

Генерация терагерцового излучения при оптическом пробое воздуха: зависимость оптимального фазового сдвига между компонентами двухцветного лазерного импульса от их интенсивности

И. Е. Иляков⁺, Б. В. Шишкин⁺, Л. Н. Александров⁺, М. Ю. Емелин⁺⁺¹⁾, М. Ю. Рябикин⁺⁺

⁺Институт прикладной физики РАН, 603950 Н. Новгород, Россия

⁺⁺Нижегородский государственный университет им. Лобачевского, 603950 Н. Новгород, Россия

Поступила в редакцию 2 декабря 2014 г.

Экспериментально исследована генерация терагерцового излучения при оптическом пробое воздуха двухцветными лазерными импульсами, содержащими излучение на основной и удвоенной частотах. Продемонстрировано наличие сильной зависимости оптимального фазового сдвига между компонентами двухцветного поля от интенсивности лазерного импульса. В широком диапазоне параметров лазерного излучения экспериментальные результаты согласуются с результатами теоретического рассмотрения за рамками приближения сильного поля. Это подтверждает важную роль кулоновских взаимодействий в формировании направленных фототоков, инициирующих генерацию терагерцового излучения.

DOI: 10.7868/S0370274X15020022

Интерес к терагерцовому излучению (ТИ, $10^{11}–10^{13}$ Гц) обусловлен возможностью его применения для идентификации веществ, биомедицинской диагностики, томографии, безопасности [1, 2] и других прикладных задач. В настоящее время активно применяются оптические способы генерации ТИ с использованием фемтосекундных лазерных импульсов. Генерируемое в таких схемах ТИ представляет собой импульс субпикосекундной длительности с временной зависимостью напряженности электрического поля, содержащей всего одну-две осцилляции, и обладает очень широким спектром. При соответствующих длительности лазерных импульсов и способе генерации полезный спектр ТИ может перекрывать диапазон частот от 100 ГГц до 100 ТГц [3].

Среди оптических способов генерации ТИ большой интерес представляют преобразователи на основе газа, ионизированного при помощи сфокусированных фемтосекундных лазерных импульсов. Интерес к ним обусловлен отсутствием в плазме фоновых линий поглощения, что позволяет получать ТИ с непрерывным спектром во всем терагерцовом диапазоне, и возможностью создания удаленных источника и детектора ТИ в атмосфере, что позволяет проводить дистанционные исследования различных объектов и атмосферы [4]. Как продемонстрировано в экспериментах, импульсы ТИ могут быть полу-

чены при фокусировке фемтосекундных оптических импульсов в газах сферическими [5, 6] и аксиконными [7] линзами. При этом наилучшие результаты наблюдаются при использовании сферических линз и двухцветных оптических импульсов, содержащих излучение на основной (ω) и удвоенной (2ω) частоте [8]. Активные исследования двухцветной схемы генерации ведутся с 2000 г., когда были продемонстрированы высокая эффективность данной схемы генерации и наличие оптимального фазового сдвига между излучением на частотах ω и 2ω [9]. К настоящему времени показано, что наибольшая эффективность преобразования достигается при использовании линейно поляризованных компонент лазерного импульса на частотах ω и 2ω и совпадении плоскостей их поляризации [10]. Исследованы зависимости параметров ТИ от характеристик фокусирующих линз [11]. Продемонстрирована возможность управления ориентацией поляризации ТИ [12–14].

Одно из первых детальных теоретико-экспериментальных исследований генерации ТИ в плазме, создаваемой сфокусированными двухчастотными оптическими импульсами, проведено в работе [15]. В [15, 16] была предложена модель генерации ТИ, основанная на рассмотрении возбуждения макроскопического остаточного электронного тока. Для расчета нелинейного тока, эффективность возбуждения которого в значительной степени определяет эффективность генерации ТИ, использовалась полуклассическая модель. В этой модели concentra-

