



**Есаулков Михаил Николаевич**

**Роль проводимости и нелинейной поляризации среды в  
ориентации главной оси эллипса поляризации  
терагерцового излучения, образующегося при  
самовоздействии и взаимодействии фемтосекундных  
импульсов в газах и проводящих плёнках**

Специальность 01.04.21 – Лазерная физика

**ДИССЕРТАЦИЯ**

на соискание ученой степени  
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель

д. ф.-м. н., профессор

В. А. Макаров

Научный руководитель

д. ф.-м. н., профессор

А. П. Шкуринов

Москва – 2016

# Оглавление

<b>Введение</b> . . . . .	4
Общая характеристика работы . . . . .	4
<b>Глава 1. Генерация ТГц излучения в газоплазменных средах и его поляризация в рамках простых теоретических моделей</b> . . . . .	15
1.1. Введение . . . . .	15
1.2. Нелинейный отклик свободных электронов: двухступенчатая модель генерации ТГц излучения . . . . .	20
1.3. Начальный импульс фотоэлектронов в рамках метода мнимого времени (ММВ) в туннельном и многофотонном приближении . . . . .	29
1.4. ТГц излучение в дальней зоне . . . . .	33
1.5. Нелинейная поляризация нейтральных молекул среды . . . . .	35
1.6. Выводы по главе 1 . . . . .	38
<b>Глава 2. Терагерцовый спектрометр-поляриметр с независимым управлением пучками первой и второй гармоники лазерного излучения</b> . . . . .	40
2.1. Введение . . . . .	40
2.2. Оптическая схема терагерцового спектрометра-поляриметра с разделенными пучками первой и второй гармоники . . . . .	44
2.3. Стабилизация разности длин оптических плеч первой и второй гармоники . . . . .	46
2.4. Регистрация терагерцового и оптического излучения . . . . .	51
2.5. Интерферометр Майкельсона для изучения спектральных характеристик ТГц излучения . . . . .	55
2.6. Выводы по главе 2 . . . . .	57
<b>Глава 3. Экспериментальные исследования поляризационных и спектральных свойств ТГц излучения</b> . . . . .	58
3.1. Введение . . . . .	58
3.2. Специфика понятия поляризации для импульсного ТГц излучения . . . . .	62
3.3. Поляризация ТГц излучения . . . . .	63
3.4. Спектр терагерцового излучения . . . . .	81

3.5. Другие нелинейно-оптические процессы третьего порядка в плазме оптического пробоя среды . . . . .	86
3.6. Выводы по главе 3 . . . . .	95
<b>Глава 4. Пространственный профиль интенсивности и поляризации ТГц излучения . . . . .</b>	<b>98</b>
4.1. Введение . . . . .	98
4.2. Визуализация пространственной структуры ТГц излучения при помощи матрицы микроболометров . . . . .	99
4.3. Определение пространственного профиля интенсивности и поляризации ТГц излучения при использовании детектирования с временным разрешением и при помощи ячейки Голя . . . . .	103
4.4. Выводы по главе 5 . . . . .	108
<b>Глава 5. Генерация ТГц излучения в плёнках диоксида ванадия . . . . .</b>	<b>109</b>
5.1. Введение . . . . .	109
5.2. Экспериментальная установка и образцы . . . . .	111
5.3. Экспериментальные результаты и обсуждение . . . . .	115
5.4. Выводы по главе 6 . . . . .	124
<b>Заключение . . . . .</b>	<b>126</b>
<b>Благодарности . . . . .</b>	<b>128</b>
<b>Список литературы . . . . .</b>	<b>130</b>

# Введение

## Общая характеристика работы

**Актуальность темы** Под терагерцовым (ТГц) диапазоном частот традиционно понимается частотный интервал 0.3 - 10 ТГц, лежащий между дальним инфракрасным диапазоном и микроволновым излучением. В терагерцовой области частот находятся, в частности, колебания крупных частей органических молекул, фононные моды многих кристаллических веществ, вращательные переходы молекул газов. Терагерцовое излучение широко используется в системах обнаружения скрытых взрывчатых веществ, неразрушающего контроля фармацевтических препаратов, в перспективных системах беспроводной связи, а также, благодаря низкой энергии кванта и способности проникать на небольшую глубину в биологические ткани, применяется для диагностики заболеваний кожи, в том числе онкологических. Особенность терагерцового диапазона заключается в том, что он лежит на границе областей применимости и электроники (время пробега носителей заряда в этом диапазоне становится сравнимым с периодом колебания поля), и оптики (энергия кванта излучения в данном диапазоне существенно меньше энергии теплового движения при комнатной температуре). Поэтому до сих пор существует недостаток компактных и дешевых источников терагерцового излучения, сочетающих высокую спектральную яркость и способность перестраиваться в достаточно широких пределах.

В течение долгого времени развивались лишь источники непрерывного неперестраиваемого (или перестраиваемого в узком диапазоне частот) излучения в ТГц диапазоне при помощи таких устройств, как диоды Ганна [1], гиротроны [2, 3], лампы обратной волны [4, 5], клистроны и оротроны [6], лазеры на свободных электронах [7, 8], газовые лазеры на вращательных переходах [9, 10]. С недавнего времени в этот ряд добавились также квантово-каскадные лазеры - компактные источники мощного ТГц излучения, работающие, как правило, при криогенных температурах [11, 12]. Упомянутые генераторы терагерцового излучения можно условно разделить на “электронные” и “нелинейно-оптические”, в зависимости от физических принципов, лежащих в их основе.

Другой подход к генерации терагерцового излучения основан на преобразовании импульсного излучения лазеров видимого и инфракрасного диапазона в терагерцовые импульсы. Физические механизмы, определяющие генерацию ТГц излучения в таких источниках, также можно разделить условно на “электронные”, в которых фигурирует движе-

ние свободных носителей заряда и нелинейные свойства проводимости среды, и "оптические", в которых наибольшую роль играет отклик связанных электронов, приводящий к нелинейной поляризации среды. Первые экспериментальные работы по таким генераторам появились в середине 1970-ых годов как у советских [13, 14], так и зарубежных исследователей [15], а бурное их развитие началось в 1980-х годах, сразу после появления коммерчески доступных фемтосекундных оптических систем. При взаимодействии сверхкоротких лазерных импульсов с нелинейными средами возможна генерация импульсного излучения в низкочастотном (в том числе терагерцовом) диапазоне частот по механизму оптического выпрямления [16, 17]. Среди наиболее широко используемых кристаллических сред, в которых осуществляется оптическое выпрямление фемтосекундных импульсов, можно перечислить нецентросимметричные нелинейные кристаллы ZnTe [18], GaAs [19], GaSe [20], CdTe [21], LiNbO<sub>3</sub> [22]. Другим классом источников, преобразующих импульсное лазерное излучение в терагерцовое, являются генераторы, использующие нелинейные свойства фотопроводимости полупроводников. Лазерный импульс вызывает разделение зарядов вблизи поверхности полупроводника. Дальнейшее движение носителей заряда до их рекомбинации определяется внешним электростатическим [23, 24] или магнитным [25] полем, приложенным к генератору, либо собственным приповерхностным полем полупроводника [26, 27], либо разницей в коэффициентах диффузии электронов и дырок в приповерхностном слое (так называемый эффект Дембера [28]).

Наибольшие КПД преобразования оптической энергии в ТГц излучение были достигнуты при генерации по механизму оптического выпрямления в кристаллах ниобата лития при использовании специально созданной структуры для вывода ТГц излучения из кристалла [29, 30]. Техника генерации ТГц излучения, использующая свойства фотопроводимости полупроводников, успешно развивается до сих пор и привела к созданию коммерчески доступных высокоэффективных фотопроводящих антенн, позволяющих работать в диапазоне от 0.1 до примерно 5 ТГц. Однако основными недостатками кристаллических сред для генерации импульсного ТГц излучения являются сильная дисперсия и поглощение в терагерцовом диапазоне, ограничивающие ширину спектра генерации. Это объясняется наличием фононных линий на частотах в несколько терагерц.

Появление мощных фемтосекундных лазерных систем, имеющих импульсы с энергией от десятых долей миллиджоуля и выше, стимулировало разработку еще одного типа генераторов импульсного ТГц излучения - плазмы оптического пробоя газовых сред.

Теоретические основы описания нелинейных процессов, приводящих в конечном итоге к генерации ТГц излучения, были заложены более 50 лет назад в работах Гинзбурга [31] и Аскарьяна [32], [33], Прохорова и Пашина [34], Бломбергена и Шена [35, 36]. Демонстрация генерации импульса ТГц излучения в газовой среде была впервые осуществлена в работах [37], [38]. В качестве основных механизмов генерации предлагалось действие ponderomotorных сил на электроны плазмы, излучение кильватерных волн, возникающих и затухающих в плазме в результате прохождения фемтосекундного импульса [39–41], и черенковское излучение, обусловленное быстро распространяющимся ионизационным фронтом [42].

Поскольку газовые среды обладают центром инверсии, нелинейные процессы второго порядка в них запрещены, но нет никаких ограничений на проявление нелинейных процессов третьего порядка. Это дало ключ к дальнейшему развитию источников ТГц излучения на базе плазмы оптического пробоя. Так, был реализован механизм оптического выпрямления фемтосекундного импульса в присутствии постоянного электрического поля [43, 44], а также был предложен механизм четырехволнового выпрямления на нелинейности третьего порядка:  $\Omega_{THz} = \omega + \omega - 2\omega$  [45].

В экспериментальных работах по генерации ТГц излучения в газовых средах было обнаружено, что эффективность преобразования в низкочастотное излучение резко возрастает, если интенсивность возбуждающего оптического импульса становится достаточной для фотоионизации газа. Этот результат связали с возникновением направленного импульса фототока, обусловленного дрейфом фотоэлектронов, покидающих атом в результате ионизации в оптическом поле, содержащем две частоты [46]. Таким образом, было высказано предположение, что генерация терагерцового излучения связана с особенностями нелинейной проводимости среды. Управление фазовыми, временными и поляризационными характеристиками возбуждающего оптического импульса позволяло управлять характеристиками излучаемого терагерцового импульса, как было показано на ряде примеров [47–49].

Доля ионизированных молекул (либо атомов) газа при оптическом пробое фемтосекундными лазерными импульсами зачастую невелика и может достигать долей процента или нескольких процентов в зависимости от режима фокусировки. Большая часть атомов и молекул среды остается при этом нейтральной. Поэтому процесс генерации терагерцового излучения содержит вклады как нелинейной поляризации, обусловленной откликом

связанных электронов в нейтральных молекулах и атомах, так и нелинейной проводимостью, определяемой свободными электронами, покидающими молекулы при фотоионизации. Несмотря на то, что каждый из этих вкладов был в той или иной мере изучен в отдельности, недостаточно внимания уделялось их сравнению по двум важнейшим характеристикам излучения - спектру и поляризации. В настоящей работе показано, что поляризация излучения, определяемая двумя этими вкладами, различна. Поэтому экспериментально наблюдаемое состояние эллипса поляризации терагерцового импульса проливает свет на доминирующий вклад в излучение из плазмы оптического пробоя при конкретных условиях.

Следует отметить также, что задача исследования состояния поляризации импульсного ТГц излучения является нетривиальной, поскольку излучение обладает очень широким спектром: в случае генерации в плазме оптического пробоя при использовании лазерных импульсов длительностью порядка 120 фс спектр излучения простирается от 0.5 до примерно 10-15 ТГц, что составляет более четырех октав частоты. В случае отличия состояния поляризации такого излучения от линейной, будет недостаточно измерения зависимости энергии ТГц излучения сквозь ТГц анализатор от его ориентации. Для анализа состояния поляризации такого импульса необходимо получать информацию о фазе всех частотных компонент такого импульса, либо восстанавливать временную зависимость вектора электрического поля в некоторой точке пространства.

Кроме того, на настоящий момент поляризационная оптика для широкополосного терагерцового излучения еще находится в самом начале своего развития. Управление состоянием поляризации излучения требует либо использования фазовращающих ТГц элементов, либо переюстировки ряда элементов оптической схемы. Поэтому весьма актуально исследование способов чисто оптического управления состоянием поляризации терагерцового излучения, которое оказывается возможным для генераторов ТГц излучения в плазме оптического пробоя.

Возникающая при фокусировке фемтосекундного излучения плазма является нестационарной нелинейной средой, изменяющей свойства распространяющихся в ней оптического и терагерцового излучения. Поляризация компонент оптического излучения преобразуется по мере распространения, и условия генерации ТГц излучения в различных участках плазмы неодинаковы. Поэтому поляризация терагерцового излучения есть отражение не только основного механизма нелинейности, но и процессов, связанных с распростра-

нением электромагнитного излучения сквозь газовой-плазменную среду. Дополнительную информацию о нелинейных процессах, протекающих в плазме, можно получить из анализа поляризации оптического излучения, покидающего область взаимодействия: изменяется поляризация первой и второй гармоник лазерного излучения, наблюдается генерация комбинационных частот.

Для терагерцового излучения приосевая область плазмы достигает закритической плотности, и является препятствием для его распространения. Поэтому еще одна важнейшая характеристика ТГц излучения - пространственный профиль его интенсивности - также определяется свойствами плазменного облака вблизи перетяжки. Одна из глав данной работы посвящена экспериментальному исследованию пространственного профиля интенсивности ТГц излучения.

Важно отметить, что плазма оптического пробоя газов - не единственная система, в которой генерация терагерцового излучения при взаимодействии с фемтосекундными оптическими импульсами обусловлена как нелинейной поляризацией среды, то есть нелинейным откликом связанных электронов, так и её нелинейной проводимостью. Еще одним примером таких веществ, в которых может происходить генерация терагерцового излучения, являются плёнки диоксида ванадия.

Интерес к генерации терагерцовых импульсов в тонких проводящих пленках связан с поиском новых компактных источников излучения. Некоторое время назад появился ряд работ по генерации в тонких плёнках металлов при их взаимодействии с излучением титан-сапфирового лазера [50–52], в частности в области малых толщин вблизи перколяционного перехода в изолирующее состояние [53], [54]. Нелинейный отклик свободных электронов на поверхности металлов, обусловленный с нарушением симметрии и снятием запрета на протекание нелинейных процессов второго порядка [52, 55, 56], считается одной из основных причин данного явления. В теоретических моделях этот процесс был впервые рассмотрен еще в 60-ых годах Бломбергенем [57]. Тем не менее, сверхтонкие металлические плёнки, в особенности вблизи перколяционного фазового перехода из непроводящего состояния в металлическое, являются не очень удобными объектами исследования ввиду трудности их получения и сохранения их свойств в лабораторных условиях. Более практично рассматривать вместо них модельную систему - тонкие плёнки диоксида ванадия. Это вещество испытывает фазовый переход из непроводящего состояния в проводящее при температуре  $68^{\circ}\text{C}$ . Фазовый переход первого рода и изменение соотношения между



связанными и свободными электронами при этом легко индуцировать нагревом образца. В настоящей работе впервые рассматривается явление генерации ТГц излучения в плёнках диоксида ванадия в двух фазовых состояниях при самовоздействии в них излучения титан-сапфирового лазера, и обнаруживается, что этот нелинейный процесс происходит в непроводящей и проводящей фазе неодинаково.

Как и для плазмы оптического пробоя газов, анализ состояния эллипса поляризации терагерцового излучения дает информацию о роли проводимости среды в процессах, приводящих к генерации терагерцового излучения в плёнках диоксида ванадия. Эта общая идея объединяет исследование генерации терагерцового излучения в газовых средах, где свободные носители заряда рождаются в течение взаимодействия вещества с оптическим полем, и пленках  $\text{VO}_2$ , где эти носители уже существуют в среде, но их количеством можно управлять с помощью изменения температуры.

Таким образом, тематика диссертационной работы является важной и востребованной для практического применения и в области фундаментальных исследований.

