

Модификация спектра фемтосекундного лазерного импульса при высокоэффективной генерации терагерцового излучения методом оптического выпрямления

А. Г. Степанов¹⁾, А. А. Мельников, В. О. Компанец, С. В. Чекалин

Институт спектроскопии РАН, 142190 Троицк, Московская обл., Россия

Поступила в редакцию 19 декабря 2006 г.

После переработки 5 февраля 2007 г.

Экспериментально наблюдались сужение и “красный” сдвиг спектра фемтосекундного лазерного импульса за счет высокоэффективного преобразования в терагерцовое излучение при оптическом выпрямлении в кристалле LiNbO_3 . Наблюдавшиеся изменения хорошо согласуются с описанием возникновения терагерцового излучения как процесса генерации разностных частот и позволяют определить энергию терагерцовых импульсов. Получен коэффициент преобразования по числу фотонов более 50%.

PACS: 42.65.Re, 42.65.—k

Электромагнитное излучение терагерцового диапазона находит широкое применение в различных областях физики, химии, биологии, поэтому развитие методов его генерации и детектирования является очень актуальной задачей. Особый интерес представляет развитие методов нелинейной спектроскопии и спектроскопии со сверхвысоким временным разрешением в этой области частот. Для этого требуются источники терагерцовых импульсов, обеспечивающие высокую энергию и достаточно короткую длительность. На сегодняшний день наиболее высокоэнергетичные терагерцовые импульсы пикосекундной длительности получают с помощью лазеров на свободных электронах (18 мкДж, 10 пс, [1]), однако такие установки очень дороги и имеют большие размеры, что существенно затрудняет их применение. Альтернативный подход, основанный на использовании гораздо более компактных фемтосекундных лазеров, позволяет к тому же получать более короткие импульсы. Этот подход включает два способа получения терагерцовых импульсов.

Первый основан на возникновении быстро меняющегося электрического тока при поглощении лазерного импульса в полупроводнике. При этом источником терагерцового излучения являются ускоренные электроны. Во втором методе терагерцовое излучение испускается благодаря переменной поляризации, возникающей в нелинейном кристалле при прохождении лазерных импульсов. По сложившейся традиции второй метод называют “оптическим выпрямлением”, хотя впервые этот термин появился при на-

блюдении электрического поля, возникающего при прохождении интенсивного лазерного излучения через нелинейную среду [2], и именно в таком смысле термин “оптическое выпрямление” используется в ряде учебников по нелинейной оптике. В данной статье, следуя общепринятой современной терминологии, мы используем словосочетание “оптическое выпрямление” для обозначения метода генерации терагерцового излучения, основанного на возникновении переменной поляризации, возникающей при прохождении ультракороткого лазерного импульса через нелинейный кристалл.

В настоящее время максимальное отношение энергий терагерцового и лазерного импульсов для обоих методов лежит в области 10^{-4} – 10^{-3} . Существенным недостатком первого метода, основанного на фотопроводимости, является практически полное поглощение фемтосекундного лазерного импульса в полупроводнике, что неизбежно ведет к нагреву и последующему разрушению материала. В случае оптического выпрямления основная часть лазерного импульса проходит через нелинейный кристалл, не поглощаясь. Поэтому такой режим является более щадящим для материала преобразователя. Кроме того, в этом случае прошедшее через нелинейный кристалл лазерное излучение может быть использовано повторно (например, для усиления полученных терагерцовых импульсов). И, наконец, при оптическом выпрямлении можно зарегистрировать изменения в спектре фемтосекундного импульса, возникающие в процессе генерации терагерцового излучения, теоретически предсказанные для оптического выпрямления [3, 4] и генерации коге-

¹⁾e-mail: stepanov@isan.troitsk.ru

рентных фонон-поляритонов [5]. Экспериментальные данные по модификации спектра ультракороткого лазерного импульса при таких процессах до сих пор не опубликованы, что связано, по-видимому, с низкой эффективностью преобразования ($< 10^{-4}$) в подавляющем большинстве работ по генерации терагерцового излучения методом оптического выпрямления.

В настоящей работе благодаря существенному увеличению эффективности преобразования энергии фемтосекундного лазерного импульса в терагерцовое излучение при оптическом выпрямлении импульса с наклонным фронтом в кристалле LiNbO_3 [6–8] наблюдались “красный” сдвиг и сужение спектра. Предложен простой метод оценки полной энергии терагерцового излучения, основанный на анализе этих изменений, не требующий детекторов, калиброванных в терагерцовом диапазоне.

