billard, H. Akhouayri // *Optics Express*. – 2004. – V. 12. – №. 7. – P. 1377-1382.
- [186] Milam D. Review and assessment of measured values of the nonlinear refractive-index coefficient of fused silica / D. Milam // *Applied Optics*. – 1998. – V. 37. – №. 3. – P. 546-550.

- [187] Zaki M. R. Synthesis, thermal, structural and linear optical properties of new glasses within the TeO₂-TiO₂-WO₃ system / M.R. Zaki, D. Hamani, M. Dutreilh-Colas, J.R. Duclère, O. Masson, P. Thomas // *Journal of Non-Crystalline Solids*. – 2018. – V. 484. – P. 139-148.
- [188] Abdel-Wahab F. Optical Parameters of Both As₂S₃ and As₂Se₃ Thin Films from Ultraviolet to the Near-Infrared via Variable-Angle Spectroscopic Ellipsometer / F. Abdel-Wahab, I.M. Ashraf, F.B.M. Ahmed // *Semiconductors*. – 2020. – V. 54. – P. 1430-1438.
- [189] Almeida J. M. P. Nonlinear optical waveguides in As₂S₃-Ag₂S chalcogenide glass thin films / J.M.P. Almeida, E.C. Barbano, C.B. Arnold, L. Misoguti, C.R. Mendonça // *Optical Materials Express*. – 2016. – V. 7. – №. 1. – P. 93-99.
- [190] Bethea C. G. Electric field induced second harmonic generation in glass / C. G. Bethea // *Applied optics*. – 1975. – V. 14. – №. 10. – P. 2435-2437.
- [191] Muller D. A. The electronic structure at the atomic scale of ultrathin gate oxides / D. Muller, T. Sorsch, S. Moccio, F. H. Baumann, K. Evans-Lutterodt, and G. Timp // *Nature*. – 1999. – V. 399. – №. 6738. – P. 758-761.
- [192] Bodrov S. B. Terahertz-field-induced second optical harmonic generation from Si(111) surface / S. B. Bodrov, Yu. A. Sergeev, A. I. Korytin, and A. N. Stepanov // *Phys. Rev. B*. – 2022. – V. 105. – P. 035306.
- [193] Erley G. Silicon interband transitions observed at Si (100)– SiO₂ interfaces / G. Erley, W. Daum // *Physical Review B*. – 1998. – V. 58. – №. 4. – P. R1734.
- [194] Daum W. Optical studies of Si/SiO₂ interfaces by second-harmonic generation spectroscopy of silicon interband transitions / W. Daum // *Applied Physics A*. – 2007. – V. 87. – P. 451-460.
- [195] Dolgova T. V. DC-electric-field-induced second-harmonic interferometry of the Si (111)– SiO₂ interface in Cr– SiO₂– Si MOS capacitor / T. V. Dolgova, A. A. Fedyanin, and O. A. Aktsipetrov // *Physical Review B*. – 2003. – V. 68. – №. 7. – P. 073307.