Тем не менее, сверхтонкие металлические плёнки, в особенности вблизи перколяционного фазового перехода в непроводящее состояние, являются не очень удобными объектами исследования ввиду трудности их получения и сохранения их свойств в лабораторных условиях. Гораздо более удобными для исследований являются тонкие плёнки диоксида ванадия - материала, который испытывает фазовый переход из непроводящего состояния в проводящее при температуре  $68^\circ\text{C}$ , лишь незначительно превышающей комнатную. Фазовый переход первого рода при этом легко индуцировать и исследовать различными оптическими и электрическими методами. Это даёт уникальную возможность исследования механизмов нелинейности, связанных с током свободных носителей заряда, при управлении проводимостью системы и количеством этих носителей. Поляризационные исследования при этом являются одним из важнейших способов получения информации о природе нелинейности в таких плёнках, об анизотропии в них. В данной работе впервые рассматривается явление генерации ТГц излучения в плёнках диоксида ванадия в двух фазовых состояниях и обнаруживается, что этот нелинейный процесс происходит в проводящей фазе в 30 раз более эффективно. Более того, поляризационные свойства излучения в двух фазовых состояниях существенно различны, и тесно связаны с динамикой свободных носителей заряда и локальными полями внутри плёнок.

Как и для генерации ТГц излучения при оптическом пробое газов, анализ поляриза-

ции излучения дает информацию о роли свободных носителей заряда в процессах, приводящих к генерации ТГц излучения в плёнках диоксида ванадия. Эта общая идея объединяет исследование поляризации ТГц излучения в газовых средах, где свободные носители заряда рождаются в течение взаимодействия вещества с оптическим полем, и пленках  $\text{VO}_2$ , где эти носители уже существуют в среде, но их количеством можно управлять с помощью изменения температуры.

**Цель диссертационной работы:** Исследование состояния эллипса поляризации терагерцового излучения при его генерации в газовой-плазменных средах и модельных системах с управляемой проводимостью с общей целью определения вкладов проводимости и нелинейной поляризации среды на параметры терагерцового излучения. Для этого решались следующие задачи:

1. Теоретическое и экспериментальное исследование состояния эллипса поляризации и пространственных свойств терагерцового излучения, возникающего при одновременном взаимодействии в газовой-плазменной среде оптических фемтосекундных импульсов первой и второй гармоники титан-сапфирового лазера.
2. Исследование явления генерации терагерцового излучения в модельной системе с управляемой проводимостью - тонких плёнках диоксида ванадия в металлическом и изолирующем фазовом состоянии при самовоздействии в них фемтосекундных импульсов титан-сапфирового лазера. Определение состояния эллипса поляризации излучения данного источника.

**Научная новизна** проведенных исследований определяется следующими положениями:

1. На основе анализа известных из литературы теоретических зависимостей, а так же оригинальных экспериментальных данных показано, что поляризация терагерцового излучения, возникающего при взаимодействии фемтосекундных импульсов титан-сапфирового лазера с газовой-плазменными средами, определяется взаимным соотношением проводимости и нелинейной поляризации этих сред
2. Впервые экспериментально показано, что поляризация терагерцового излучения, возникающего при коллинеарном взаимодействии линейно-поляризованных фемтосекундных импульсов первой и второй гармоник титан-сапфирового лазера с энергиями порядка 1 мДж и 50 мкДж соответственно, углом между направлениями их

поляризации меньшим  $70^\circ$  и отсутствии временной задержки между ними, близка к линейной и совпадает по направлению с поляризацией первой гармоники

3. Впервые было установлено, что пространственное распределение интенсивности терагерцового излучения, возникающего при оптическом пробое газов фемтосекундными импульсами первой и второй гармоники с энергиями порядка 1 мДж и 50 мкДж соответственно, является коническим с углом раскрытия, зависящим от длины плазменного канала, в котором происходит генерация, и частоты излучаемой волны.
4. Впервые экспериментально обнаружено наличие высокочастотной (на частотах 7 до 13 ТГц при использовании импульса первой гармоники длительностью 120 фс) компоненты спектра терагерцового излучения, обусловленной нелинейной поляризацией среды оптического пробоя.
5. Впервые было обнаружено явление генерации терагерцового излучения в тонких плёнках диоксида ванадия в двух фазовых состояниях при их взаимодействии с излучением фемтосекундного лазера с плотностью потока энергии до 6 мДж/см<sup>2</sup>.

**Практическая значимость** Результаты и закономерности, полученные в диссертации, могут быть использованы для построения и оптимизации спектроскопических систем, использующих газовые среды для генерации и детектирования терагерцового излучения. В работе выявлены методы управления поляризацией и интенсивностью генерируемого терагерцового излучения путём изменения поляризации возбуждающих оптических импульсов и разности фаз между ними. Обнаружен способ быстрой модуляции направления поляризации генерируемого широкополосного терагерцового излучения при помощи изменения временной задержки между возбуждающими лазерными импульсами. Этот способ может найти применение для таких исследовательских задач, как поляризационная ТГц спектроскопия в широком диапазоне частот.

**На защиту выносятся следующие основные результаты и положения:**

1. Ориентация эллипса поляризации терагерцового излучения, возникающего при самовоздействии и взаимодействии фемтосекундных импульсов титан-сапфирового лазера с газовой-плазменными средами и проводящими плёнками, определяется взаимным соотношением проводимости и нелинейной поляризации этих сред.

2. Состоянием поляризации терагерцового излучения, возникающего при коллинеарном взаимодействии в газах фемтосекундных импульсов первой и второй гармоник титан-сапфирового лазера с энергиями до 1 мДж и 0.05 мДж соответственно и длительностью порядка 100 фс, можно управлять, изменяя временную задержку между ними
3. Пространственное распределение интенсивности линейно поляризованного терагерцового излучения, возникающего в газе при взаимодействии фемтосекундных импульсов первой и второй гармоники титан-сапфирового лазера с энергиями до 1 мДж и 0.05 мДж соответственно и длительностью порядка 100 фс, имеет конечный характер. Угол раскрытия конуса обратно пропорционален корню из длины образующегося плазменного канала и частоты терагерцового излучения
4. Эффективность генерации терагерцового излучения, возникающего при взаимодействии фемтосекундного импульса титан-сапфирового лазера длительностью 50 фс и энергией до 0.2 мДж с эпитаксиальной пленкой диоксида ванадия, возрастает более чем на порядок при его переходе из изолирующего в проводящее состояние

**Апробация работы** Основные результаты диссертации докладывались на следующих конференциях: 8я международная конференция Strong Microwaves and Terahertz Waves: Sources and Applications 2011, г. Нижний Новгород, 9-16 июля 2011 г.; 2я международная конференция Terahertz and Microwave radiation (TERA-2012), г. Москва, 20-22 июня 2012 г.; 20я международная конференция Advances in Laser Technologies (ALT-2012), г. Тун, Швейцария, 2-6 сентября 2012 г.; международная конференция The International Conference on Coherent and Nonlinear Optics/The Lasers, Applications, and Technologies (ICONO/LAT 2013), г. Москва, 18-22 июня 2013 г.; 8я международная конференция молодых ученых и специалистов “Оптика-2013”, г. Санкт-Петербург, 22я конференция Advances in Laser Technologies (ALT-2014), г. Касси, Франция, 6-10 октября 2014 г, 40я международная конференция Infrared, Millimeter and Terahertz Waves (IRMMW-THz 2015), г. Гонконг, КНР, 23-27 августа 2015 г, 23я конференция Advances in Laser Technologies (ALT-2015), г. Фаро, Португалия, 6-11 сентября 2015 г

**Публикации по теме диссертации.** Материалы диссертации опубликованы в 21 печатной работе, в том числе в 8 статьях в рецензируемых научных журналах из списка ВАК России:

1. Borodin A. V., Panov N. A., Kosareva O. G., Andreeva V. A., **Esaulkov M. N.**, Makarov V. A., Shkurinov A. P., Chin S.-L., Zhang X.-C. Transformation of terahertz spectra emitted from dual-frequency femtosecond pulse interaction in gases // Optics letters. – 2013. – Vol. 38, no. 11, pp. 1906–1908.
2. Borodin A. V., **Esaulkov M. N.**, Kuritsyn I. I., Kotelnikov I. A., Shkurinov A. P. On the role of photoionization in generation of terahertz radiation in the plasma of optical breakdown // JOSA B. – 2012. – Vol. 29, no. 8, pp. 1911–1919.
3. Kosareva O. G., Panov N. A., Volkov R. V., Andreeva V. A., Borodin A. V., **Esaulkov M. N.**, Chen Y., Marceau C., Makarov V. A., Shkurinov A. P. Analysis of dual frequency interaction in the filament with the purpose of efficiency control of THz pulse generation // Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves. – 2011. – Vol. 32, no. 10, pp. 1157–1167.
4. Borodin A. V., **Esaulkov M. N.**, Frolov A. A., Shkurinov A. P., Panchenko V. Y. Possibility of direct estimation of terahertz pulse electric field // Optics letters. – 2014. – Vol. 39, no. 14, pp. 4092–4095.
5. **Esaulkov M. N.**, Kosareva O. G., Makarov V. A., Panov N. A., Shkurinov A. P. Simultaneous generation of nonlinear optical harmonics and terahertz radiation in air: polarization discrimination of various nonlinear contributions // Frontiers of Optoelectronics. – 2015. – Vol. 8, no. 1, pp. 73–80.
6. Makarevich A., Sadykov I., Sharovarov D., Amelichev V., Adamenkov A., Tsybarenko D., Plokhii A., **Esaulkov M.**, Solyankin P., Kaul A. Chemical synthesis of high quality epitaxial vanadium dioxide films with sharp electrical and optical switch properties // Journal of Materials Chemistry C. – 2015. – Vol. 3, no. 35, pp. 9197–9205.
7. **Esaulkov M.**, Solyankin P., Sidorov A., Parshina L., Makarevich A., Jin Q., Luo Q., Novodvorsky O., Kaul A., Cherepetskaya E., Makarov V., Shkurinov A., Zhang X.-C. Emission of terahertz pulses from vanadium dioxide films undergoing metal–insulator phase transition // Optica. – 2015. – Vol. 2, no. 9, pp. 790–796.
8. Фролов А. А., Бородин А. В., **Есаулков М. Н.**, Курицын И. И., Шкуринов А. П. Теория лазерно-плазменного метода детектирования терагерцевого излучения // ЖЭТФ. – 2012. – Т. 141, № 6, стр. 1027–1040.

**Личный вклад автора** Содержание диссертации и основные положения, выносимые на защиту, отражают персональный вклад автора в опубликованные работы. Экспериментальные результаты, представленные в диссертации результаты получены автором лично или при его определяющем участии. Теоретический анализ, использованный для сравнения с оригинальными экспериментальными результатами, был выполнен совместно с сотрудниками лаборатории численного эксперимента в оптике физического факультета МГУ имени М.В. Ломоносова (Н.А.Пановым, О.Г. Косаревой, В.А. Андреевой), сотрудником Института ядерной физики им. Г.И. Будкера СО РАН И.А. Котельниковым и сотрудником Объединенного института высоких температур РАН А.А. Фроловым Подготовка к публикации полученных результатов проводилась совместно с соавторами. Автором осуществлялось планирование, подготовка и проведение экспериментов, обработка экспериментальных данных, их анализ и интерпретация.

**Структура и объем диссертации** Диссертация состоит из введения, 5 оригинальных глав, заключения и библиографии. Общий объем диссертации 147 страниц, включая 52 рисунка и 2 таблицы и список литературы с общим числом ссылок 181.

## Глава 1

# Генерация ТГц излучения в газоплазменных средах и его поляризация в рамках простых теоретических моделей

Целью данной главы является теоретическое описание генерации терагерцового излучения при оптическом пробое газов полем, состоящим из оптических импульсов первой и второй гармоники фемтосекундного лазера, а также определение основных факторов, влияющих на поляризацию терагерцового излучения. Глава носит частично обзорный характер и опирается на работы, выполненные научной группой, к которой принадлежит автор диссертационной работы, совместно с сотрудниками Института ядерной физики имени Г. И. Будкера СО РАН, Объединенного института высоких температур РАН и лаборатории численного эксперимента в оптике Физического факультета МГУ имени М.В. Ломоносова. Сравнительный анализ поляризационных зависимостей, определяемых описанными в главе теоретическими моделями, является оригинальной работой автора диссертации.

### 1.1. Введение

Фокусировка излучения, содержащего мощные импульсы на фундаментальной частоте и второй гармонике титан-сапфирового лазера, в газовой среде, порождает сложный комплекс в той или иной степени связанных между собой физических процессов: фотоионизация и образование плазменного облака, возбуждение плазменных колебаний, генерация комбинационных частот и высоких гармоник и т.д. Процесс генерации ТГц излучения - это лишь один из многих процессов, которые можно при этом наблюдать и изучать. Полное теоретическое описание взаимодействия газовой среды с оптическим полем требует решения нестационарного уравнения Шрёдингера и системы уравнений Максвелла и является, безусловно, очень сложной задачей, поэтому лишь очень немногие исследовательские группы идут по этому пути [58], [59]. Тем не менее, для удовлетворительного описания наблюдаемых в эксперименте явлений и свойств получаемого электромагнитного излучения, зачастую достаточно применения относительно простых и наглядных теоретических моделей, отражающих наиболее значимые для формирования терагерцового излучения

физические процессы. При этом автор диссертации не ставит цели всеобъемлющего описания процессов, протекающих в плазме, а стремится указать на наиболее важные моменты, обуславливающие основные свойства получаемого терагерцового излучения.

В процессе генерации ТГц излучения в плазме оптического пробоя участвуют как свободные электроны, появляющиеся в результате фотоионизации и определяющие проводимость среды, так и связанные электроны в молекулах или атомах, определяющие нелинейную поляризацию среды. Поэтому в настоящей работе будут рассмотрены оба этих нелинейных вклада и их влияние на поляризацию излучаемых терагерцовых импульсов. Конечно, при этом следует помнить, что такое разделение вкладов является в определенном смысле упрощением, и в данной работе предполагается независимость и аддитивность этих вкладов в общий процесс генерации.

Генерация ТГц излучения за счет нелинейной поляризации нейтральных молекул и атомов среды может быть описана как процесс третьего порядка - четырехволновое оптическое выпрямление. При этом естественным является представление среды как изотропной и нерезонансной для излучения титан-сапфирового лазера.

С формальной точки зрения, можно не разделять вклады свободных и связанных электронов в процесс генерации ТГц излучения в газе при использовании двухчастотного оптического поля, а рассмотреть весь процесс генерации в целом в рамках формализма четырехволнового оптического выпрямления. При этом плазма оптического пробоя представляется как некая нелинейная среда со своим эффективным тензором нелинейной восприимчивости третьего порядка. Параметры этого тензора определяются эмпирически.

Именно этим подходом пользовались исследователи в первых работах по генерации ТГц излучения в плазме оптического пробоя газов полем, содержащем импульсы первой и второй гармоники титан-сапфирового лазера [45, 60, 61]. Однако, не все экспериментальные результаты, полученные в этих работах, удовлетворительно описывались в рамках модели четырехволнового смешения. В частности, величины нелинейных коэффициентов третьего порядка для атмосферных газов не позволяют объяснить наблюдаемую амплитуду ТГц импульсов [46, 62], а зависимость амплитуды ТГц импульсов от энергии возбуждающего импульса первой гармоники имели ожидаемый характер зависимости только в ограниченном диапазоне интенсивностей, выше которых наблюдался более медленный рост. Данные поляризационных измерений говорили о том, что предположение об изотропной нерезонансной среде с соответствующими свойствами тензора нелинейной восприимчивости



чивости третьего порядка неприменимо для описания процесса генерации ТГц излучения.

Вклад фотоионизации и дрейфа фотоэлектронов в процесс генерации ТГц излучения, то есть нелинейной проводимости среды, был впервые выделен в работе [46], и затем рассматривался рядом других авторов [49, 63]. Процессу формирования фототока в процессе ионизации сверхкороткими лазерными импульсами безотносительно генерации терагерцового излучения были посвящены и более ранние теоретические и экспериментальные работы как советских ([64]), так и зарубежных исследователей [65–68]. Теоретическое описание формирования фототока в этих работах, как правило, разбивалось на несколько этапов, на первом из которых электрон покидает атом в акте фотоионизации, а на втором ускоряется под действием оптического поля.