Схема эксперимента приведена на рис.1. Импульсы длительностью 45 фс с центральной длиной вол-

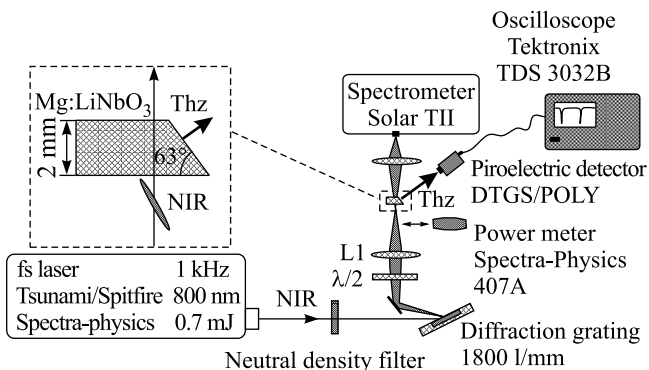


Рис.1. Схема экспериментальной установки

ны 800 нм генерировались и усиливались лазерами Tsunami и Spitfire (фирма Spectra Physics), соответственно. На выходе из усилителя пучок лазерного излучения ослаблялся с помощью нейтрального фильтра до 30 мкДж в импульсе. Для создания фемтосекундных импульсов с наклонным фронтом излучение направлялось на дифракционную решетку (1800 штрихов на мм). После решетки плоскость поляризации лазерного излучения поворачивалась на 90° пластинкой $\lambda/2$ так, чтобы она была параллельна оптической оси нелинейного кристалла. С помощью сферического зеркала (на схеме эксперимента для упрощения вместо сферического зеркала изображена линза L1) область пучка вблизи решетки отображалась с двукратным уменьшением в кристалл. Преобразование в терагерцовое излучение осуществлялось в стехиометрическом кристалле ниобата лития с при-

месью MgO (молярная концентрация 1%), вырезанном в форме, показанной на вставке рис.1. В области генерации терагерцового излучения сечение лазерного пучка имело форму эллипса с вертикальным размером 1.2 мм и горизонтальным 0.9 мм (размер по полувысоте). Угол наклона фронта импульса выбирался так, чтобы обеспечить равенство фазовой скорости терагерцового излучения и проекции скорости лазерного импульса на направление распространения терагерцового излучения в кристалле. Небольшая вариация угла наклона позволяет плавно перестраивать спектр терагерцового излучения в области 0.5–5 ТГц [8]. В настоящих экспериментах угол наклона настраивался так, чтобы обеспечить максимальную мощность терагерцового излучения, контролируруемую пьезоэлектрическим (DTGS) детектором. Следует подчеркнуть, что детектор не был калиброван и измерял мощность в относительных единицах. Более подробно детали метода генерации терагерцового излучения при помощи фемтосекундных импульсов с наклонным фронтом описаны в работах [6–9].

Спектр лазерного излучения, прошедшего через кристалл, измерялся двумя способами: в первом использовался спектрометр, на щель которого с помощью линзы отображалась область генерации терагерцового излучения, а во втором прошедший лазерный пучок фокусировался прямо на ПЗС-линейку, причем дисперсия обеспечивалась той же дифракционной решеткой, которая применялась для получения наклонного фронта импульса. Оба способа дали одинаковый результат. В отдельной серии экспериментов были измерены соответствующие спектры в случае нормального фронта импульса. При этом интенсивность внутри кристалла поддерживалась такой же, как и при наклонном фронте.

На рис.2 приведены спектры входящих в нелинейный кристалл и выходящих из него лазерных импульсов с наклонным фронтом, а на рис.3 – те же данные для импульсов с нормальным фронтом. На рис.2 отчетливо видны “красный” сдвиг и сужение спектра, которые практически отсутствуют в эксперименте с использованием фемтосекундного импульса с нормальным фронтом (рис.3). Сравнение рис.2 и 3 позволяет заключить, что наблюдаемая в эксперименте модификация спектра связана исключительно с эффективной генерацией терагерцового излучения и, следовательно, должна содержать в себе информацию о параметрах этого излучения. Отметим, что сдвиг спектра лазерного импульса в красную область при генерации терагерцового излучения и когерентных фононов предсказывался в работах [4, 5], тогда как сужение спектра ранее не рассматривалось.