- [196] Baranova I. M. Generation of the second harmonic and nonlinear electroreflection from the surface of a centrosymmetric semiconductor / I. M. Baranova, K.N. Evtyukhov // *Quantum Electronics*. – 1995. – V. 25. – P. 1198-1203.
- [197] Scheidt T. Ionization and shielding of interface states in native p⁺-Si/SiO₂ probed by electric field induced second harmonic generation / T. Scheidt, E. G. Rohwer, P. Neethling, H. M. von Bergmann, and H. Stafast // *Journal of Applied Physics*. – 2008. – V. 104. – №. 8. – P. 083712.
- [198] Dadap J. I. Femtosecond carrier-induced screening of dc electric-field-induced second-harmonic generation at the Si (001)–SiO₂ interface / J. I. Dadap, P. T. Wilson, M. H. Anderson, M. C. Downer, and M. ter Beek // *Optics Letters*. – 1997. – V. 22. – №. 12. – P. 901-903.
- [199] Fischetti M. V. Monte Carlo simulation of transport in technologically significant semiconductors of the diamond and zinc-blende structures. I. Homogeneous transport / M. V. Fischetti // *IEEE transactions on electron devices*. – 1991. – V. 38. – №. 3. – P. 634-649.
- [200] Ho P. P. Optical Kerr effect in liquids / P. P. Ho and R. R. Alfano // *Physical Review A*. – 1979. – V. 20. – №. 5. – P. 2170.
- [201] Shelton D. P. High accuracy Kerr effect measurement technique / D. P. Shelton // *Review of scientific instruments*. – 1993. – V. 64. – №. 4. – P. 917-931.
- [202] Jiang Z. Electro-optic sampling near zero optical transmission point / Z. Jiang, F. G. Sun, Q. Chen, and X.-C. Zhang // *Applied Physics Letters*. – 1999. – V. 74. – №. 9. – P. 1191-1193.
- [203] Zalden P. Molecular polarizability anisotropy of liquid water revealed by terahertz-induced transient orientation / P. Zalden, L. Song, X. Wu, et al. // *Nature Communications*. – 2018. – V. 9. – №. 1. – P. 2142.
- [204] Williams J. H., Aspects of the optical Kerr effect and Cotton-Mouton effect of solutions/ J. H. Williams // in *Modern Nonlinear Optics, Part 2*, edited by M. Evans and S. Kielich, John Wiley & Sons, Inc. – 1993.

- [205] Bodrov S. Terahertz induced optical birefringence in polar and nonpolar liquids / S. Bodrov, Yu. Sergeev, A. Murzanev, and A. Stepanov // The Journal of Chemical Physics. – 2017. – V. 147. – №. 8. – P. 084507.
- [206] Häberle U. Dynamic Kerr effect responses in the terahertz range / U. Häberle, G. Diezemann // The Journal of chemical physics. – 2005. – V. 122. – №. 18. – P. 184517.
- [207] Thurston G. B. The frequency dependence of the kerr effect for suspensions of rigid particles / G. B. Thurston and D. I. Bowling // Journal of Colloid and Interface Science. – 1969. – V. 30. – №. 1. – P. 34-45.
- [208] Polok K. Low frequency response of methanol/acetone mixtures: Optical Kerr effect and molecular dynamics simulations / K. Polok, A. Idrissi, and W. Gadomski // Journal of Molecular Liquids. – 2012. – V. 176. – P. 29-32.
- [209] Neelakandan M. Reorientational and intermolecular dynamics in binary liquid mixtures of hexafluorobenzene and benzene: femtosecond optical Kerr effect measurements / M. Neelakandan, D. Pant, and E. L. Quitevis // Chemical physics letters. – 1997. – V. 265. – №. 1-2. – P. 283-292.
- [210] Bodrov S. B. Terahertz generation by tilted-front laser pulses in weakly and strongly nonlinear regimes / S. B. Bodrov, A. A. Murzanev, Y. A. Sergeev, Y. A. Malkov, and A. N. Stepanov // Appl. Phys. Lett. – 2013. – V. 103. – P. 251103.
- [211] Cocker T. L. Nanoscale terahertz scanning probe microscopy / T. L. Cocker, V. Jelic, R. Hillenbrand, and F. A. Hegmann // Nature photonics. – 2021. – V. 15. – №. 8. – P. 558-569.
- [212] Blanchard F. Improving time and space resolution in electro-optic sampling for near-field terahertz imaging / F. Blanchard and K. Tanaka // Optics Letters. – 2016. – V. 41. – №. 20. – P. 4645-4648.
- [213] Chefonov O. V. Terahertz beam spot size measurements by a CCD camera / O. V. Chefonov, A. V. Ovchinnikov, M. B. Agranat, and A. N. Stepanov // Optics Letters. – 2019. – V. 44. – №. 17. – P. 4099-4102.
- [214] Dussauze M., Cardinal T. Nonlinear optical properties of glass / M. Dussauze, T. Cardinal // Springer handbook of glass. – 2019. – P. 193-225.