Ключевым явлением в процессе формирования фототока является ионизация. Традиционно, выделяют два режима фотоионизации лазерным излучением: туннельное (адиабатическое), при котором характерное время туннелирования электрона через потенциальный барьер под действием лазерного поля существенно меньше периода колебаний этого поля, и многофотонное, в котором ионизация - вероятностный процесс поглощения нескольких фотонов для перехода электрона из связанного состояния в континуум свободных состояний. Для разграничения этих приближений традиционно используется параметр Келдыша  $\gamma_k$ , [69], численно равный отношению внутриатомного поля приложенному внешнему полю:

$$\gamma_k = \frac{\omega}{\left(\frac{eE}{\sqrt{2m_e W}}\right)}, \quad (1.1)$$

где  $\omega$  - частота оптического поля,  $e$  и  $m_e$  - заряд и масса электрона,  $E$  - величина оптического поля,  $W$  - потенциал ионизации. При  $\gamma_k > 1$  режим ионизации многофотонный, при  $\gamma_k < 1$  - туннельный. В экспериментальных условиях, которые использовались в настоящей диссертационной работе, величина поля возбуждающего оптического излучения не всегда достигает величин, необходимых для туннельного режима ионизации. Например, при использовании импульсов длительностью 120 фс при фокусировке излучения в пятно диаметром 60 мкм и энергиях в импульсе ниже 200 мкДж, значение параметра Келдыша превышает 2. При этих энергиях, соответствующих многофотонной ионизации, уже наблюдается генерация ТГц излучения. Зависимость параметра Келдыша для 120 фс и некоторых других длительностей импульсов от энергии оптического импульса приведена на рисунке 1.1.

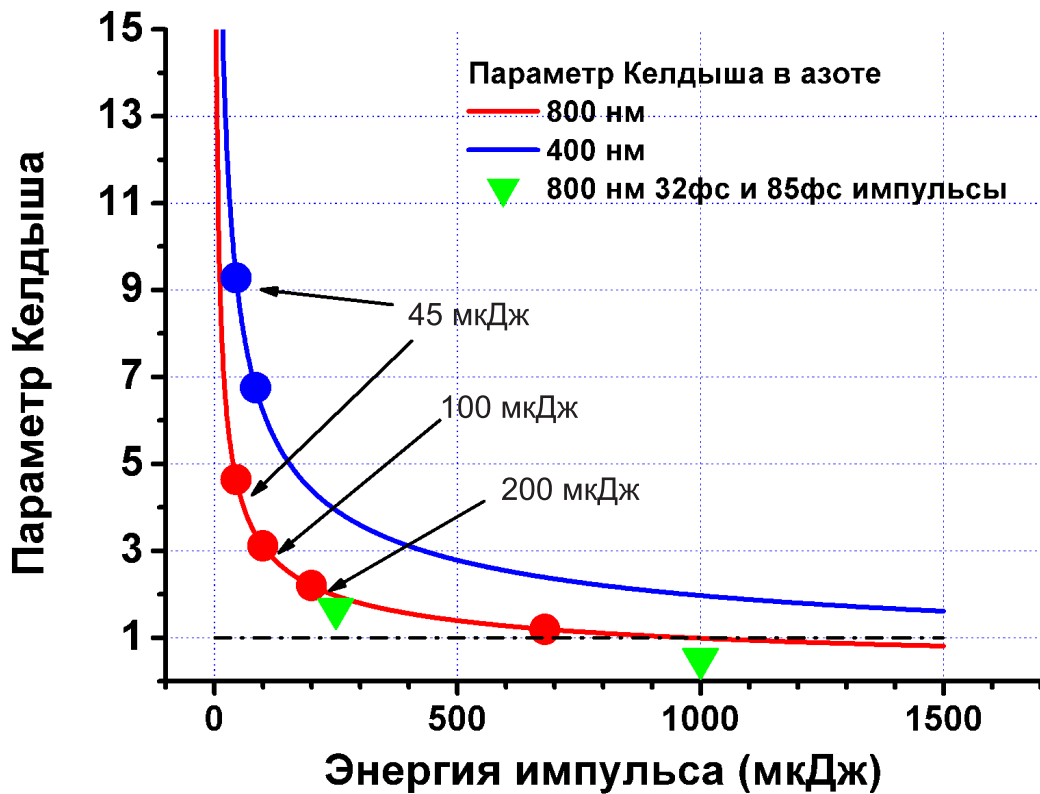


Рис. 1.1. Значения параметра Келдыша для фундаментального излучения и его второй гармоники импульсов длительностью 120 фс (красная и синяя кривая соответственно). Зелеными символами обозначены значения параметра Келдыша для импульсов 85 фс энергией 250 мкДж и 32 фс, 1000 мкДж, которые использовались в работе [70]

Из рисунка 1.1 видно, что нельзя однозначно говорить о туннельном характере ионизации для всех используемых в эксперименте энергий. Поэтому для описания формирования фототока необходимо аккуратно рассматривать процесс фотоионизации атомов полем, содержащим первую и вторую гармонику лазера в многофотонном приближении и сравнить его с приближением туннельной ионизации.

Теоретическое описание фотоионизации монохроматическим полем было детально описано Л.В. Келдышем в середине 1960х годов [69, 71, 72] и впоследствии было дополнено Файсалом и Рисом и известно в литературе под названием метода КФР. Развитием этой теоретической модели занимались также Аммосов, Делоне и Крайнов [73]. Позднее, преимущественно в работах А.М. Переломова и В.С. Попова [74], был разработан метод

мнимого времени (ММВ), который с успехом применяется к расчету фотоионизации ультракороткими лазерными импульсами [75]. Методы ММВ и КФР имеют много общего, так как в рамках КФР амплитуда фотоионизации может вычисляться методом перевала, и результат такого расчета эквивалентен тому, что получается при использовании ММВ. Развитые методы и их дополнения позволили описать большой класс явлений, связанных с фотоионизацией, в частности надпороговую ионизацию, распределение импульса фотоэлектронов и многое другое [76–78].

Тем не менее, задача фотоионизации полем, содержащим одновременно две гармоники лазерного импульса, существенно сложнее, чем таковая для монохроматического поля. Вклады первой и второй гармоники заведомо неаддитивны, и их взаимные влияния до конца не ясны. Одно из первых теоретических исследований такого процесса фотоионизации, выполненного в рамках метода мнимого времени, включающее множество частных случаев для приближений многофотонной и туннельной ионизации, можно найти в статьях И.А. Котельникова [79, 80], выполненных совместно с нашей исследовательской группой из МГУ.

Наиболее вероятный импульс фотоэлектронов, полученный в акте фотоионизации, и вычисленный в рамках ММВ, задает начальные условия для дальнейшего движения электронов плазмы, которое продолжается и после прохождения возбуждающего лазерного импульса. На этом этапе в теоретическом описании необходим переход от микроскопической задачи - описания фотоионизации - к макроскопической - описанию формирования фототока в возникающей плазме. Здесь пренебрегается распределением направления и величины импульса фотоэлектронов, они считаются однозначно задаваемыми характеристиками оптического поля. Суммирование импульсов всех свободных электронов в каждый момент времени дает фототок, производная по времени от которого определяет излучение в дальней зоне. При этом поляризация терагерцового излучения зависит в большей степени от импульса фотоэлектронов при ионизации и от направления сил, действующих на электроны со стороны лазерного поля, а спектр излучения зависит от динамики плазмы как в присутствии лазерного поля, так и после прохождения лазерного импульса.

## 1.2. Нелинейный отклик свободных электронов: двухступенчатая модель генерации ТГц излучения

Процессы, протекающие при взаимодействии **свободных электронов** в плазме оптического пробоя двухцветным фемтосекундным импульсом и приводящие к генерации терагерцового излучения, удобно разделить в теоретическом рассмотрении на два этапа. В течение первого этапа на среду воздействует лазерное излучение, происходит ионизация среды. Движение электронов среды определяется в первую очередь силами, действующими со стороны оптического поля. Электроны при этом испытывают быстрое осцилляторное движение, а также приобретают дрейфовую скорость. Последняя приводит к пространственному разделению зарядов (электроны удаляются от родительских атомов), то есть возникает макроскопическая поляризация среды. При этом в среде возбуждаются плазменные колебания, которые, однако, происходят на длительностях, значительно превышающих длительность используемого лазерного импульса (обычно используется лазерное излучение с длительностью импульса менее 150 фс). Поэтому плазменные колебания целесообразно выделить при рассмотрении в отдельный этап, в котором преобладают силы, действующие на электрон со стороны плазмы, и пренебрежимо мало поле лазерного импульса, который при этом уже покидает пределы ионизированной области.

Для описания процессов, происходящих в плазме в течение действия лазерного импульса, воспользуемся флюидной моделью плазмы, в рамках которой движение электронной жидкости подчиняется следующему уравнению [35, 39, 81]:

$$m \frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + m(\mathbf{v} \cdot \nabla) \mathbf{v} = e\mathbf{E} + \frac{e}{c} \mathbf{v} \times \mathbf{B} - \gamma m \mathbf{v}. \quad (1.2)$$

В этом выражении  $\mathbf{B}$  и  $\mathbf{E}$  обозначают магнитное и электрическое поле соответственно, а слагаемое  $-\gamma m \mathbf{v}$  - неупругие потери при столкновениях (как с ионами, так и с нейтральными атомами). Множитель  $\gamma$  является суммой частот столкновений электронов с нейтралами и с ионами:  $\gamma = \gamma_{en} + \gamma_{ei}$ . Оценки для частоты столкновений электронов с нейтралами и электронов с ионами были приведены в работе [82] как функции плотности свободных носителей заряда. Для используемых в экспериментах по генерации ТГц излучения интенсивность лазерных импульсов достигает  $10^{14} \text{Вт/см}^2$ . Существенно превысить эту интенсивность не удаётся в связи с тем, что эффекты дефокусировки на индуцированной лазерным импульсом плазме превышают геометрическую и керровскую фокусировку

и не позволяют уменьшать сечение лазерной искры или филамента [83], [84]. Для такой интенсивности лазерного импульса соотношение между частотой столкновений электронов с нейтральными частицами и электронов с ионами при длительности лазерного импульса 100 фс было приведено на графике в работе [82] (рис. 1.2).

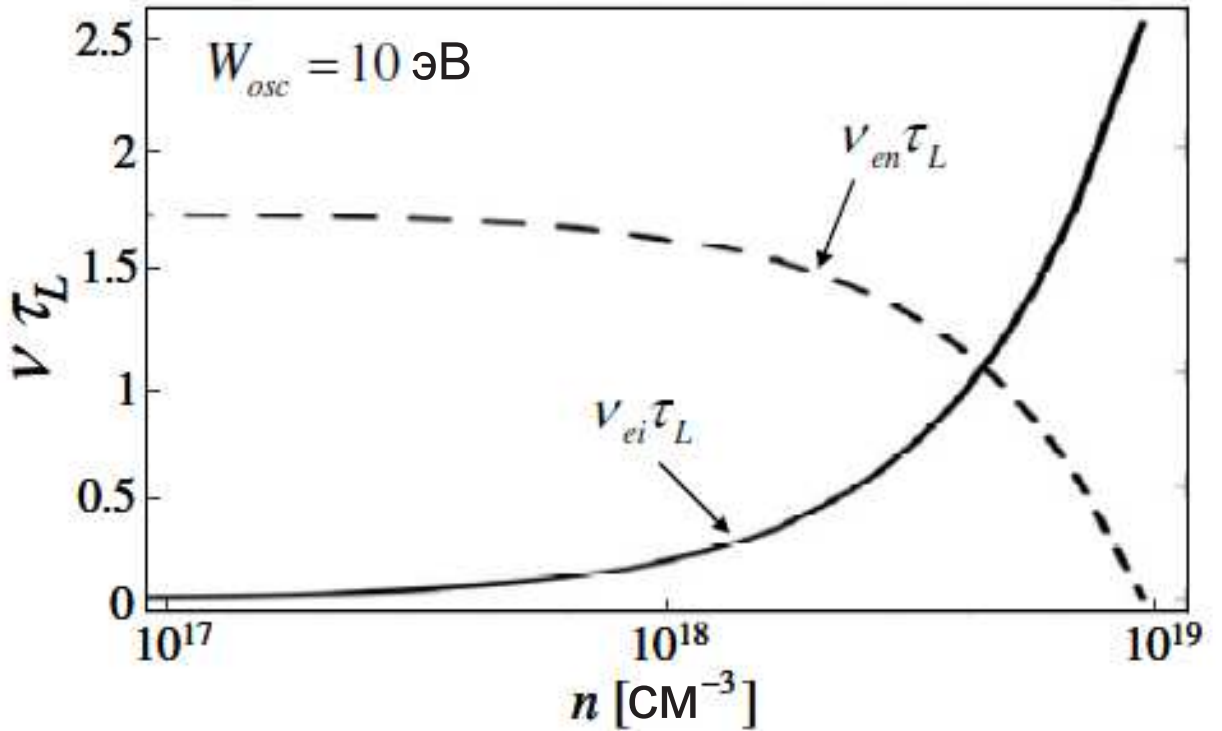


Рис. 1.2. Нормированные на длительность лазерного импульса  $\tau_l$  частоты столкновений электронов с ионами  $\nu_{ei}$  и электронов с нейтральными молекулами  $\nu_{en}$ , приведенные в статье [82] для интенсивности излучения порядка  $10^{14}$  Вт/см<sup>2</sup>.

Плотности плазмы, обычно достигаемые при ионизации газов при атмосферном давлении фемтосекундными лазерными импульсами с интенсивностью порядка  $10^{14}$  Вт/см<sup>2</sup>, обычно не превышают  $10^{17}$  см<sup>-3</sup> [85], а при фокусировке короткофокусными линзами (например, для фокусного расстояния  $F=10$  см) импульсов может достигать  $2 \cdot 10^{18}$  см<sup>-3</sup> [86]. Тем не менее, даже для этих значений плотности плазмы частота столкновений электрон-нейтрал в несколько раз превышает частоту столкновений электрон-ион, но за время действия лазерного импульса количество испытываемых столкновений мало ( $\tau_l \gamma > 1$ ). Отметим также, что при плотности плазмы  $10^{17}$  см<sup>-3</sup> период плазменных колебаний составляет  $\tau_p = 350$  фс, что существенно превышает длительность лазерного импульса. Это означает,

что выделение промежутка времени, в течение которого действует лазерный импульс, в отдельный этап, вполне оправдано.

Вернемся к уравнению (1.2). Пусть для генерации ТГц излучения используется лазерное поле, состоящее из импульсов первой и второй гармоники, распространяющееся вдоль оси  $z$ :

$$\begin{aligned}\mathbf{E}_L &= \frac{1}{2}\mathbf{E}_1 + \frac{1}{2}\mathbf{E}_2 + c.c. \\ \mathbf{E}_1 &= \mathbf{E}_\omega(t - z/v_g(\omega)) \exp[ik(\omega)z - i\omega t], \\ \mathbf{E}_2 &= \mathbf{E}_{2\omega}(t - z/v_g(2\omega)) \exp[ik(2\omega)z - i2\omega t],\end{aligned}\tag{1.3}$$

где  $v_g(\omega)$  - групповая скорость импульса с центральной частотой  $\omega$ .

В уравнении (1.2) нас будут интересовать слагаемые, позволяющие в при подстановке в качестве  $E$  двухчастотного оптического поля получить неосциллирующие решения для скорости  $v$ , что эквивалентно появлению поляризации среды на нулевой частоте (т.е. оптическому выпрямлению лазерного импульса) и, впоследствии, генерации ТГц излучения. Это, в первую очередь, градиентное слагаемое в левой части уравнения, обуславливающее так называемую пондеромоторную силу, и сила Лоренца, представляющая из себя первые два члена в правой части уравнения (1.2).

Сначала исключим из рассмотрения градиентные слагаемые и рассмотрим только действие силы Лоренца, принимая во внимание, что поля  $\mathbf{E}$  и  $\mathbf{B}$  ортогональны для оптического импульса, в первом приближении получаем скорость электрона, быстро осциллирующую во времени с частотами  $\omega$  и  $2\omega$  в направлении, ортогональном направлению распространения лазерного импульса. Второе приближение приводит к возникновению скорости электрона, направленной вдоль направления распространения импульса для любых поляризаций оптических полей, что обусловлено действием магнитной компоненты силы Лоренца.

Компонента скорости на нулевой частоте, направленная вдоль оси распространения  $z$  эквивалентна действию “медленной” силы “радиационного давления”  $G_z$ , выведенной в работах [39, 81]:

$$G_z = \frac{e^2}{2mc} \frac{\gamma |E_\omega|^2}{\gamma^2 + \omega^2} + \frac{e^2}{2mc} \frac{\gamma |E_{2\omega}|^2}{\gamma^2 + 4\omega^2},\tag{1.4}$$

где  $\gamma$  - параметр Келдыша, введенный раньше.