¹⁾e-mail: emelin@ufp.appl.sci-nnov.ru

ция электронов определялась согласно теории Аммосова–Делоне–Крайнова (АДК) [17, 18], описывающей ионизацию в туннельном пределе, а их траектории рассчитывались в приближении сильного поля. Предложенная в [15, 16] наглядная модель позволила объяснить ряд зависимостей характеристик ТИ от параметров среды и лазерного излучения, в том числе наличие оптимального фазового сдвига между компонентами двухцветного поля. В рамках использованных в [15, 16] приближений величина этого сдвига постоянна и не зависит от параметров эксперимента. Однако в различных независимых экспериментальных исследованиях и численных расчетах были получены разные значения оптимальной фазовой задержки между лазерным излучением на частотах ω и 2ω [15, 16, 19–22]. В работах [21–24] предложены расширенные подходы к описанию процесса генерации направленных токов, в которых учитывается кулоновское взаимодействие между отрываемым электроном и остовом атома или молекулы. Предложенные подходы позволяют выйти за рамки приближения сильного поля и проводить моделирование в широком диапазоне интенсивностей оптических импульсов. На основе как одномерных [22], так и трехмерных [24] квантовомеханических расчетов показано, что величина оптимального фазового сдвига φ между компонентами двухцветного импульса должна существенно зависеть от интенсивности лазерного излучения. При низких интенсивностях она должна быть постоянной и равной πN , где N – целое число. При переходе к высокой интенсивности, начиная со значений 10^{13} – 10^{14} Вт/см², оптимальное значение φ должно плавно уменьшаться на величину $\pi/2$ и выходить на насыщение при значениях интенсивности $\sim 10^{15}$ Вт/см² [24]. Здесь и далее предполагается, что зависимость от времени t суммарного поля лазерного излучения $E(t)$ в области генерации ТИ имеет вид $E(t) = E_1(t) \cos(\omega t) + E_2(t) \cos(2\omega t + \varphi)$, где $E_1(t)$ и $E_2(t)$ – огибающие импульсов на частотах ω и 2ω соответственно.

Данная работа посвящена экспериментальному и теоретическому исследованию зависимости оптимального фазового сдвига между излучением на основной и удвоенной частотах от энергии двухцветного лазерного импульса при различных его длительностях и фокусных расстояниях линз, используемых при генерации ТИ в плазме оптического пробоя воздуха. Полученные экспериментальные результаты сопоставлены с результатами численных квантовомеханических расчетов, проведенных при параметрах оптических импульсов и газа, приближенных к их экспериментальным значениям.

Схема эксперимента изображена на рис. 1. Фемтосекундный лазерный импульс (центральная дли-

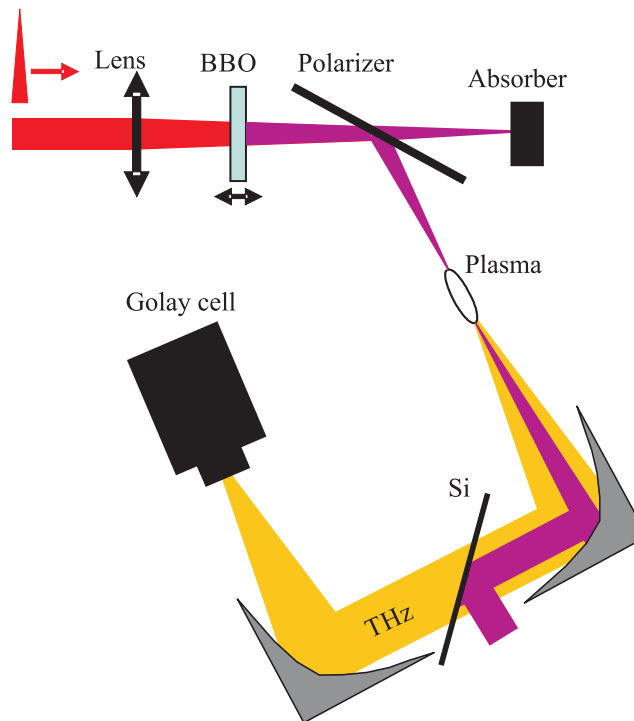


Рис. 1. Схема экспериментальной установки

на волны составляла $\lambda = 800$ нм, длительность варьировалась от 50 до 127 фс) фокусировался при помощи сферической линзы в воздухе. Для генерации второй гармоники использовался кристалл ВВО II толщиной 100 мкм. Оптические импульсы после кристалла ВВО падали на пленочный поляризатор. Изначальная ориентация поляризации импульсов с $\lambda = 800$ нм и кристалла ВВО была такой, что на поляризатор падали вертикально поляризованное излучение с $\lambda = 400$ нм и эллиптически поляризованное излучение с $\lambda = 800$ нм. Излучение с $\lambda = 400$ нм частично отражалось от поляризатора, а частично проходило сквозь него. Вертикально поляризованная компонента излучения с $\lambda = 800$ нм отражалась полностью, а горизонтально поляризованная часть проходила сквозь поляризатор. В результате в генерации ТИ участвовали вертикально поляризованные оптические импульсы с $\lambda = 400$ и 800 нм. Линейность поляризации импульсов $\lambda = 400$ и 800 нм и совпадение их плоскостей поляризации в данном эксперименте позволяют существенно упростить теоретическую трактовку получаемых результатов. Генерируемые в фокальной области терагерцовые импульсы при помощи параболических зеркал направлялись в ячейку Голя для измерения их энергии. Излучение