- [215] Wait J. R. *Electromagnetic Radiation from Cylindrical Structures* / J. R. Wait // Pergamon Press, New York. – 1959.
- [216] Krall N. A. *Principles of Plasma Physics* / N. A. Krall and A.W. Trivelpiece // McGraw-Hill, New York. – 1973.
- [217] N. A. Dyatko, I. V. Kochetov, A. P. Napartovich, and A. G. Sukharev, <http://www.lxcat.laplace.univ-tlse.fr/software/EEDF/>.
- [218] Kossyi I. A. Kinetic scheme of the non-equilibrium discharge in nitrogen-oxygen mixtures / I.A. Kossyi, A.Yu. Kostinsky, A.A. Matveyev, and V. P. Silakov // *Plasma Sources Science and Technology*. – 1992. – V. 1. – №. 3. – P. 207.
- [219] Биберман Л.М. , Воробьев В.С., Якубов И.Т. Кинетика неравновесной низкотемпературной плазмы / . 1982. 376 с.
- [220] Florescu-Mitchell A. I. Dissociative recombination / A.I. Florescu-Mitchell, J.B.A. Mitchell // *Physics reports*. – 2006. – Т. 430. – №. 5-6. – С. 277-374.
- [221] Aleksandrov N. L. Mechanism of ultra-fast heating in a non-equilibrium weakly ionized air discharge plasma in high electric fields / N. L. Aleksandrov, S. V. Kindysheva, M. M. Nudnova, and A. Yu. Starikovskiy // *Journal of Physics D: Applied Physics*. – 2010. – V. 43. – №. 25. – P. 255201.
- [222] Zhou B. Revival of femtosecond laser plasma filaments in air by a nanosecond laser / B. Zhou, S. Akturk, B. Prade, Y.-B. Andre, A. Houard, Y. Liu, M. Franco, C. D'Amico, E. Salmon, Z.-Q. Hao, N. Lascoux, and A. Mysyrowicz // *Optics Express*. – 2009. – V. 17. – №. 14. – P. 11450-11456.
- [223] Zhu J. Long lifetime plasma channel in air generated by multiple femtosecond laser pulses and an external electrical field / J. Zhu, Z. Ji, Y. Deng, J. Liu, R. Li, and Z. Xu // *Optics Express*. – 2006. – V. 14. – №. 11. – P. 4915-4922.
- [224] Liu Y. Amplification of transition-Cherenkov terahertz radiation of femtosecond filament in air / Y. Liu, A. Houard, B. Prade, A.Mysyrowicz, A. Diaw, and V. T. Tikhonchuk // *Applied Physics Letters*. – 2008. – V. 93. – №. 5. – P. 051108.
- [225] Li S. Y. Influence of group-velocity-dispersion effects on the propagation of femtosecond laser pulses in air at different pressures / S.Y. Li, F.M. Guo, Y. Song,

A.M. Chen, Y.J. Yang, M.X. Jin // *Physical review A*. – 2014. – V. 89. – №. 2. – P. 023809.

- [226] Vujičić N. Low-density plasma channels generated by femtosecond pulses / N. Vujicic, H. Skenderovic, T. Ban, D. Aumiler, and G. Pichler // *Applied Physics B*. – 2006. – V. 82. – P. 377-382.