Подставляя продольную скорость  $v_z$  в уравнение (1.2), получаем третье приближение, также содержащее компоненты скорости на нулевой частоте, но в данном случае они уже соответствуют движению электрона перпендикулярно направлению распространения лазерного импульса. Для коллинеарных поляризаций первой и второй гармоники это соответствует низкочастотной компоненте силы, сонаправленной с поляризацией обеих гармоник:

$$G_{\parallel} = -\frac{e^3}{8m^2c^2} \frac{3\gamma^2}{(\gamma^2 + \omega^2)(\gamma^2 + 4\omega^2)} [E_{\omega}^2 E_{2\omega}^* + c.c.] \quad (1.5)$$

Для ортогональных поляризаций первой и второй гармоники низкочастотная компонента силы будет направлена вдоль поляризации второй гармоники и будет определяться выражением:

$$G_{\perp} = -\frac{e^3}{8m^2c^2} \frac{1}{(\gamma - i\omega)(\gamma - i2\omega)} [E_{\omega}^2 E_{2\omega}^* + c.c.] \quad (1.6)$$

Более подробно вывод этого выражения приведен в статье [81] нашей научной группы.

Выражения (1.5) и (1.6) описывают, по сути, нелинейный отклик третьего порядка. Под действием этих медленных компонент сил  $G_z$ ,  $G_{\parallel}$  и  $G_{\perp}$  (в предположении отсутствия других факторов), электроны в течение действия лазерного импульса будут удаляться от исходного положения в направлении, задаваемом этими силами. При этом соотношения (1.5) и (1.6) задают, соотношения между тензорными компонентами  $\chi_{1111}^{(3)}$  и  $\chi_{1221}^{(3)}$  для процесса ( $\Omega_{THz} = \omega + \omega - 2\omega$ ), обусловленного действием этих сил.

Сравнение двух поперечных компонент (1.5) и (1.6) приводит к оценке:  $G_{\parallel}/G_{\perp} \approx 3\gamma^2/2\omega^2 \ll 1$ , то есть при ортогонально поляризованных излучениях первой и второй гармоники сила, действующая на электрон и приводящая к дипольной поляризации среды, превышает аналогичную силу при параллельных поляризациях  $\omega$  и  $2\omega$ .

Продольная компонента силы  $G_z$  определяется первым слагаемым в (1.4), поскольку первая гармоника имеет намного большую интенсивность, чем вторая. Соотношение между продольной компонентой и наибольшей из двух поперечных,  $G_{\perp}$ , сводится к соотношению  $G_z/G_{\perp} = 4\gamma mc/eE_2$ . Подставим сюда величины, которых реально достигаем в экспериментальных работах: пусть газ находится при атмосферном давлении, поле первой

гармоники имеет максимальную интенсивность  $10^{14}$  Вт/см<sup>2</sup>, поле второй гармоники на порядок меньше -  $10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup>. Тогда получим оценку  $\gamma \approx \gamma_{en} = 1.3 \cdot 10^{13} c^{-1}$ ,  $G_z/G_{\perp} = 15$ , то есть “сила радиационного давления” стремится возбудить дрейфовое движение электронов вдоль направления распространения лазерного импульса.

Пондеромоторные силы появляются при рассмотрении градиентного слагаемого в левой части уравнения (1.2), а также при принятии во внимание, что магнитное поле содержит также слагаемое, пропорциональное градиенту поля:

$$\mathbf{E}_L = \frac{1}{2} E_{\omega} \mathbf{x} + c.c. \quad \mathbf{B}_L = \frac{1}{2} \frac{kc}{\omega} E_{\omega} \mathbf{y} - \frac{1}{2} \frac{ic}{\omega} \nabla E_{\omega} \times \mathbf{x} + c.c. \quad (1.7)$$

Подставляя эти выражения в (1.2) и упрощая, получаем

$$\mathbf{F} = -\frac{e^2}{4m\omega^2} \nabla |E_{\omega}|^2, \quad (1.8)$$

принимая, для простоты,  $\gamma = 0$ .

Продольная компонента пондеромоторной силы в сравнении с вышеупомянутой силой радиационного давления приводит к следующему условию:  $F_z/G_z = (v_{\omega}^2/c\tau_L) / (ev_{\omega}E_{\omega}/mc)$ . Здесь для оценки продольного градиента поля  $E$  использована длина светового импульса  $l = c\tau_L$ . При указанных выше параметрах получаем, что продольная составляющая пондеромоторной силы существенно меньше таковой для силы радиационного давления.

Соотношение между поперечными компонентами сил  $F$  и  $G$  приводит к соотношению  $F_{\perp} \ll G_{\perp}$  при

$$c(E_2^2/8\pi)\pi a^2 \gg (c/2r_e)mc^2, \quad (1.9)$$

где  $r_e = e^2/mc^2$ . Это эквивалентно условию, что  $I_{2\omega} \gg 4.4$  ГВт, которое для импульсов длительностью 120 фс означает энергию пучка второй гармоники 0.5 мДж. Для рассматриваемой в данной работе экспериментальной установки это условие не выполняется (максимально использованное значение энергии составляло 0.05 мДж), то есть из двух сил  $F$  и  $G$  преобладает пондеромоторная, заставляющая электроны двигаться по направлению к оси симметрии лазерной искры. Важно также отметить, что действие поперечной составляющей пондеромоторной силы не приводит к появлению дипольной поляризации в плазменном облаке, так как эта сила обладает свойством аксиальной симметрии.



Таким образом, в течение действия лазерного импульса на свободные электроны плазмы действуют силы  $F$  и  $G$ , приводящие к смещению электронов относительно первоначального положения, т.е. к поляризации среды.

Тем не менее, действие этих сил не исчерпывает факторы, приводящие к поляризации среды в течение лазерного импульса. В этом рассмотрении не был учтён акт фотоионизации, то есть переход электронов из связанного состояния в свободное. Рассмотрение этого процесса важно потому, что оно определяет временную зависимость количества свободных электронов, участвующих в процессе генерации ТГц излучения, а также начальную скорость, которую приобретают фотоэлектроны, то есть в некотором смысле задает начальные условия для описания поляризации среды на низких частотах.

Поскольку момент фотоионизации  $t'$  для каждого электрона может быть различным, и в дальнейшем они ускоряются быстро осциллирующим двухцветным полем, скорости различных электронов в любой выбранный момент времени  $t > t'$  будут отличаться. Средний импульс электронов, эквивалентный плотности фототока, получается при суммировании скоростей всех электронов:

$$\mathbf{J}(t) = e \int_{-\infty}^t \mathbf{v}_e(t, t') \frac{dN_e(t')}{dt'} dt', \quad (1.10)$$

где  $dN_e(t')$  описывает число электронов, рождаемых в момент времени  $t'$ , а их общая объемная плотность в момент времени  $t$  составляет  $N_e(t)$ . В этом уравнении  $\mathbf{v}_e(t, t')$  - скорость в момент времени  $t$  электрона, покинувшего атом в момент времени  $t'$ . Предполагается, что до появления оптического импульса плотность свободных электронов равна нулю.

Для того, чтобы связать между собой функции  $N_e(t)$ ,  $\mathbf{v}_e(t, t')$  для различных режимов ионизации двухчастотным лазерным импульсом, необходимо детальное рассмотрение процесса фотоионизации таким импульсом. Мы отложим на некоторое время этот вопрос, а пока рассмотрим вторую стадию процессов, происходящих в плазме после завершения лазерного импульса.

В отсутствие лазерного поля уравнение движения электрона, очевидно, подчиняется классическим уравнениям движения и уравнению непрерывности.

$$\frac{\partial^2 \boldsymbol{\xi}}{\partial t^2} + \gamma \frac{\partial \boldsymbol{\xi}}{\partial t} = \frac{e}{m} \mathbf{E}$$

$$\frac{\partial \delta n_e}{\partial t} + \nabla \cdot \left( n_e \frac{\partial \boldsymbol{\xi}}{\partial t} \right) = 0. \quad (1.11)$$

В данной системе уравнении  $\mathbf{E}$  - это уже не быстро осциллирующее лазерное поле, а поляризационное поле, возникающее вследствие пространственного разделения положительных и отрицательных зарядов, а где  $\boldsymbol{\xi}$  - вектор смещения электрона относительно начального положения.

Начальные условия для этих уравнений, описывающего вторую стадию процессов, происходящих в плазме, определяются средней скоростью электронов, которую они приобретают к окончанию первой стадии.

$$\boldsymbol{\xi} = 0$$

$$\frac{\partial \boldsymbol{\xi}}{\partial t} = \int_{-\infty}^{t^*} \mathbf{f}(\tau)/m d\tau + \frac{\mathbf{J}(t^*)}{e} = \mathbf{V}_0 \quad (1.12)$$

в момент времени  $t = 0$ . В этом выражении  $\tau = t^*$  - условно принимаемое время окончания действия лазерного импульса, то есть время завершения первого этапа, а  $\mathbf{J}(t^*)$  - ток фотоэлектронов, введенный в выражении (1.10), в этот же момент времени, и  $\mathbf{f}(t)$  - сумма описанных выше медленных сил  $\mathbf{F}$  и  $\mathbf{G}$ , действующих на электроны со стороны лазерного поля. Обозначение начального условия на производную  $\mathbf{V}_0$  введено для удобства его дальнейшего использования. Заметим, что для интеграла в правой части выражения (1.12) предел интегрирования можно беспрепятственно заменить на бесконечность.

Данное уравнение движения при указанных начальных условиях имеет точное решение:

$$\boldsymbol{\xi} = \frac{e^{-\gamma(t-z/v_g)/2}}{\sqrt{\omega_p^2 - \gamma^2/4}} \sin \left[ \sqrt{\omega_p^2 - \frac{\gamma^2}{4}} \cdot \left( t - \frac{z}{v_g} \right) \right] \mathbf{V}_0. \quad (1.13)$$

Для того, чтобы от этого решения перейти к дипольному излучению в дальней зоне (т.е. наблюдаемому терагерцовому излучению), необходимо из решений для двух стадий

сформировать функцию зависимости тока от времени  $\mathbf{J}(t)$ . Для получения спектра излучаемого импульса делается преобразование Фурье производной этого выражения по времени. Спектральная интенсивность излучения фототока пропорциональна квадрату найденной величины.

Направление вектора  $\mathbf{J}$  определяет плоскость поляризации излучения. Таким образом, ключевую роль в определении свойств излучения играет восстановление функции  $\mathbf{J}(t)$  в течение действия лазерного импульса. Важно, кроме этого, установить соотношение между импульсом, который сообщают электрону “медленные” силы  $\mathbf{f}$ , и импульсом, который приобретают электроны при фотоионизации, так как именно наибольшая из этих двух величин задаёт поляризацию излучения.

Скорость, которую получает фотоэлектрон после завершения лазерного импульса, в общем случае зависит от конкретного момента времени, в который он покинул атом. Чтобы показать это, достаточно рассмотреть классическое движение электрона под действием силы Лоренца при условии его появления в некоторый момент времени в начале координат с фиксированным (например, нулевым) значением скорости. Для того, чтобы удовлетворить данным начальным условиям, скорость электронов как функция от времени будет представлять сумму осциллирующего на частоте оптического поля члена и постоянной, или дрейфовой составляющей. Величина этой дрейфовой составляющей будет зависеть от момента времени появления электрона. Очевидно при этом, что если оптический импульс содержит лишь фундаментальную гармонику лазерного излучения, и при этом импульс не является предельно коротким (содержащим малое количество колебаний поля), то средняя по всем электронам, рожденным в различные моменты времени, дрейфовая скорость будет равна нулю. Скорости электронов, рожденных на “положительных” максимумах оптического поля будут компенсироваться скоростями электронов, рожденных на “отрицательных” максимумах.

Поле двухцветного лазерного импульса, наоборот, является асимметричным. Это приводит к тому, что интегрирование по всем фотоэлектронам, рожденным во время импульса, не приводит к нулевому результату. Более того, результат будет существенно зависеть от разности фаз между полями первой и второй гармоники внутри огибающей лазерного импульса. Для примера приведем двухчастотное лазерное поле, в котором поляризации первой и второй гармоники одинаковы.

Для простоты будем считать, что подавляющее число электронов перетяжки рож-

дается в процессе туннельной ионизации, и что начальная скорость фотоэлектронов в момент покидания атомов равняется нулю (например, работы [46, 49, 66]). В этом приближении вероятность туннельной фотоионизации зависит только от мгновенного значения электрического поля в данный момент времени и для нее можно получить точное значение. Вероятность фотоионизации в туннельном приближении записывается в виде [87]

$$w(t) = 4\omega_a \left( \frac{U_{O_2}}{U_H} \right)^{5/2} \frac{E_a}{E_L(t)} \exp \left[ -\frac{2E_a}{3E_L(t)} \left( \frac{U_{O_2}}{U_H} \right)^{3/2} \right], \quad (1.14)$$

где  $\omega_a$ ,  $E_a$  - атомные единицы частоты и поля,  $U_H$  и  $U_{O_2}$  - потенциалы ионизации атома водорода и молекулы кислорода (наиболее легко ионизируемого компонента воздуха), и  $E_L(t)$  - величина оптического поля в момент времени  $t$ , в качестве которой можно подставлять длину вектора  $\mathbf{E}$ , заданного выражениями (1.3).

Дальнейшее движение электронов будет подчиняться действию силы Лоренца. Пользуясь этим, можно получить, что средняя дрейфовая скорость электрона, приобретаемая в процессе фотоионизации, по порядку может достигать скорости осцилляторного движения электрона в поле лазерного импульса. Это значит, что в выражении (1.13) доминирующим начальным условием будет именно дрейф электрона, обусловленный фотоионизацией. Поляризация ТГц излучения будет задаваться направлением вектора  $\mathbf{J}$ , а спектр - как динамикой ионизации (функцией  $n_e(t)$ ), так и плазменной частотой и частотой столкновений, что следует из выражения (1.13). Поэтому, для понимания свойств терагерцового излучения, необходимо более подробно рассмотреть процесс фотоионизации газа для различных практически значимых частных случаев. Поскольку процесс фотоионизации является нелинейным, вклады первой и второй гармоники в него являются заведомо неаддитивными. Ввиду того, что как в многофотонном, так и в туннельном приближении вероятность фотоионизации (и, соответственно, количество свободных электронов) является быстро растущей функцией амплитуды оптического поля, вклад процесса ионизации и связанного с ней фототока не совсем корректно описывать в рамках формализма нелинейности третьего порядка. Амплитуда фототока, обусловленного фотоионизацией, не является функцией нужной степени от амплитуд полей  $E_\omega$  и  $E_{2\omega}$ .

### 1.3. Начальный импульс фотоэлектронов в рамках метода мнимого времени (ММВ) в туннельном и многофотонном приближении

Наиболее полное рассмотрение процесса фотоионизации двухчастотным лазерным импульсом в рамках ММВ, включающее множество частных случаев для приближений многофотонной и туннельной ионизации, можно найти в статьях И.А. Котельникова [79, 80], выполненных совместно с нашей исследовательской группой из МГУ. В этом разделе приводятся лишь основные результаты исследования: наиболее вероятный импульс фотоэлектронов и вероятность фотоионизации в зависимости от параметров ионизирующего оптического поля.

Рассмотрим взаимодействие полей первой и второй гармоники, поляризованных линейно под углом  $\theta$  друг к другу

$$\begin{aligned} E_x &= E_1 \cos(\omega t) + E_2 \cos \theta \cos(2\omega t + \phi), & E_y &= E_2 \sin \theta \cos(2\omega t + \phi) \\ E_2/E_1 &= \epsilon, & \gamma &= \sqrt{\frac{2I}{m}} / \frac{eE_1}{m\omega}, \end{aligned} \quad (1.15)$$

где  $I$  - потенциал ионизации атома,  $\gamma$  - так называемый параметр Келдыша, численно равный отношению внутриатомного поля к приложенному внешнему полю. Этот параметр характеризует характер ионизации: при  $\gamma > 1$  режим ионизации многофотонный, при  $\gamma < 1$  - туннельный. Поле первой гармоники поляризовано вдоль оси  $x$ , поле второй гармоники - под углом  $\theta$  к этой оси, направление распространения излучения двух пучков совпадает с осью  $z$ .  $\psi$  - фазовый сдвиг между полями первой и второй гармоники.