лазера отсекалось пластинкой из кремния, прозрачной для ТИ. Изменение относительной фазы между излучением с $\lambda = 800$ и 400 нм производилось смещением кристалла ВВО вдоль направления распространения лазерных импульсов.

Интенсивность оптического излучения в фокальной перетяжке в определенных пределах может плавно регулироваться путем изменения полной энергии лазерного импульса [25]. При этом чем короче фокусное расстояние используемой линзы, тем более высокая интенсивность может быть достигнута. С другой стороны, чем длиннее фокусное расстояние линзы, тем больший объем занимает плазма, что позволяет регистрировать ТИ при меньших интенсивностях лазерных импульсов. Для расширения рабочего диапазона интенсивностей оптических импульсов использовались линзы с различными фокусными расстояниями (150, 200 и 300 мм).

На рис. 2 представлены типичные зависимости энергии ТИ от положения кристалла ВВО при раз-

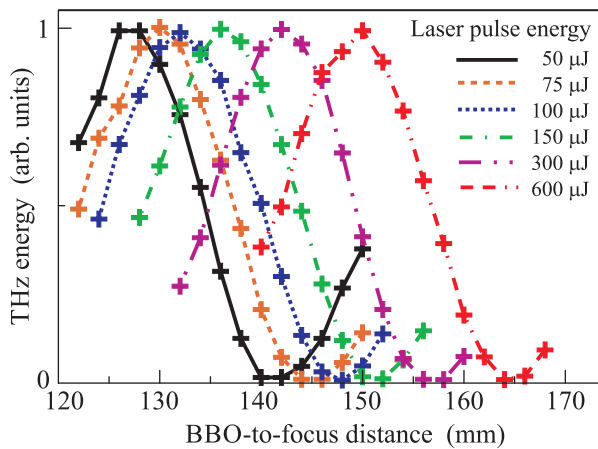


Рис. 2. Зависимости энергии ТИ от положения кристалла ВВО при различных значениях энергии лазерного импульса. Для наглядности все кривые приведены к единому масштабу: максимуму и минимуму энергии ТИ присвоены значения 1 и 0

личных энергиях оптических импульсов. Видно, что с ростом энергии оптических импульсов происходит монотонный сдвиг периодической зависимости в направлении от искры. На рис. 3а представлены измеренные величины таких сдвигов при различных энергиях и фокусных расстояниях линз. Измерялись положения ВВО, соответствующие локальному минимуму энергии ТИ (“неоптимальному” сдвигу фаз), ввиду того что они определяются точнее, чем положения, соответствующие максимуму. “Неоптималь-

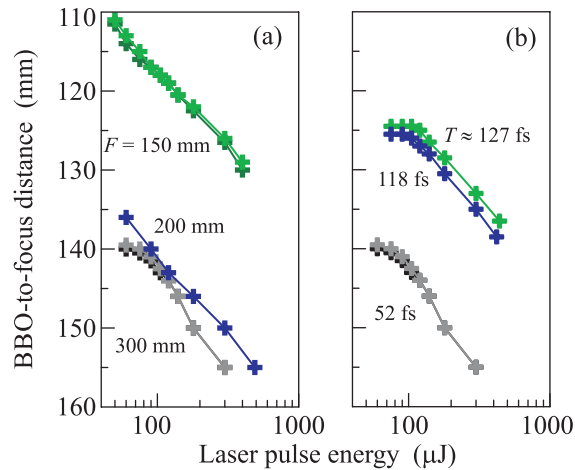


Рис. 3. Зависимости “неоптимального” положения ВВО от энергии лазерного импульса при различных значениях длительности лазерного импульса T и фокусного расстояния линзы F : (а) $T = 52$ фс, $F = 150, 200$ и 300 мм; (б) $F = 300$ мм, $T = 52, 118$ и 127 фс