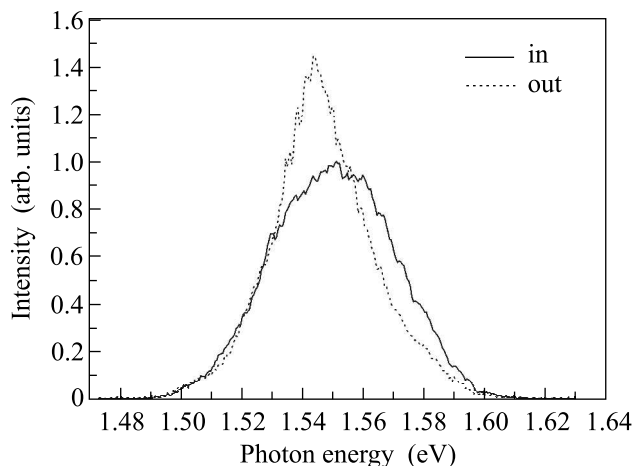


Рис.2. Спектры лазерных импульсов с наклонным фронтом, падающих на кристалл (сплошная линия) и выходящих из кристалла (пунктирная линия)

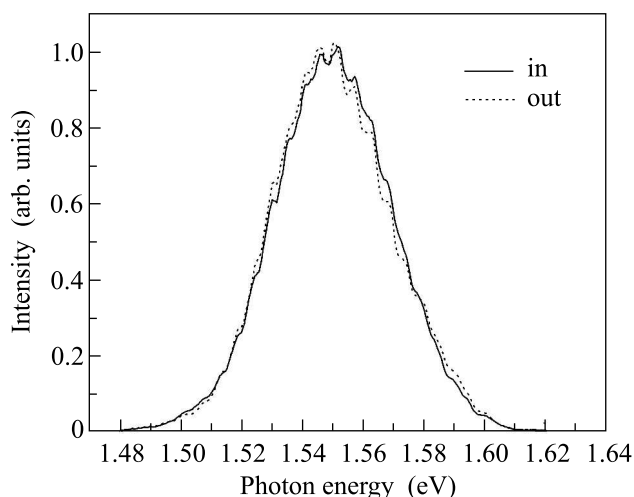


Рис.3. Спектры лазерного импульса с нормальным фронтом на входе (сплошная линия) и на выходе (пунктирная линия) из кристалла

Для интерпретации экспериментальных данных рассмотрим оптическое выпрямление как параметрический процесс [10] генерации разностной частоты [11]. Очевидно, что из широкого спектра фемтосекундного лазерного импульса можно выделить большое число пар частотных компонент, так что смещение компонент отдельной пары будет приводить к генерации излучения с частотами от нуля до Ω_m (Ω_m определяется шириной спектра лазерного импульса). В нашем случае условие фазового синхронизма, а также уменьшение эффективности генерации в области низких частот пропорционально ω^2 несколько сужают спектр терагерцового излучения, тем не менее оставляя его достаточно широким (~ 1 ТГц) [9]. Поэтому для простоты рассмотрим случай, когда на нелинейный кристалл падают только два фотона с час-

тотами ω_1 и ω_2 ($\omega_1 > \omega_2$) (рис.4). В результате параметрического взаимодействия в нелинейной среде

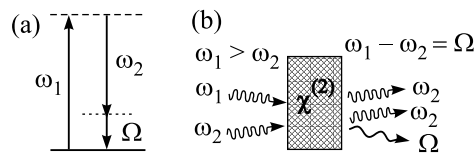


Рис.4. Схематическое изображение процесса генерации разностной частоты: (а) – энергетические уровни, (б) – участвующие в процессе фотоны

фотон с частотой ω_1 распадается на два фотона с частотами ω_2 и Ω , где $\Omega = \omega_1 - \omega_2$ – терагерцовая частота. Таким образом, на выходе из кристалла мы имеем три фотона: два с частотой ω_2 и один с частотой Ω . Данную картину легко обобщить на случай фемтосекундного импульса с широким спектром. При этом можно заключить, что генерация терагерцового излучения, во-первых, приводит к сужению и “красному” сдвигу спектра лазерного импульса и, во-вторых, не изменяет число фотонов в лазерном импульсе.

“Красный” сдвиг и сужение спектра лазерного импульса отчетливо наблюдаются на рис.2.

Это позволяет, исходя из спектров лазерного импульса (падающего и прошедшего через нелинейный кристалл), вычислить абсолютную энергию терагерцового импульса без использования калиброванного терагерцового детектора. Заметим, что вычисление мощности узкополосного терагерцового излучения по измеренной мощности стоксовой составляющей в процессе параметрической генерации было проведено в работе [12], однако в нашем случае такой способ неприменим, так как терагерцовые импульсы имеют довольно широкий спектр.