В предположении малости амплитуды второй гармоники по сравнению с первой гармоникой ( $E_2/E_1 = \epsilon \ll 1/\gamma \ll 1$ ) и многофотонного приближения в рамках метода мнимого времени можно получить следующие значения проекций наиболее вероятных скоростей электронов (см. формулы (28), (36), (38) в работе [79], а также работу [88]):

$$\begin{aligned} v_x &= \frac{\epsilon\gamma^2}{2(\ln(2\gamma) - 1)} \frac{eE_1}{m\omega} \cos \theta \sin \phi, \\ v_y &= -\frac{\epsilon\gamma^2}{2\ln(2\gamma)} \frac{eE_1}{m\omega} \sin \theta \sin \phi. \end{aligned} \quad (1.16)$$

Тогда направление фототока (и поляризации ТГц излучения) задается углом

$$\beta_{THz} = \arctg v_y/v_x = -\arctg \left( \frac{\ln 2\gamma}{\ln 2\gamma - 1} \tan \theta \right) \quad (1.17)$$

И множитель, отвечающий за вероятность фотоионизации

$$w_i \propto \exp \left[ -\frac{2I}{\hbar\omega} \ln(2\gamma) - \frac{1}{2} - \frac{2}{3} \epsilon \gamma |\cos \theta \cos \phi| \right]. \quad (1.18)$$

Для туннельной ионизации ( $\gamma < 1$ ) при аналогичной конфигурации полей накачки будем иметь следующее направление вектора скорости фотоэлектронов:

$$\begin{aligned} v_x &= \frac{3\epsilon e E_1}{2 m \omega} \cos \theta \sin \phi, \\ v_y &= -\frac{\epsilon e E_1}{2 m \omega} \sin \theta \sin \phi. \end{aligned} \quad (1.19)$$

Фотоионизация будет определяться множителем

$$w_i \propto \exp \left[ -\frac{2I}{\hbar\omega} \frac{2\gamma}{3} [1 - \epsilon \cos \theta \cos(\pi k + \phi)] \right] \quad (1.20)$$

Направление импульса фотоэлектронов и поляризации ТГц излучения в этом приближении, в отличие от случая многофотонной ионизации, не будет зависеть от параметра Келдыша:

$$\beta_{THz} = \arctg \alpha_y/\alpha_x = -\arctg \left( \frac{1}{3} \tan \theta \right) \quad (1.21)$$

Направления фототока, обусловленного туннельной и многофотонной ионизацией, описываемые выражениями (1.17) и (1.21), построены на рисунке 1.3. Анализ графиков позволяет сделать несколько выводов. Во-первых, как для многофотонной, так и для туннельной ионизации вектор поляризации ТГц излучения и вектор поляризации второй гармоники лежат по разные стороны от вектора поляризации первой гармоники (т.е. оси  $x$ ). Этот результат не согласуется с результатом, ожидаемым для генерации ТГц излучения посредством четырехволнового взаимодействия в изотропной среде. Во-вторых, для многофотонной ионизации направление фототока и поляризации ТГц излучения  $\beta_{THz}$  зависит от интенсивности первой гармоники (т.е. параметра Келдыша), чего не наблюдается в приближении туннельной ионизации и для нейтралов в изотропной нерезонансной среде (речь об этом пойдет ниже в этой главе). В-третьих, для обоих приближений результат не зависит от разности фаз  $\phi$  между полями первой и второй гармоники.

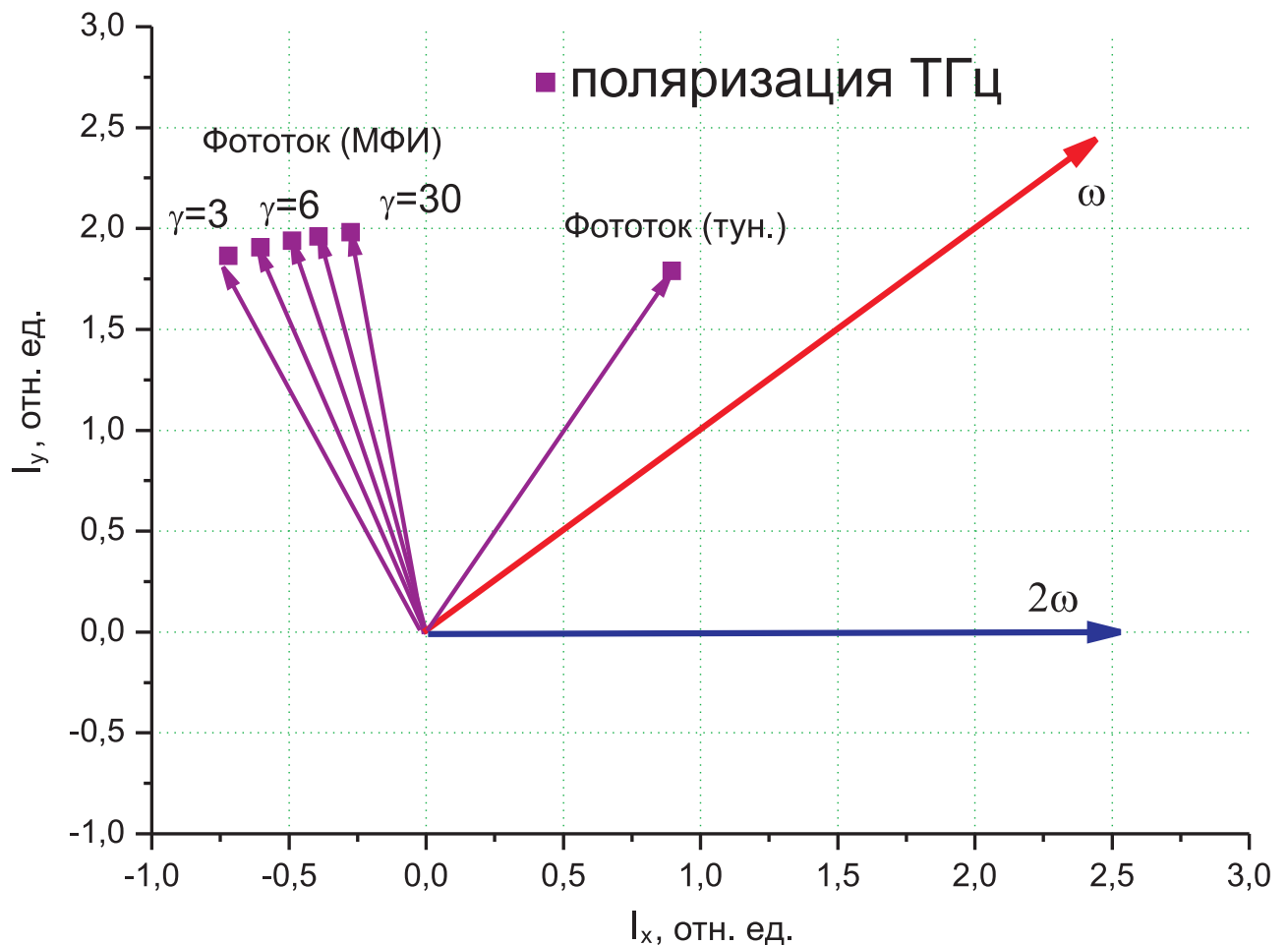


Рис. 1.3. Поляризации оптического излучения и начального импульса фотоэлектрона, рассчитанные с использованием выражений (1.17) и (1.21).

Результат численного моделирования фототока в случае интегрирования решения уравнений движения под действием силы Лоренца с использованием простейшей модели туннельной ионизации (1.14), как это выполнялось в работах [46, 49, 66]), для поляризаций, направленных под углом  $45^\circ$  друг к другу, показан на рис. (1.4). Для оптимальной разности фаз ( $\phi = 90$ ), при которой достигается наибольшая величина фототока и интенсивность ТГц излучения, направление поляризации совпадает с направлением, полученным при рассмотрении процесса фотоионизации в рамках ММВ (см. выражения (1.21) и рисунок 1.3 ).

Для циркулярной поляризации излучения первой гармоники и линейно поляризованного излучения второй гармоники модель ММВ не разработана, однако, в туннельном приближении, можно снова воспользоваться интегрированием уравнений движения под

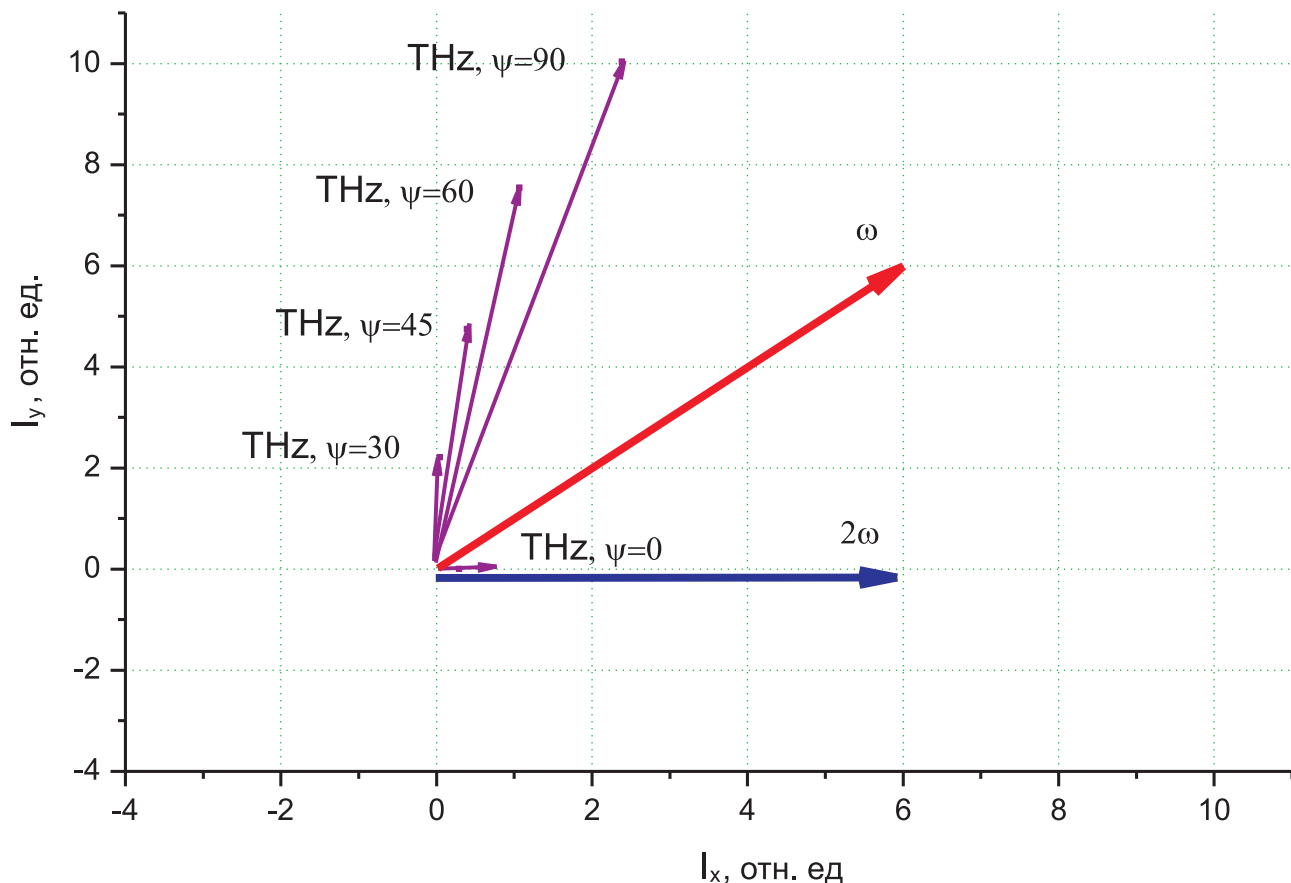


Рис. 1.4. Поляризации оптического излучения и излучаемого ТГц импульса, рассчитанные путем интегрирования уравнений Лоренца с начальными условиями нулевого импульса в момент фотоионизации, вероятность которой задается выражением (1.14). Расчет проведен для угла  $45^\circ$  между линейными поляризациями пучков  $\omega$  и  $2\omega$ .

действием силы Лоренца с условием нулевого начального импульса фотоэлектрона и туннельного характера фотоионизации ([66]). В рассмотренном случае импульс фотоэлектронов (и поляризация ТГц излучения) имеет постоянную величину при любых значениях разности фаз  $\phi$  между оптическими полями, но его направление различно для всех значений  $\phi$ . Таким образом, в рамках данной модели мы приходим к выводу, что можно управлять направлением линейной поляризации ТГц излучения путем управления разностью фаз между гармониками, и при этом интенсивность ТГц излучения может оставаться постоянной. Этот вывод является привлекательным для практических применений дистанционного ТГц зондирования при доставке лазерного излучения в длинном филаменте. В работе [89] было показано, что филаменты, появляющиеся под действием импульсов с поляризацией, близкой к циркулярной, более однородны и имеют больший диаметр и более



высокую интенсивность, чем филаменты, образуемые импульсами с близкой к линейной поляризацией. Таким образом, в схеме с циркулярно поляризованным излучением первой гармоники можно одновременно добиваться высоких интенсивностей возбуждающего излучения и управляемой поляризации генерируемого ТГц поля.

#### 1.4. ТГц излучение в дальней зоне

Дипольное излучение в дальней зоне, индуцированное медленным движением электронов плазмы, определяется производной тока свободных электронов по времени. При этом спектральная интенсивность излучения после преобразования Фурье по времени и по пространству приобретает вид

$$\frac{d\epsilon}{d\Omega d\vartheta} = \frac{\Omega^2}{4\pi c^3} |\mathbf{n} \times \mathbf{J}_{\Omega, \mathbf{k}}|^2, \quad (1.22)$$

где  $\Omega$  - частота испускаемого в телесный угол  $d\vartheta$  излучения,  $\mathbf{n}$  - единичный вектор в направлении излучения, а  $\mathbf{J}_{\Omega, \mathbf{k}}$  - Фурье-образ тока  $\mathbf{J}(\mathbf{r}, t)$  по пространству и времени:

$$\mathbf{J}_{\Omega, \mathbf{k}} = \int dt d^3r e^{i\Omega t - i\mathbf{k}\mathbf{r}} \mathbf{J}(\mathbf{r}, t). \quad (1.23)$$

Здесь предполагается, что частота  $\Omega$  положительная, и в (1.22) принято, что  $|\mathbf{J}_{\Omega, \mathbf{k}}| = |\mathbf{J}_{-\Omega, -\mathbf{k}}|$ .

В работе нашей группы [81] спектральный и угловой состав излучения был проанализирован в предположении, что разделение зарядов в лазерной искре происходит исключительно за счет действия медленных сил  $\mathbf{f} = \mathbf{F} + \mathbf{G}$ . Кроме того, для получения аналитического выражения для излучения в дальней зоне было принято, что излучающая область имеет форму цилиндра, а сила  $\mathbf{f}$  действует с постоянной амплитудой в течение длительности лазерного импульса  $\tau_L$ . Итоговое выражение было получено с учетом изменения фазы  $\psi$  между первой и второй гармоникой за счет дисперсии в воздухе и плазменном облаке.

Опуская множители, ответственные за спектр излучения, приведем множитель, ответственный за направленность и фазовые зависимости [81]:

$$\begin{aligned}
& \frac{d\epsilon}{d\Omega d\phi} = \\
& = \left( \left[ \operatorname{sinc} \left( \frac{\Omega L}{c} \sin^2 \frac{\Theta}{2} + \frac{\Delta k_p L}{2} \right) - \operatorname{sinc} \left( \frac{\Omega L}{c} \sin^2 \frac{\Theta}{2} - \frac{\Delta k_p L}{2} \right) \right]^2 \cos^2 \phi + \right. \\
& \left. + \left[ \operatorname{sinc} \left( \frac{\Omega L}{c} \sin^2 \frac{\Theta}{2} + \frac{\Delta k_p L}{2} \right) + \operatorname{sinc} \left( \frac{\Omega L}{c} \sin^2 \frac{\Theta}{2} - \frac{\Delta k_p L}{2} \right) \right]^2 \sin^2 \phi \right) \cdot \\
& \cdot |\mathbf{n} \times \mathbf{f}_0|^2,
\end{aligned} \tag{1.24}$$

где  $\Delta k_p$  - разность между модулями волновых векторов для первой и второй гармоники (предполагается, что она одинакова во всей излучающей области),  $L$  - длина излучающей области и  $\Theta$  - угол между направлением наблюдения и направлением распространения оптического импульса.