ный” сдвиг фаз смещен относительно оптимального на $\pi/2 \pm \pi N$, где N – целое число [9, 10, 19–24]. Ограничения по значениям энергии лазерных импульсов в представленных измерениях определяются чувствительностью системы регистрации ТИ (при низких энергиях) и доступной энергией лазерных импульсов в данном эксперименте (при высоких энергиях). Как следует из приведенных выше соображений, измерения с линзой 300 мм дают информацию о сдвиге фаз при наименьших интенсивностях. Из результатов этих измерений видно, что при низких энергиях оптических импульсов наблюдается небольшой “загиб” в монотонной зависимости “неоптимального” сдвига фаз, что соответствует теоретическим выводам [22, 24]. Для дальнейших исследований в области низких интенсивностей длительность оптического импульса была увеличена путем введения отрицательного чирпа. Из приведенных на рис. 3б данных видно, что в результате подстройки длительности импульса “загиб” в области низких энергий стал более выраженным.

Для анализа полученных результатов мы провели серию квантовомеханических трехмерных численных расчетов. В отличие от расчетов, проведенных нами ранее [24], мы использовали переменное соотношение интенсивностей компонент двухцветного лазерного импульса: интенсивность поля на второй гармонике в искре рассчитывалась по формуле $I_2 = 3.287 \cdot 10^{-16} I_1^2$, где все интенсивности измеряются в Вт/см². Коэффициент в данной формуле был получен на основе экспериментальных данных по пре-

образованию лазерного излучения во вторую гармонику в кристалле ВВО для линзы с фокусным расстоянием 300 мм с учетом положения кристалла ВВО в ходе эксперимента. Согласно приведенной формуле отношение I_2/I_1 плавно изменялось от $3.287 \cdot 10^{-3}$ до 0.207 при изменении I_1 от 10^{13} до $6.3 \cdot 10^{14}$ Вт/см². Использование в численных расчетах переменного соотношения интенсивностей позволило приблизить теоретическую постановку задачи к условиям эксперимента. В остальном параметры численного моделирования были аналогичны таковым в [24]. Расчеты проводились для атома водорода в поле двухцветного лазерного импульса длительностью 80 фс. Расчеты для атомарного водорода вместо смеси молекулярных газов, присутствующих в воздухе, позволяют существенно снизить требования к численным ресурсам, сохранив критичные параметры задачи (в частности, изотропность и скорость ионизации среды) близкими к экспериментальным условиям.

На рис. 4 приведена зависимость оптимальной фазы второй гармоники от полной интенсивности ла-

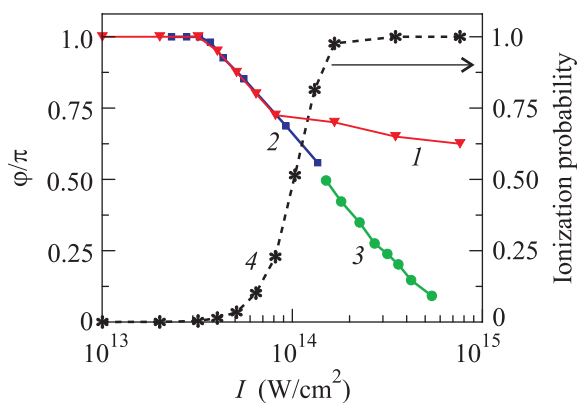


Рис. 4. Зависимости оптимальной фазы второй гармоники от интенсивности двухцветного лазерного импульса: 1 – результаты численных расчетов, 2 – экспериментальные данные для импульса с $T = 127$ фс и линзы с $F = 300$ мм, 3 – экспериментальные данные для импульса с $T = 52$ фс и линзы с $F = 150$ мм, 4 – вероятность ионизации газа

зерного излучения, полученная в результате численных расчетов, а также аналогичная зависимость, полученная из экспериментальных данных для линзы с фокусным расстоянием 300 мм и лазерного импульса длительностью 127 фс. При пересчете экспериментальных данных в оси интенсивности и фазы предполагалось, что лазерный импульс имеет гауссову форму как в поперечном сечении, так и во времени, диаметр фокальной перетяжки совпадает с вакуумным значением (≈ 43.65 мкм), а вторая гармоника лазер-

ного излучения отстает на полпериода при прохождении трассы ≈ 27 мм в воздухе [26]. Так как абсолютное значение фазы φ в эксперименте не измерялось, то существует произвол в выборе точки отсчета для экспериментальной кривой по оси фазы. Для определенности мы положили, что в области низких интенсивностей кривая начинается со значения $\varphi = \pi$ в соответствии с теорией [24]. Привязка к теоретическому значению именно в области низких интенсивностей оправдана тем, что при низких интенсивностях лазерного излучения эффективный объем области генерации ТИ стремится к нулю. Таким образом, коллективные эффекты, которые в теории [24] не учитываются, играют минимальную роль, а значит, именно в этой области теория и эксперимент должны согласовываться лучше всего. Отметим также, что предел низких интенсивностей соответствует случаю отсутствия ионизации. В этом случае основным механизмом генерации ТИ является четырехволновое смешение на связанных электронах, для которого $\varphi = 0$ или π [9, 22, 24].