Список публикаций по диссертации

- A1. Bakunov M. I. Theory of terahertz generation in a slab of electro-optic material using an ultrashort laser pulse focused to a line / M. I. Bakunov, S. B. Bodrov, A. V. Maslov, M. Hangyo // *Phys. Rev. B.* – 2007. – V.76. – P. 085346.
- A2. Bakunov M. I. Fresnel formulas for the forced electromagnetic pulses and their application for optical-to-terahertz conversion in nonlinear crystals / M. I. Bakunov, A. V. Maslov, S. B. Bodrov // *Phys. Rev. Lett.* – 2007. – V. 99. – P. 203904.
- A3. Bakunov M. I. Terahertz emission from a laser pulse with tilted front: Phase-matching versus Cherenkov effect / M. I. Bakunov, S. B. Bodrov, M. V. Tsarev // *J. Appl. Phys.* – 2008. – V. 104. – P. 073105.
- A4. Bodrov S. B. Efficient Cherenkov emission of broadband terahertz radiation from an ultrashort laser pulse in a sandwich structure with nonlinear core / S. B. Bodrov, M. I. Bakunov, M. Hangyo // *J. Appl. Phys.* – 2008. – V. 104. – P. 093105.
- A5. Bodrov S. B. Highly efficient optical-to-terahertz conversion in a sandwich structure with LiNbO₃ core / S. B. Bodrov, A. N. Stepanov, M. I. Bakunov, B. V. Shishkin, I. E. Ilyakov, and R. A. Akhmedzhanov // *Optics Express.* – 2009. – V. 17. – P. 1871-1879.
- A6. Bakunov M. I. Strongly subluminal regime of optical-to-terahertz conversion in GaP / M. I. Bakunov, M. V. Tsarev, S. B. Bodrov, M. Tani // *J. Appl. Phys.* – 2009. – V. 105. – P. 083111.
- A7. Bakunov M. I. Si–LiNbO₃–air–metal structure for concentrated terahertz emission from ultrashort laser pulses / M. I. Bakunov, S. B. Bodrov // *Applied Physics B.* – 2010. – V. 98. – P. 1–4.
- A8. Bodrov S. Plasma filament investigation by transverse optical interferometry and terahertz scattering / S. Bodrov, V. Bukin, M. Tsarev, A. Murzanev, S. Garnov, N. Aleksandrov, A. Stepanov // *Optics Express.* – 2011. – V. 19. – P. 6829-6835.
- A9. Bakunov M. I. Terahertz generation with tilted-front laser pulses: dynamic theory for low-absorbing crystals / M. I. Bakunov, S. B. Bodrov, E. A. Mashkovich // *J. Opt. Soc. Am. B.* – 2011. – V. 28. – P. 1724-1734.
- A10. Bodrov S. B. Efficient terahertz generation by optical rectification in Si-LiNbO₃-air-metal sandwich structure with variable air gap / S. B. Bodrov, I. E. Ilyakov, B. V. Shishkin, and A. N. Stepanov // *Appl. Phys. Lett.* – 2012. – V. 100. – P. 201114.
- A11. Bodrov S. Effect of an electric field on air filament decay at the trail of an intense femtosecond laser pulse / S. Bodrov, N. Aleksandrov, M. Tsarev, A. Murzanev, I. Kochetov, and A. Stepanov // *Phys. Rev. E.* – 2013. – V. 87. – P. 053101.
- A12. Bodrov S. B. Terahertz generation by tilted-front laser pulses in weakly and strongly nonlinear regimes / S. B. Bodrov, A. A. Murzanev, Y. A. Sergeev, Y. A. Malkov, and A. N. Stepanov // *Appl. Phys. Lett.* – 2013. – V. 103. – P. 251103.