Если при выводе этой формулы учитывать импульс фотоэлектронов, приобретаемый при ионизации, то вместо силы  $\mathbf{f}$  в эту формулу следует подставить вектор  $\mathbf{f}' = \mathbf{f} + m\mathbf{J}(t^*)/e\tau_L$ . Таким образом, направление излучения будет определяться наибольшим из вкладов в дрейфовый импульс электронов плазмы (медленными силами или импульсом, приобретаемым при фотоионизации). Поляризация излучения при этом задается направлением данного вектора.

Если  $\mathbf{f}'$  направлен ортогонально направлению распространения оптического импульса (и при этом не имеет аксиально-симметричного характера, как в случае поперечной подемоторной силы), то угловое распределение низкочастотного излучения имеет ряд максимумов, направления которых задаются выражением  $2L \sin^2 \theta / 2N \lambda_{THz}$ , где  $\lambda_{THz} = 2\pi c / \Omega$ , угол  $\theta$  - это угол, под которым наблюдается излучения, а  $\alpha$  - азимутальный угол вращения относительно оси распространения оптического пучка, отсчитываемый от направления вектора  $\mathbf{f}'$ , и  $N$  - целые положительные числа. При этом наибольшую амплитуду имеет максимум, направленный вдоль направления распространения лазерного импульса ( $N = 0$ ), а угловое распределение описывается выражением  $(1 - \sin^2 \alpha \sin^2 \theta) \operatorname{sinc}^2(\Omega L \sin^2(\theta/2)/c)$  (то есть, основная часть энергии излучения идёт в нулевой максимум), и поляризация излучения линейна.

Если  $\mathbf{f}'$  направлен вдоль направления распространения оптического импульса, в нулевом максимуме углового распределения (т.е. вдоль оси распространения лазерного импульса) энергии не содержится, а основная её часть идет в максимум с  $N = 1$ . Угловая зависимость теперь описывается выражением  $\sin^2 \theta \operatorname{sinc}^2(\Omega L \sin^2(\theta/2)/c)$ . При этом мак-

симум интенсивности достигается для угла  $\theta \approx \sqrt{2\lambda/L}$ .

## 1.5. Нелинейная поляризация нейтральных молекул среды

Второй важный вклад в процесс генерации излучения в ТГц диапазоне при взаимодействии импульсов первой и второй гармоники в газовой среде, есть нелинейный отклик третьего порядка **связанных электронов** в нейтральных молекулах среды. Дело в том, что общая доля ионизированных молекул даже при жесткой фокусировке импульсов с большими энергиями (см. работу [86]) не достигает 10% от общего числа молекул газа. Поэтому вклад связанных электронов в оставшихся 90% молекул в нелинейную поляризацию среды не следует исключать из рассмотрения. Анализ этого механизма можно провести в рамках феноменологической модели четырехволнового взаимодействия. Если считать нелинейную среду изотропной и пренебречь пространственной и временной дисперсией, то тензор диэлектрической восприимчивости третьего порядка, выведенный в работе [90], существенно упрощается и приходит к виду:

$$\hat{\chi}_{ijkl}^{(3)}(t_1, t_2, t_3) = \chi_0 \delta(t_1) \delta(t_2) \delta(t_3) [\delta_{ij} \delta_{kl} + \delta_{ik} \delta_{jl} + \delta_{il} \delta_{jk}]. \quad (1.25)$$

В этом выражении  $\chi_0$  - это константа,  $\delta(t)$  - функция Дирака, а  $\delta_{ij}$  - оператор Кронекера. В этом случае нелинейная поляризация среды записывается в виде [91]:

$$\begin{aligned} \mathbf{P}_i(t) &= \int_0^\infty \int_0^\infty \int_0^\infty \hat{\chi}_{ijkl}^{(3)}(t_1, t_2, t_3) \mathbf{E}_j(t-t_1) \mathbf{E}_k(t-t_2) \mathbf{E}_l(t-t_3) dt_1 dt_2 dt_3 = \\ &= \chi_0 \mathbf{E}_j(t) \mathbf{E}_k(t) \mathbf{E}_l(t). \end{aligned} \quad (1.26)$$

Пусть оптическое излучение распространяется вдоль оси  $z$ , и содержит импульс второй гармоники, линейно поляризованный вдоль оси  $x$ , и в общем случае эллиптически поляризованный импульс первой гармоники:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_x(t) &= E_\omega(t) \cos \psi \cos \omega t + E_{2\omega}(t) \cos(2\omega t + \phi_2) \\ \mathbf{E}_y(t) &= E_\omega(t) \sin \psi \cos \omega t + E_{2\omega}(t) \cos(2\omega t + \phi_2). \end{aligned} \quad (1.27)$$

Здесь  $E_\omega(t)$  и  $E_{2\omega}(t)$  - огибающие импульсов первой и второй гармоники,  $\phi_2$  - разность фаз между полями двух гармоник,  $\phi_1$  - разность фаз между компонентами поляризации первой гармоники, отвечающая за её эллиптичность, и  $\psi$  - угол между поляризациями двух гармоник.

Рассмотрим нелинейную поляризацию на терагерцовой частоте (процесс  $0 = 2\omega - \omega - \omega$ ) при линейно поляризованном поле первой гармоники ( $\phi_1 = 0$  в выражении (1.27)):

$$\begin{aligned} P_y^{0\omega}(t) &= \frac{\chi_0}{4} E_\omega^2(t) E_{2\omega}(t) \cos \phi_2 \sin 2\psi \\ P_x^{0\omega}(t) &= \frac{\chi_0}{4} E_\omega^2(t) E_{2\omega}(t) \cos \phi_2 (2 + \cos 2\psi) \end{aligned} \quad (1.28)$$

В рамках данного формализма излучение в дальней зоне пропорционально второй производной поляризации (1.28) по времени. Отсутствие гармонического множителя вызвано кратностью частот возбуждающих полей  $\omega$  и  $2\omega$ . Математически терагерцовый импульс возникает при двукратном дифференцировании этих слагаемых по времени, то есть временная форма импульса представляет собой вторую производную огибающей оптического импульса (в простейшем случае - гауссовой функции). Поэтому вне зависимости от фазовых соотношений между возбуждающими импульсами временная форма ТГц импульса вдоль двух взаимно ортогональных проекций поляризации полностью идентична, то есть поляризация излучения для данных приближений о нелинейной среде (нелинейная восприимчивость имеет нерезонансный характер и соответствует изотропной среде, а также не рассматриваются эффекты, связанные с протяженностью источника и интерференцией ТГц излучения от различных участков источника) принципиально линейна. В этом и заключено существенное отличие генерации ТГц излучения от других нелинейно-оптических процессов того же порядка, в которых тип поляризации определяется фазовыми соотношениями между возбуждающими полями.

Для всех углов  $\psi$  между поляризациями первой и второй гармоники от 0 до 90° вектор поляризации ТГц излучения лежит между векторами поляризации первой и второй гармоники. Зависимость угла между направлениями поляризации ТГц излучения и второй гармоники от угла  $\psi$  показана на рисунке 1.5. На этом же графике построено направление поляризации излучения, получаемое в рамках фототоковой модели с учётом туннельной ионизации, построенное с использованием выражений (1.21), (1.17).

Видно, что поляризация ТГц излучения, описываемого в рамках трех различных моделей и изображенная на рисунках 1.3, 1.4 и 1.5, существенно различается. Для механизма, обусловленного нелинейной поляризацией среды, то есть связанными электронами, для большинства значений фазы  $\psi$  поляризация ТГц излучения лежит между векторами  $E_\omega$  и  $E_{2\omega}$ . Поляризация фототока свободных электронов в туннельном и многофотонном

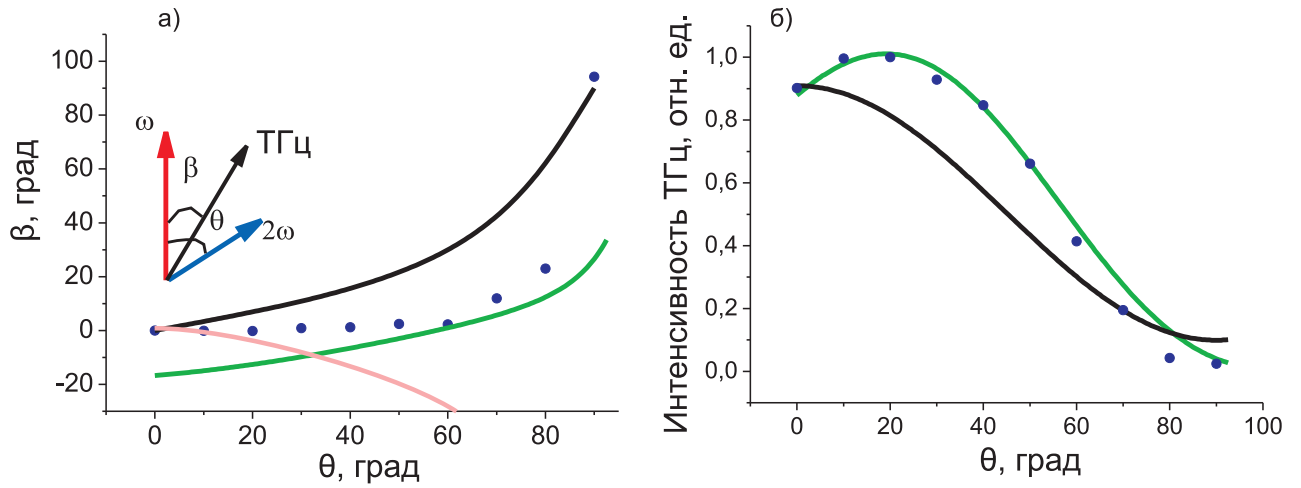


Рис. 1.5. Угол  $\beta$  между поляризациями второй гармоники и терагерцового излучения (а) и интенсивность ТГц излучения (б) в зависимости от угла  $\psi$  между поляризациями первой и второй гармоник для различных теоретических моделей: розовым цветом - фототоковая модель в приближении туннельной ионизации; черным - модель четырехволнового выпрямления в среде без дисперсии. Зеленым показана зависимость, построенная по эмпирическим тензорным коэффициентам, приведенным в статье [61]. Синими точками показана экспериментальная зависимость, полученная в ходе выполнения диссертационной работы.

приближении, напротив, лежит за пределами угла, ограниченного векторами  $E_\omega$  и  $E_{2\omega}$ . Кроме того, фаза  $\psi$ , оптимальная для генерации за счет фототока свободных электронов (выражения (1.18), (1.20)) и нелинейной поляризации связанных электронов в нейтралах различается на  $\pi/2$ .

Поскольку поляризация ТГц излучения для моделей четырехволнового выпрямления и фототока в туннельном и многофотонном приближении различна, появляется необходимость экспериментального исследования поляризации и проверки, какая из этих моделей наиболее хорошо описывает наблюдаемые параметры ТГц излучения.

Далее рассмотрим случай взаимодействия циркулярно поляризованного излучения первой гармоники и линейно поляризованного излучения второй гармоники ( $\phi_1 = \pi/2$  и  $\psi = \pi/4$  в выражении (1.27)). Поляризация на терагерцовой частоте будет записана следующим образом:

$$\begin{aligned} P_y^{0\omega}(t) &= -\frac{\chi_0}{2} E_\omega^2(t) E_{2\omega}(t) \sin \phi_2 \\ P_x^{0\omega}(t) &= \frac{\chi_0}{2} E_\omega^2(t) E_{2\omega}(t) \cos \phi_2 \end{aligned} \quad (1.29)$$

Как и в случае двух линейных поляризаций, излучение в дальней зоне пропорционально второй производной поляризации по времени. Кроме того, нужно обратить внимание на то, что поляризация ТГц излучения в данной конфигурации полей также *линейна*, а её направление зависит от разности фаз  $\phi_2$  между полями первой и второй гармоники. Такой результат возможен только для вырожденного смещения частот, поскольку в ином случае последние сомножители в обоих выражениях (1.29) содержали бы в аргументе синуса и косинуса еще и ненулевую комбинационную несущую частоту, и поляризация излучения была бы циркулярной.

Помимо рассмотренной в данной главе нелинейности третьего порядка, обусловленной откликом безынерционной керровской нелинейностью связанных электронов, не исключается возможность существования резонансного вклада в тензор нелинейной восприимчивости третьего порядка. Это связано, в частности, с вращением молекул под действием оптического поля. Эта компонента рамановского отклика среды, будучи запаздывающей, тем не менее влияет на свойства распространяющегося в ней фемтосекундного лазерного импульса. В частности, в работе [92] приведен расчет влияния вращательной нелинейности на спектр распространяющегося лазерного импульса, в ряде работ (например, [92, 93]) исследуется двулучепреломление газа, вызванное возбуждением вращательных уровней фемтосекундным импульсом накачки, а в [94] рассматривается влияние и колебательных, и вращательных переходов на генерацию суперконтинуума для ультракоротких импульсов. Временные зависимости вкладов безынерционной нелинейности связанных электронов и запаздывающего отклика вращательных уровней наглядно показаны на графике, приведенном в работе [93] (см. рис. 1.6).

Из графика видно, что временной масштаб, на котором проявляется вклад вращательной составляющей нелинейности, составляет порядка 100-150 фс, а по амплитуде он даже превышает безынерционную нелинейность для процесса наведенного двулучепреломления. Это означает, что данный вклад в нелинейную поляризацию также может быть важным при генерации ТГц излучения с использованием оптических импульсов длительностью порядка 100 фс.

## 1.6. Выводы по главе 1

В данной (частично обзорной) главе на основании анализа теоретических зависимостей было показано, что ориентация эллипса поляризации терагерцового излучения, воз-

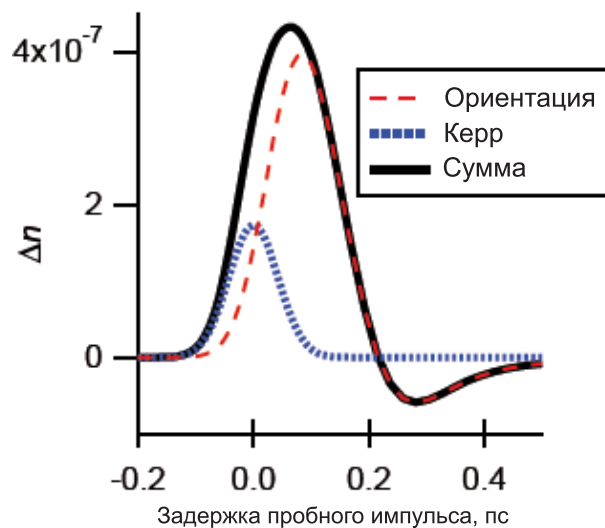


Рис. 1.6. Временная динамика наведенного двулучепреломления, обусловленного безынерционным Керровским откликом связанных электронов (синяя кривая), запаздывающим откликом вращательных переходов (красная кривая) и их суммы (черная кривая).

никающего при взаимодействии фемтосекундных импульсов первой и второй гармоник титан-сапфирового лазера с газовой-плазменной средой, определяется взаимным соотношением её проводимости и нелинейной поляризации.

## Глава 2

# Терагерцовый спектрометр-поляриметр с независимым управлением пучками первой и второй гармоники лазерного излучения

## 2.1. Введение

Данная глава посвящена созданию терагерцового спектрометра-поляриметра, позволяющего проводить измерения поляризационных и пространственных характеристик терагерцового излучения, его спектра, а также поляризации второй и третьей гармоник лазерного излучения, возникающих в плазме оптического пробоя.

Как было показано в предыдущей главе, поляризация ТГц излучения зависит от соотношений между поляризациями, фазами и амплитудами полей на частоте первой и второй гармоники лазера. Более того, вклады связанных и свободных электронов можно разделить, анализируя поляризацию ТГц излучения для различных углов между линейными поляризациями первой и второй гармоники. Чтобы осуществить это экспериментально, необходимо создать спектрометр-поляриметр, в котором было бы реализовано независимое управление поляризациями, энергиями и временными задержками импульсов первой и второй гармоники, и была бы возможность анализа поляризации, спектра и пространственных характеристик терагерцового излучения из плазмы оптического пробоя.

Особенность постановки эксперимента заключается в том, что параметры оптического поля могут существенно изменяться при распространении сквозь протяженную (порядка 1 см) область взаимодействия вследствие различных нелинейно-оптических процессов. Поэтому важно понимать, что условия, в которых возникает терагерцовое излучение, изменяются по мере распространения в плазме, и соответствуют исходным лишь на ограниченных расстояниях.