Как видно из рис. 4, теоретическая и экспериментальная кривые практически идеально согласуются вплоть до интенсивностей лазерного излучения порядка 10^{14} Вт/см². При более высоких значениях интенсивности, как было показано в [24], оптимальная фаза определяется формой переднего фронта лазерного импульса, а при слабой ионизации стремится к значению $\varphi = \pi/2$, предсказываемому предложенной в [15, 16] фотоионизационной моделью. На рис. 4 теоретическая зависимость оптимальной фазы от интенсивности оптического импульса также плавно стремится к $\varphi = \pi/2$, но не достигает данного значения. Экспериментальная же зависимость с ростом интенсивности лазерного излучения не ограничивается снизу значением $\varphi = \pi/2$, а продолжает монотонно спадать. Более того, если добавить экспериментальные данные, полученные при использовании линзы с фокусным расстоянием 150 мм и нерастянутого импульса и пересчитанные в оси интенсивности и фазы по тем же правилам (линия 3 на рис. 4), то становится видно, что изменение оптимального фазового сдвига превышает предсказанную в [22, 24] величину в $\pi/2$ и насыщения в высокоинтенсивной области не наблюдается.

Расхождение между теоретической и экспериментальной зависимостями на рис. 4 может быть объяснено, если принять во внимание зависимость вероятности ионизации атома от интенсивности лазерного излучения, полученную в результате численного моделирования (линия 4 на рис. 4). Видно, что расхождение кривых для φ начинается при интенсивности,

соответствующей вероятности ионизации более 25 %. Высокий уровень ионизации газа означает возникновение ряда факторов, которые не были учтены в теоретических расчетах. В частности, наблюдается ионизационная дефокусировка пучка, приводящая к изменению геометрии распространения лазерного импульса и распределения энергии лазерного излучения в пространстве. Кроме того, так как с ростом мощности лазерного излучения растет объем искры, существенную роль начинает играть процесс распространения лазерного излучения в плазме. В частности, важным фактором может являться фазовая самомодуляция фемтосекундных лазерных импульсов. Например, в эксперименте [27] было продемонстрировано, что лазерный импульс длительностью 70 фс с энергией 3 мДж в результате фокусировки в аргоне может чирпироваться (величина спектрального фазового коэффициента второго порядка изменяется на -600 фс^2) и испытывать самокомпрессию до 10 фс. Из рис. 3b также видно, что даже в области низких интенсивностей небольшое изменение чирпа лазерного импульса (дающее удлинение импульса от 118 до 127 фс) приводит к смещению “неоптимального” положения кристалла ВВО. Таким образом, в результате распространения лазерного излучения в плазме фазовый сдвиг между компонентами двухцветного лазерного импульса, усредненный по всей длине искры, будет более сложным образом связан с положением кристалла ВВО. Более того, рост искры в воздухе с ростом мощности лазерного излучения приводит к неоднородности условий генерации ТИ в объеме плазмы, а значит, взаимодействие уже не может быть описано в терминах однородных по всему объему интенсивности лазерного излучения и фазового сдвига. Кроме этого, объем создаваемой плазмы и области генерации начинает существенно превышать длину волны генерируемого ТИ. В данном случае для корректного решения задачи необходимо учитывать коллективные эффекты в процессе распространения генерируемого ТИ в среде с источниками.

В силу перечисленных выше факторов можно утверждать, что произведенный выше пересчет экспериментальных зависимостей в оси интенсивности и фазы корректен лишь для диапазона интенсивностей с небольшим уровнем ионизации газа. Отметим однако, что в этом диапазоне оптимальная фаза изменяется весьма существенно (более чем на 0.3π). При более высоких энергиях импульсов и рассчитанная интенсивность, и фаза требуют существенных корректировок, выходящих за рамки используемого здесь теоретического подхода.