Эффективность преобразования определяется соотношением:

$$\eta = \frac{E_{\text{input}}^{\text{norm}} - E_{\text{output}}^{\text{norm}}}{E_{\text{input}}^{\text{norm}}},$$

где $E_{\text{input(output)}}^{\text{norm}}$ – нормированная на число фотонов энергия лазерного импульса на входе (на выходе из кристалла), то есть средняя энергия фотона в спектре:

$$E_{\text{input(output)}}^{\text{norm}} = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} N_{\text{input(output)}}(\lambda) \cdot \frac{hc}{\lambda} d\lambda}{\int_{-\infty}^{+\infty} N_{\text{input(output)}}(\lambda) d\lambda},$$

где $N_{\text{input(output)}}$ – спектральная плотность фотонов, измеряемая в эксперименте. Оценки показали, что

зависимость эффективности детектирования фотонов ПЗС-линейкой от длины волны дает ошибку в определении энергии терагерцовых импульсов не более 2%. Нормировка на число фотонов позволяет пренебречь потерями, не связанными с генерацией терагерцового излучения (отражение от граней кристалла, поглощение в кристалле, рассеяние на неоднородностях и т.д.) в предположении, что эти процессы не зависят заметным образом от длины волны в пределах ширины спектра лазерного импульса.

Обработка данных рис.2 дает величину $\eta = 2.2 \times 10^{-3}$ при оптическом выпрямлении фемтосекундных импульсов с наклонным фронтом, что в свою очередь дает абсолютное значение энергии терагерцового излучения $E_{THz}^{abs} = 66$ нДж при энергии исходного лазерного импульса 30 мкДж. В случае нормальных (не наклонных) фронтов (рис.3), та же процедура дает $\eta = 10^{-4}$, то есть примерно в 20 раз меньшую величину, чем при выполнении условия фазового синхронизма.

Отметим, что полная энергия терагерцовых импульсов вычислена внутри нелинейной среды. Для определения энергии импульсов, вышедших из кристалла, нужно учесть поглощение в LiNbO_3 , а также отражение от грани.

Для того чтобы рассчитать точное значение эффективности преобразования по числу фотонов из полученной величины η ($2.2 \cdot 10^{-3}$), необходимо знать спектр терагерцового импульса, который не измерялся в данной работе. Тем не менее, если взять за среднюю частоту терагерцовых фотонов 1.5 ТГц, полученную в предыдущих работах [7, 9] при сходных условиях, то получим эффективность преобразования по числу фотонов, равную 55%.

Суммируя, можно сказать, что нами экспериментально наблюдались изменения спектра фемтосекундного лазерного импульса, происходящие в результате высокоэффективного оптического выпрямления и согласующиеся с описанием процесса образования терагерцового излучения как генерации разностной частоты. Предложен метод измерения энергии терагерцовых импульсов, основанный на анализе этих изменений.

Авторы выражают признательность М.Н. Поповой и С.А. Климину за предоставленный терагерцовый детектор, а также Ю.А. Матвейцу за полезное обсуждение. Работа была выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований.

1. G. M. H. Knippels, X. Yan, A. M. MacLeod et al., *Phys. Rev. Lett.* **83**, 1578 (1999).
2. M. Bass, P. A. Franken, J. F. Ward, and G. Weinreich, *Phys. Rev. Lett.* **9**, 446 (1962).
3. T. K. Gustafson, J.-P. E. Taran, P. L. Kelley, and R. Y. Chiao, *Opt. Commun.* **2**, 17 (1970).
4. K. L. Vodopyanov, *Optics Express* **14**, 2263 (2006).
5. Y.-X. Yan, E. B. Gamble, Jr., and K. A. Nelson, *J. Chem. Phys.* **83**, 5391 (1985).
6. J. Hebling, G. Almasi, I. Z. Kozma, and J. Kuhl, *Opt. Express* **10**, 1161 (2002).
7. A. G. Stepanov, J. Hebling, and J. Kuhl, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 3000 (2003).
8. A. G. Stepanov, J. Kuhl, I. Z. Kozma et al., *Opt. Express* **13**, 5762 (2005).
9. J. Hebling, A. G. Stepanov, G. Almasi et al., *Appl. Phys. B* **78**, 593 (2004).
10. С. А. Ахманов, Р. В. Хохлов, *УФН* **88**, 439 (1966).
11. R. W. Boyd, *Nonlinear Optics*, Academic Press, Boston, 2003, p. 9.
12. M. A. Piestrup, R. N. Fleming, and R. H. Pantell, *Appl. Phys. Lett.* **26**, 418 (1975).