Наиболее распространенная экспериментальная схема генерации ТГц излучения в плазме оптического пробоя предполагает помещение тонкого кристалла ВВО I типа синхронизма между фокусирующей линзой, создающей плазму, и её фокусом [45, 95–97]. Эта схема наиболее проста и удобна для практических применений, но не подходит для поляризационных исследований. Все параметры излучения второй гармоники (поляриза-



ция, интенсивность, фазовый сдвиг относительно излучения первой гармоники) начинают изменяться одновременно при любых перемещениях кристалла. Это затрудняет анализ процесса генерации ТГц излучения, так как не удастся изменять только один параметр (например, поляризацию второй гармоники) при сохранении всех остальных параметров неизменными. Поляризационные измерения в такой схеме проводились, в частности, группой Роскоса [62]. Они заключались в измерении величины проекции ТГц поля на взаимно перпендикулярные оси при изменении ориентации кристалла ВВО.

В другом варианте схемы эксперимента кристалл ВВО помещается до фокусирующей линзы, при этом после кристалла второй гармоники может быть установлена фазовая пластинка, поворачивающая поляризацию второй гармоники на 90 градусов, чтобы сделать её коллинеарной с поляризацией первой гармоники [98]. В данном случае возрастают требования к фокусирующей линзе: она должна быть ахроматической для того, чтобы положения её фокуса для излучения первой и второй гармоники совпадали. Данная экспериментальная схема, также как и предыдущая, практически не даёт возможности независимого управления поляризациями излучения первой и второй гармоники.

Для проведения контролируемых поляризационных экспериментов необходимо создать схему, позволяющую независимое управление интенсивностями и поляризациями излучения каждой из оптических гармоник. Для этого в работе Кси [60] было предложено разделить плечо генерации на два пучка и использовать один из пучков для генерации второй гармоники. Фазовые пластинки, помещенные в каждое из плеч, использовались для независимого управления поляризациями пучков. Аналогичная схема была использована также группой Мисировича [61].

Поскольку величина генерируемого ТГц поля пропорциональна косинусу либо синусу разности фаз между полями первой и второй гармоники [46, 48], постоянство разницы фаз  $\psi$  и возможность её изменять контролируемым образом являются важнейшими требованиями к экспериментальным схемам с разделенными пучками первой и второй гармоники. В наиболее простом варианте такой схемы [60], одна из гармоник проходит механическую линию задержки для выравнивания оптических длин двух плеч. Другой способ - пустить разделенные пучки по двум “сторонам параллелограмма”, а задержкой между плечами управлять при помощи пары клиньев из кварца, вдвигаемых в один из пучков [60, 99]. В работах [47, 100] для наибольшей механической стабильности пучки первой и второй гармоники вообще не разделялись пространственно: после генерации второй гар-

моники в геометрии оптимального ГВГ излучение проходило через кристалл  $\alpha$  - ВВО и пару клиньев из кварца. Дисперсии этих материалов имеют противоположные знаки, что позволяет изменять задержку между излучениями  $\omega$  и  $2\omega$  произвольным образом (то есть, первая гармоника может приходить как раньше, так и позже второй гармоники), но в сравнительно небольших пределах. Управление поляризациями пучков в этой схеме осуществлялось при помощи фазовой пластинки, работающей одновременно для первой и второй гармоники.

Помимо разнообразия геометрических схем экспериментальных установок, применяемых для генерации ТГц излучения, существует множество вариантов выбора частотного состава оптического поля. Например, в работе [101] использовалась накачка одновременно первой, второй и третьей гармониками лазерного импульса и заявлялось увеличение интенсивности ТГц излучения на один порядок при его линейной поляризации. Группа исследователей из Пекинского университета [102] использовала chirпированные лазерные импульсы первой гармоники для повышения эффективности генерации при больших используемых интенсивностях фундаментального излучения. В работе [103] было предложено использовать для генерации оптические импульсы из двух некратных частот: авторы применяли импульсы с центральными длинами волн 785 нм и 407 нм. Иной подход использовала в своём эксперименте группа из Нижнего Новгорода [104], применив для генерации интенсивное излучение первой гармоники и более слабое излучение на частоте, равной половине фундаментальной частоты лазера. Для этого авторы использовали параметрический усилитель, генерирующий излучение с центральной длиной волны 1600 нм. Другая экспериментальная конфигурация, ставшая популярной в последние годы, использует ультракороткие лазерные импульсы, состоящие из нескольких колебаний электромагнитного поля, и имеющие высокую интенсивность [105–108]. Поскольку максимальные величины электрического поля на различных периодах ультракороткого лазерного импульса отличаются довольно сильно, генерируемый таким импульсом фототок отличен от нуля даже в отсутствие второй гармоники.

Из всего многообразия экспериментальных схем для исследования поляризации ТГц излучения при различных состояниях поляризации возбуждающего излучения наиболее гибкой и универсальной является схема с пространственным разделением пучков первой и второй гармоники и последующим их совмещением. Интенсивность и поляризация излучения каждой гармоники в такой схеме может изменяться независимо, а временная задержка

между импульсами может изменяться в широких пределах. При этом особую важность имеет постоянность разности оптических длин пучков двух гармоник и, следовательно, разности фаз между полями первой и второй гармоники. Изменение этой разности фаз на  $\pi$  соответствует изменению полярности ТГц поля, поэтому флуктуация разности длин плеч должна быть существенно меньше длины волны оптического излучения. Поэтому в настоящей работе применяется активная система стабилизации разности длин плеч первой и второй гармоники, что делает разработанный спектрометр-поляриметр уникальным.

Для анализа поляризации в работе используется ряд методик, каждая из которых оптимизирована для выполнения конкретной задачи. Во-первых, используется электрооптическое детектирование в сочетании с анализатором ТГц излучения, помещенным в параллельный ТГц пучок, что позволяет получить временные формы проекций вектора электрического поля ТГц импульса на взаимно ортогональные направления, то есть построить годограф вектора электрического поля. Вторым способом является интегральное детектирование при помощи акустооптической ячейки Голея при вращении ТГц анализатора в параллельном пучке, которое обеспечивает наиболее быстрое и удобное определение направления поляризации ТГц излучения для случая, когда она линейна или близка к линейной. Недостатком первого метода является поляризационная анизотропия самого детектора: для электрооптического детектирования трудно обеспечить равные чувствительности к двум взаимно ортогональным поляризациям терагерцового излучения. Кроме того, доступный спектральный диапазон ограничен по сравнению с таковым у интегрального детектирования (при использовании кристалла ZnTe толщиной 1мм эффективность детектирования излучения на частоте выше 2.5 ТГц резко падает). Тем не менее, есть и очевидный плюс: электрооптическое детектирование - когерентный метод, позволяющий получать информацию и о фазе, и об амплитуде ТГц поля, что позволяет исследовать состояния поляризации ТГц излучения, отличные от линейной. Для получения информации о спектре терагерцового излучения в работе применяется несколько методик: когерентное детектирование по генерации второй гармоники пробного импульса в присутствии постоянного поля (так называемое ABCD-детектирование), и детектирование при помощи интерферометра Майкельсона с кремниевым болометром в качестве приемника излучения. Оба этих метода позволяют работать с ТГц излучением на высоких частотах, включая диапазон 1-7 и 1-15 ТГц соответственно.

## 2.2. Оптическая схема терагерцового спектрометра-поляриметра с разделенными пучками первой и второй гармоники

Для удовлетворения требований, сформулированных во введении к данной главе, был создан спектрометр, оптическая схема которого показана на рисунке 2.1.

Источником фемтосекундного излучения является регенеративный усилитель на титан-сапфире SpectraPhysics Spitfire Pro. Он генерирует импульсы длительностью 120 фс с центральной длиной волны 797 нм и частотой повторения 1 кГц и энергией до 2 мДж в импульсе.

Пучок, выходящий из лазера, имеет диаметр 13 мм, и перед входом в установку при помощи телескопа Т из собирающей и рассеивающей линзы он сжимается в два раза. Далее пучок делится в соотношении 95/5, причем меньшая доля в дальнейшем используется для детектирования ТГц излучения. Делитель пучка BS1 представляет собой два Брюстеровских поляризатора и полуволновую фазовую пластинку WP1 перед ними.

После разделения исходного пучка лазерного излучения на плечо генерации и плечо детектирования, плечо генерации еще раз разделяется в соотношении 50/50 на дихроичном зеркале DM1. Одна половина пучка предназначена для излучения на основной частоте лазера (в дальнейшем будем называть её “плечо  $\omega$ ”), другая половина пучка предназначена для генерации второй гармоники и её последующего отделения от фундаментальной частоты лазера диэлектрическими зеркалами (это плечо в дальнейшем будет называться “плечо  $2\omega$ ”). Генерация второй гармоники производится в кристалле ВВО I типа синхронизма толщиной 300 мкм. Линия задержки в плече  $2\omega$  служит для совмещения по времени излучений первой и второй гармоники. Тонкая подстройка временной задержки осуществляется при помощи пары клиньев из ультрафиолетового кварцевого стекла КУ-1. Один из клиньев вдвигается в пучок при помощи микрометрического винта. Фазовые пластинки WP2 и WP3 и аттенюаторы A1 и A2 позволяют независимо управлять поляризациями и интенсивностями каждого плеча в отдельности.

В дальнейшем два плеча совмещаются в пространстве при помощи диэлектрического зеркала DM2, имеющего максимальный коэффициент отражения для длины волны 400 нм. Излучение из плеча  $\omega$  при этом проходит данное зеркало насквозь.

После совмещения плеч излучение фокусируется линзой L2 из ультрафиолетового кварцевого стекла КУ-1 с фокусным расстоянием 10 см. Фокальная область линзы и яв-

ляется областью нелинейного взаимодействия, в которой образуется плазменное облако. Поскольку показатели преломления материала линзы для излучений на частоте первой и второй гармоники различаются, в плечо первой гармоники добавляется длиннофокусная рассеивающая линза L1 с фокусным расстоянием 200 см для уменьшения расстояния между фокальными плоскостями излучения на двух гармониках.

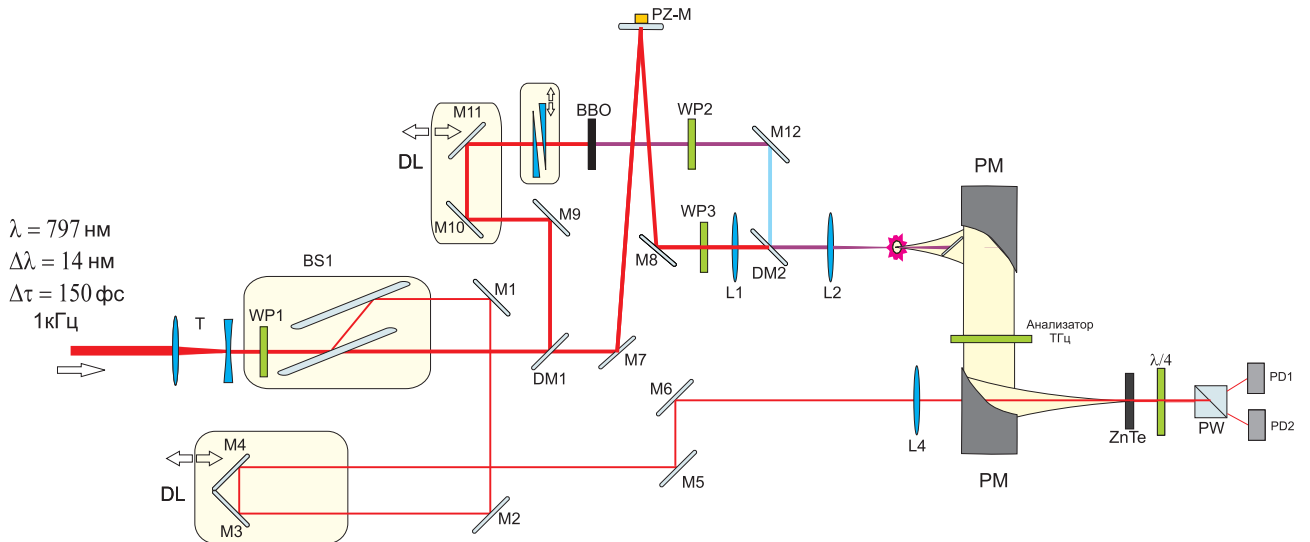


Рис. 2.1. Схема фемтосекундной части установки

Далее оптическое излучение отделяется от терагерцового при помощи пластинки высокоомного кремния и терагерцовое излучение коллимируется при помощи внеосевого параболического зеркала с фокусным расстоянием 51 мм и диаметром апертуры 51 мм.

Для детектирования ТГц импульса излучение фокусируется при помощи внеосевого параболического зеркала РМ соосно с пучком детектирующего оптического импульса. Детектирующий импульс проходит предварительно через линию задержки DL и фокусируется при помощи линзы L4 через отверстие в параболическом зеркале РМ. Детектирование происходит в нелинейном кристалле ZnTe в результате проявления электрооптического эффекта: линейная поляризация пучка изменяется пропорционально величине ТГц поля в кристалле в момент прихода пробного импульса. Поворот поляризации пробного пучка регистрируется при помощи схемы с измерением отношения интенсивностей ортогонально-поляризованных компонент (см. рис. 2.1). Поляризация излучения сначала превращается в круговую при помощи пластинки  $\lambda/4$ , а затем при помощи призмы Волластона две ортогональные компоненты поляризации направляются на два фотодиода, включенных в балансную схему. В отсутствие ТГц излучения разность токов на диодах

выставляется точно равной нулю. В случае прихода ТГц импульса поляризация излучения поворачивается, нарушая баланс токов на двух фотодиодах. Разность этих токов оказывается пропорциональной величине ТГц поля [109]. Движение линии задержки пробного пучка относительно терагерцового позволяет регистрировать величину поля ТГц импульса в различные моменты времени. Таким образом происходит поточечное восстановление временного профиля ТГц импульса. Использование кристалла ZnTe толщиной 1 мм позволяет детектировать ТГц излучение в диапазоне от 0.1 до 2.5 ТГц [110], более высокие частоты остаются недоступными ввиду невыполнения условия фазового синхронизма.

Для анализа состояния поляризации ТГц излучения в коллимированный ТГц пучок помещается полиэтиленовый поляризатор. Регистрация временного профиля ТГц излучения для двух взаимно ортогональных ориентаций анализатора поля позволяет получить голограф конца вектора электрического поля в пространстве.

Альтернативным методом исследования поляризации ТГц излучения является помещение в качестве приемника ТГц излучения акустооптической ячейки Голея, которая чувствительна к излучению в ТГц и ИК диапазоне, и регистрация зависимости принимаемого сигнала от ориентации ТГц анализатора. Это позволяет быстро определить степень отличия поляризации ТГц излучения от линейной, и определить ориентацию линейной поляризации.

### **2.3. Стабилизация разности длин оптических плеч первой и второй гармоники**

Поскольку амплитуда поля терагерцового излучения при генерации для любого из рассматриваемых механизмов нелинейности гармоническим образом зависит от разности фаз оптических полей  $\psi$ , условие постоянства этой разности является критически важным для генерации ТГц излучения. Однако, в каждом из плеч излучение проходит свою последовательность зеркал, каждое из которых индивидуальным образом взаимодействует с низкочастотными колебаниями оптического стола, и точное положение плоскости отражения зеркал колеблется относительно своего равновесного положения. Несмотря на малую амплитуду колебаний каждого из зеркал в отдельности, полное значение разности оптических путей в плечах  $\omega$  и  $2\omega$  испытывает колебания с амплитудой, совпадающей по порядку с длиной волны оптического излучения. Данная нестабильность разности длин

плеч и, следовательно, разности фаз  $\psi$ , является недопустимой для исследования генерации ТГц излучения. Следовательно, необходима система принудительной стабилизации разности оптических длин двух плеч.

Такая система была реализована с использованием пьезокерамического актюатора, связанного с зеркалом PZ-M плеча  $\omega$ .

Системы стабилизации разности длин, различные по принципу своего построения, неоднократно реализовывались для многих оптических систем (например, [111–113]).