- A13. Bakunov M. I. Terahertz generation with tilted-front laser pulses in a contact-grating scheme / M. I. Bakunov and S. B. Bodrov // *J. Opt. Soc. Am. B.* – 2014. – V. 31. – P. 2549-2557.
- A14. Aleksandrov N. L. Decay of femtosecond laser-induced plasma filaments in air, nitrogen, and argon for atmospheric and subatmospheric pressures / N. L. Aleksandrov, S. B. Bodrov, M. V. Tsarev, A. A. Murzanev, Yu. A. Sergeev, Yu. A. Malkov, and A. N. Stepanov // *Physical Review E.* – 2016. – V. 94. – P. 013204.
- A15. Bodrov S. Terahertz induced optical birefringence in polar and nonpolar liquids / S. Bodrov, Yu. Sergeev, A. Murzanev, and A. Stepanov // *J. Chem. Phys.* – 2017. – V. 147. – P. 084507.
- A16. Bodrov S. B. Generalized analysis of terahertz generation by tilted-pulse-front excitation in a LiNbO₃ prism / S. B. Bodrov, A. N. Stepanov, and M. I. Bakunov // *Optics Express.* – 2019. – V. 27. – P. 2396-2410.
- A17. Bodrov S. B. Highly efficient Cherenkov-type terahertz generation by 2 μ m wavelength ultrashort laser pulses in a prism-coupled LiNbO₃ layer / S. B. Bodrov, I. E. Ilyakov, B. V. Shishkin, and M. I. Bakunov // *Optics Express.* – 2019. – V. 27. – P. 36059-36065.
- A18. Bodrov S. B. Terahertz pulse induced femtosecond optical second harmonic generation in transparent media with cubic nonlinearity / S. B. Bodrov, Yu. A. Sergeev, A. I. Korytin, E. A. Burova, and A. N. Stepanov // *J. Opt. Soc. Am. B.* – 2020. – V. 37. – P. 789-796.
- A19. Bakunov M. I. Full 3D+1 modeling of tilted-pulse-front setups for single-cycle terahertz generation: comment / M. I. Bakunov and S. B. Bodrov // *J. Opt. Soc. Am. B.* – 2021. – V. 38. – P. 2587-2589.
- A20. Bodrov S. Terahertz-field-induced optical luminescence from graphene for imaging and near-field visualization of a terahertz field / S. Bodrov, A. Murzanev, A. Korytin, and A. Stepanov // *Opt. Lett.* – 2021. – V. 46. – P. 5946-5949.
- A21. Bodrov S. B. Terahertz-field-induced second harmonic generation for nonlinear optical detection of interfaces buried in transparent materials / S. B. Bodrov, A. N. Stepanov, E. A. Burova, Yu. A. Sergeev, A. I. Korytin, and M. I. Bakunov // *Appl. Phys. Lett.* – 2021. – V. 119. – P. 221109.
- A22. Bodrov S. Cubic nonlinearity of tellurite and chalcogenide glasses: terahertz-field-induced second harmonic generation vs. optical Kerr effect / S. Bodrov, Y. Sergeev, E. Burova, A. Korytin, A. Murzanev, A. Romashkin and A. Stepanov // *Appl. Sci.* – 2022. – V. 12. – P. 11608.
- A23. Bodrov S. B. Scalable optical-to-terahertz converter with a prism-coupled plane-parallel lithium niobate plate / S. B. Bodrov, N. A. Abramovsky, E. A. Burova, A. N. Stepanov, and M. I. Bakunov // *Opt. Express.* – 2022. – V. 30. – P. 35978-35987.
- A24. Bodrov S. B. Terahertz-field-induced second optical harmonic generation from Si(111) surface / S. B. Bodrov, Yu. A. Sergeev, A. I. Korytin, and A. N. Stepanov // *Phys. Rev. B.* – 2022. – V. 105. – P. 035306.

- A25. Oladyshkin I. V. Polarized light emission from graphene induced by terahertz pulses / I. V. Oladyshkin, S. B. Bodrov, A. V. Korzhimanov, A. A. Murzanev, Yu. A. Sergeev, A. I. Korytin, M. D. Tokman, and A. N. Stepanov // *Phys. Rev. B.* – 2022. – V. 106. – P. 205407.
- A26. Abramovsky N. A. Generation of sub-MV/cm terahertz fields with large-size Cherenkov-type optical-to-terahertz converters / N. A. Abramovsky, S. B. Bodrov, A. I. Korytin, A. N. Stepanov, and M. I. Bakunov // *Opt. Lett.* – 2023. – V. 48. – P. 3203-3206.
- A27. Abramovsky N. A. Increasing bandwidth of Cherenkov-type terahertz emitters by free carrier generation / N. A. Abramovsky, S. B. Bodrov, E. S. Efimenko, Y. Avetisyan, and M. I. Bakunov // *Opt. Lett.* – 2023. – V. 48. – P. 4921-4924.
- A28. Bodrov S. B. Cherenkov-type terahertz generation by optical rectification in KD_2PO_4 (DKDP) crystal / S. B. Bodrov, N. A. Abramovsky, G. S. Paramonov, S. N. Belyaev, A. P. Prokhorov, A. N. Stepanov, and M. I. Bakunov // *J. Appl. Phys.* – 2023. – V. 134. – P. 213102.