Таким образом, в настоящей работе проведены экспериментальные и теоретические исследования с целью определения оптимальных условий генерации ТИ при ионизации газов в двухцветном лазерном поле. Полученные результаты демонстрируют, что, вопреки широко распространенной модели формирования фототоков [15, 16], основанной на применении приближения сильного поля, оптимальная разность фаз между компонентами двухцветного лазерного поля сильно зависит от его интенсивности. Хорошее согласие между экспериментальными и теоретическими результатами в области применимости используемого в работе теоретического подхода свидетельствует о том, что полученные экспериментальные результаты могут быть интерпретированы как проявление кулоновских взаимодействий при лазерной ионизации частиц газа.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (гранты # 14-02-31199 и 14-22-02034) и гранта Президента РФ для ведущих научных школ # НШ-2001.2014.2.

1. A. G. Davies, A. D. Burnett, W. Fan, E. H. Linfield, and J. E. Cunningham, *Materials Today* **11**(3), 18 (2008).
2. P. H. Siegel, *IEEE Trans. MTT* **52**, 2438 (2004).
3. C. Kübler, R. Huber, and A. Leitenstorfer, *Semicond. Sci. Technol.* **20**, S128 (2005).
4. J. Liu, J. Dai, S. L. Chin, and X.-C. Zhang, *Nature Photon.* **4**, 627 (2010).
5. H. Hamster, A. Sullivan, S. Gordon, W. White, and R. W. Falcone, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 2725 (1993).
6. C. D’Amico, A. Houard, M. Franco, B. Prade, and A. Mysyrowicz, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 235002 (2007).
7. Р. А. Ахмеджанов, И. Е. Иляков, В. А. Миронов, Е. В. Суворов, Д. А. Фадеев, Б. В. Шишкин, *Письма в ЖЭТФ* **88**, 659 (2008).
8. Р. А. Ахмеджанов, И. Е. Иляков, В. А. Миронов, Е. В. Суворов, Д. А. Фадеев, Б. В. Шишкин, *Радиофизика* **52**, 536 (2009).
9. D. J. Cook and R. M. Hochstrasser, *Opt. Lett.* **25**, 1210 (2000).
10. X. Xie, J. Dai, and X.-C. Zhang, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 075005 (2006).
11. H. Zhong, N. Karpowicz, and X.-C. Zhang, *Appl. Phys. Lett.* **88**, 261103 (2006).
12. H. Wen and A. M. Lindenberg, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 023902 (2009).
13. Р. А. Ахмеджанов, И. Е. Иляков, В. А. Миронов, Е. В. Суворов, Д. А. Фадеев, Б. В. Шишкин, *ЖЭТФ* **136**, 431 (2009).
14. J. Dai, N. Karpowicz, and X.-C. Zhang, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 023001 (2009).
15. K.-Y. Kim, J. H. Glowina, A. J. Taylor, and G. Rodriguez, *Opt. Express* **15**, 4577 (2007).

16. K.-Y. Kim, A. J. Taylor, J. H. Glowina, and G. Rodriguez, *Nature Photon.* **2**, 605 (2008).
17. А. М. Переломов, В. С. Попов, М. В. Терентьев, *ЖЭТФ* **50**, 1393 (1966).
18. М. В. Аммосов, Н. Б. Делоне, В. П. Крайнов, *ЖЭТФ* **91**, 2008 (1986).
19. H. Dai and J. Liu, *J. Opt.* **13**, 055201 (2011).
20. N. Karpowicz, X. Lu, and X.-C. Zhang, *J. Mod. Opt.* **56**, 1137 (2009).
21. D. Zhang, Z. Lu, C. Meng, X. Du, Z. Zhou, Z. Zhao, and J. Yuan, *Phys. Rev. Lett.* **109**, 243002 (2012).
22. Z. Lu, D. Zhang, C. Meng, X. Du, Z. Zhou, Y. Huang, Z. Zhao, and J. Yuan, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **46**, 155602 (2013).
23. L. N. Alexandrov, M. Yu. Emelin, and M. Yu. Ryabikin, *Phys. Rev. A* **87**, 013414 (2013).
24. L. N. Alexandrov, M. Yu. Emelin, and M. Yu. Ryabikin, *J. Phys. B* **47**, 204028 (2014).
25. F. Théberge, W. Liu, P. Tr. Simard, A. Becker, and S. L. Chin, *Phys. Rev. E* **74**, 036406 (2006).
26. S. A. Korff and G. Breit, *Rev. Mod. Phys.* **4**, 471 (1932).
27. S. Akturk, A. Couairon, M. Franco, and A. Mysyrowicz, *Opt. Express* **16**, 17626 (2008).