Несмотря на то, что основная часть шумов, которые необходимо подавить, лежит в области низких частот (0 до 100 Гц), не представляется возможным их отслеживать при помощи используемой лазерной системы, частота повторения которой составляет 1 кГц. Для слежения за флуктуациями разности длины плеч в установку был заведен дополнительный луч непрерывного гелий-неонового лазера мощностью 7 мВт. На рисунке 2.2 показана схема распространения излучения этого лазера (чтобы не загромождать схему, часть оптических элементов в плече  $2\omega$  и плече детектирования не показана). Луч вводился в систему сразу после отщепления пучка детектирования отражением от брюстеровского окна делителя BS1 коллинеарно с основным излучением. Пучок излучения гелий-неонового лазера полностью повторяет путь излучения фемтосекундного лазера: одна его часть распространяется по “плечу  $\omega$ ”, другая его часть распространяется по “плечу  $2\omega$ ”. Для минимизации потерь при отражении большая часть зеркал в обоих плечах имеет металлическое покрытие. При прохождении диэлектрического зеркала DM2, сводящего в пространстве излучение из двух плеч, небольшая часть энергии излучения гелий-неонового лазера из обоих плеч схемы продолжает распространение в сторону дифракционной решетки DG1, то есть отщепляется от основной оптической схемы. Далее, при помощи двойного монохроматора излучение гелий-неонового лазера окончательно отфильтровывается от излучения первой и второй гармоники и направляется в фотоэлектронный умножитель. Интенсивность, регистрируемая при помощи ФЭУ, содержит три слагаемых: два слагаемых, пропорциональных интенсивности излучения, дошедшего из каждого из плеч, и интерференционный член, несущий информацию о фазовом шуме между плечами интерферометра [114]. Характерная картина сигнала, регистрируемого на ФЭУ, приведена на рисунке 2.3 а. Поскольку оптические пути фемтосекундного излучения и излучения гелий-неонового лазера полностью совпадают вплоть до момента сведения двух плеч схемы, наблюдаемая на ФЭУ картина изменения интерференционного члена идентична фазовому шуму между

излучениями первой и второй гармоники. Амплитуда колебаний длин плеч интерферометра, которую можно оценить по виду наблюдаемых интерференционных картин, достигает  $5-6\pi$ .

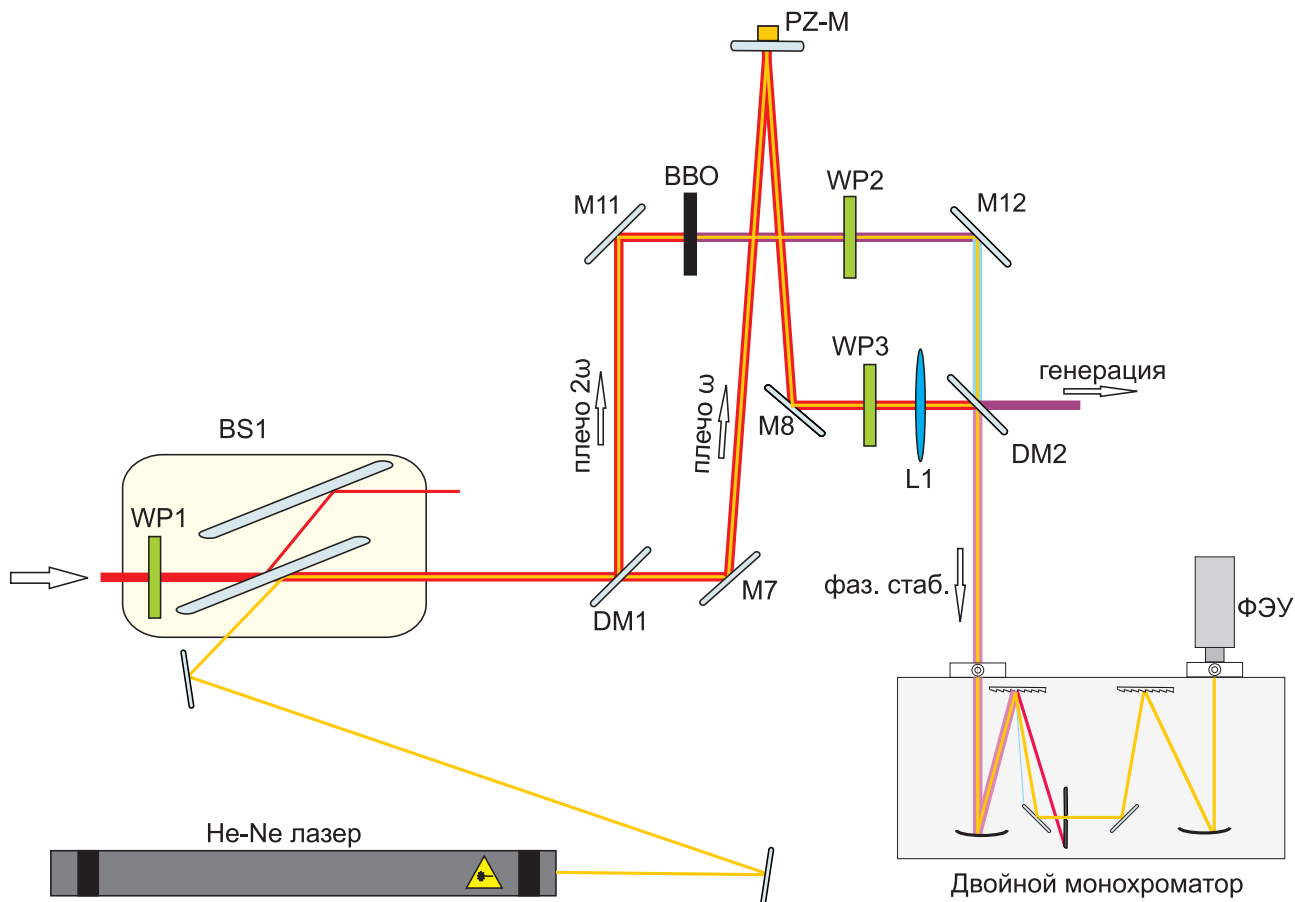


Рис. 2.2. Схема заведения гелий-неонового луча в установку для стабилизации разности оптических длин плеч  $\omega$  и  $2\omega$ . Оранжевым показано излучение He-Ne, красным - излучение первой гармоники, голубым - излучение второй гармоники, фиолетовым - участки совместного распространения первой и второй гармоники

Для компенсации низкочастотного шума необходимо из отслеживаемого ФЭУ сигнала, несущего информацию о шуме, сформировать сигнал отрицательной обратной связи, который необходимо подать на зеркало с пьезокерамическим приводом.

Для этого на пьезопривод подаётся высокочастотная синусоидальная модуляция, примерно на два порядка превышающая по частоте шумовую полосу. В нашем случае частота модуляции выбиралась равной  $\Omega = 3800$  Гц вдали от собственного механического резонанса зеркала с пьезоприводом (приблизительно 10500 Гц), а глубина модуляции составляла примерно  $\lambda/5$ , где  $\lambda$  - длина волны оптического излучения. Таким образом, сигнал, реги-



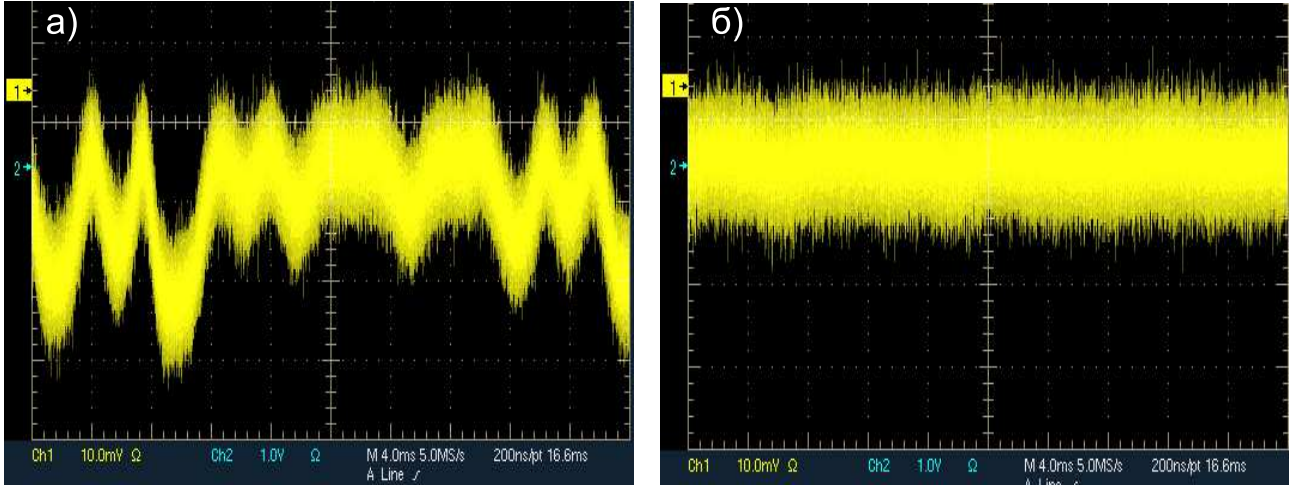


Рис. 2.3. а) Характерная картина сигнала, регистрируемого при помощи ФЭУ, с выключенной системой стабилизации длин плеч установки. Хорошо виден низкочастотный шум с частотой порядка 50 Гц. б) картина сигнала при включенной системе стабилизации. Низкочастотные компоненты шума подавлены.

стрируемый на ФЭУ, можно записать следующим образом:

$$I_{PD} = (E_1 \cdot \cos(\omega t + \kappa \cos \Omega t) + E_2 \cdot \cos(\omega t + \psi + \delta\psi))^2 \quad (2.1)$$

, где  $\kappa$  - глубина модуляции,  $\psi$  - средняя разность фаз между двумя пучками, которую система старается поддерживать,  $\delta\psi$  - случайный фазовый шум между двумя фазами.

Интенсивность наблюдаемой интерференционной картины представляет собой сумму трех слагаемых, два из которых отражают интенсивность излучения, пришедших из каждого плеча, третье же слагаемое отражает их интерференцию.

$$I_{PD} = \frac{E_1^2}{2} + \frac{E_2^2}{2} + E_1 \cdot E_2 \cdot \cos(\psi + \delta\psi + \kappa \cos(\Omega t)) \quad (2.2)$$

Интерференционное слагаемое  $I_{int}$  можно разложить в ряд Фурье

$$I_{int} = E_1 \cdot E_2 \cdot \left( \cos(\psi + \delta\psi) \cdot \left( J_0(\kappa) + 2 \sum_{n=1}^{\infty} J_{2n}(\kappa) \cdot \cos(2n\Omega t) \right) \right) + E_1 \cdot E_2 \cdot \left( \sin(\psi + \delta\psi) \cdot 2 \sum_{n=1}^{\infty} J_{2n-1}(\kappa) \cdot \sin((2n-1)\Omega t) \right), \quad (2.3)$$

где  $J$  - это функции Бесселя 1го рода, а  $n$  - натуральные числа.

Сигнал с ФЭУ подаётся на синхронный детектор, где он умножается еще раз на косинус модулирующей частоты, а затем проходит через RC-фильтр с постоянной времени  $\tau = 300$  мкс:

$$S_{int} = \frac{1}{\tau} \cdot \int_0^{\tau} \left( \frac{E_1^2}{2} + \frac{E_2^2}{2} + I_{int}(t) \right) \cos(\Omega t) dt \quad (2.4)$$

В результате не зануляется лишь одно слагаемое, несущее в себе информацию о фазовом шуме в системе:

$$S = E_1 E_2 \cdot \sin(\psi + \delta\psi) \cdot J_1(\kappa) \quad (2.5)$$

Этот сигнал и есть сигнал ошибки, вызванный колебаниями разности оптических длин: он меняет знак в тот момент, когда разность фаз между оптическими полями проходит через ноль. В дальнейшем этот сигнал прибавляется к сигналу высокочастотной модуляции и подается в качестве обратной связи на пьезопривод зеркала, принудительно заставляя разность фаз  $\psi$  быть равной нулю. Поэтому для повышения эффективности шумоподавления и предотвращения возможности самовозбуждения шумов окончательный сигнал обратной связи формируется при помощи разработанного PID контроллера, схема которого в реализованном варианте показана на рисунке 2.4. Сигнал с синхронного детектора, подаваемый на разъем 1, поступает на вход интегратора (ОП1, цепь R2R3C1), пропорционального усилителя (ОП2) и дифференциатора (ОП3, цепь R9R10C3). Операционные усилители, применяемые в схеме, имеют полосу пропускания 5 МГц, что достаточно для рабочих частот системы. Также данные ОУ имеют небольшое значение напряжение смещения нуля (1 мВ) и низкий уровень собственных шумов (18 нВ·Гц<sup>1/2</sup>). Это обеспечивает малые ошибки интегрирования и дифференцирования, что необходимо для устойчивой работы регулятора [115, 116]. Переключатели S1, S2, S3 служат для независимого включения/отключения интегральной, пропорциональной и дифференциальной составляющих сигнала соответственно. Через резисторы R12, R13, R14 напряжение с выходов ОУ подается на первый суммирующий усилитель (ОП4). На вход второго сумматора (ОП5) подается сигнал с выхода первого и модулирующее напряжение с разъема 2. Сформированный сигнал обратной связи через разъем 2 подается на вход усилителя зеркала с пьезоподачей.

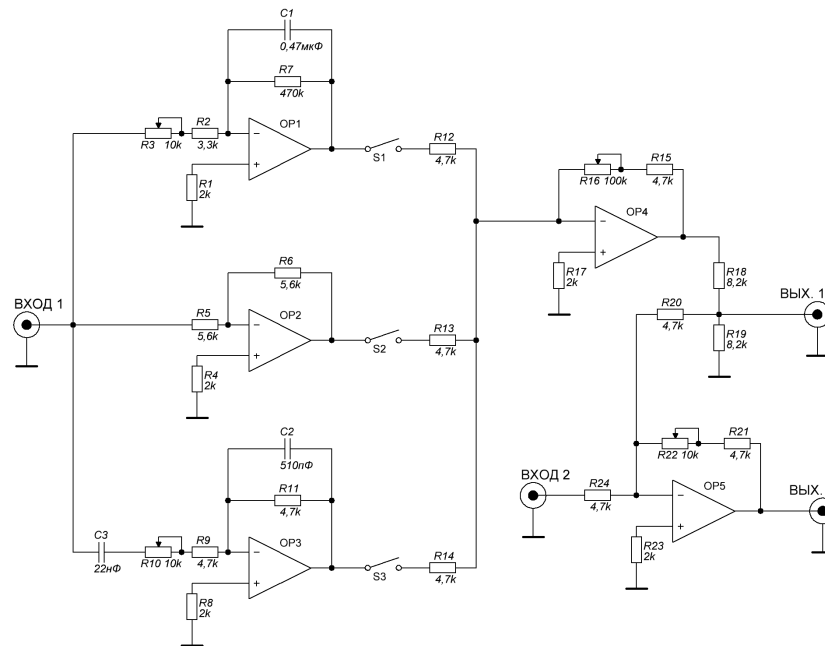


Рис. 2.4. Электрическая принципиальная схема PID регулятора, применяемого в системе стабилизации разности фаз

На рисунке 2.3 б) показан характерный сигнал на ФЭУ при работающей системе стабилизации разности длин. Сравнение с соседним рисунком позволяет говорить о том, что система позволяет компенсировать низкочастотные колебания фазы с большой амплитудой.

## 2.4. Регистрация терагерцового и оптического излучения

Для когерентного детектирования терагерцового излучения используется процесс генерации второй гармоники пробного импульса в присутствии ТГц поля и постоянного электрического поля в газовой среде (так называемое ABCD - детектирование [70]). Роль нелинейной среды, в которой происходит взаимодействие оптического излучения с терагерцовым, играет воздух при атмосферном давлении. Спектральный диапазон излучения, которое можно детектировать в газовых средах, ограничен длительностью детектирующего лазерного импульса  $\tau_l$  как  $1/\tau_l$  [70], что составляет приблизительно 7 ТГц для оптических импульсов длительностью 120 фс.

Для этого пробный импульс оптического излучения, прошедший через линию задержки, фокусировался с помощью линзы с фокусным расстоянием 25 см сквозь отверстие, просверленное в параболическом зеркале PM2, в пространство между двумя плоскими

медными электродами длиной 1 см. Терагерцовое излучение, отраженное от параболического зеркала РМ2, фокусировалось им коллинеарно с пробным оптическим пучком в то же пространство между электродами таким образом, что положения фокусов оптического и терагерцового излучения совпадают по всем координатам и направлению. К электродам приложено постоянное высокое напряжение порядка 1.5 кВ при помощи высоковольтного модулятора ZOmega НМV5kV, расстояние между электродами составляло 1 мм (см. рисунок 2.5).

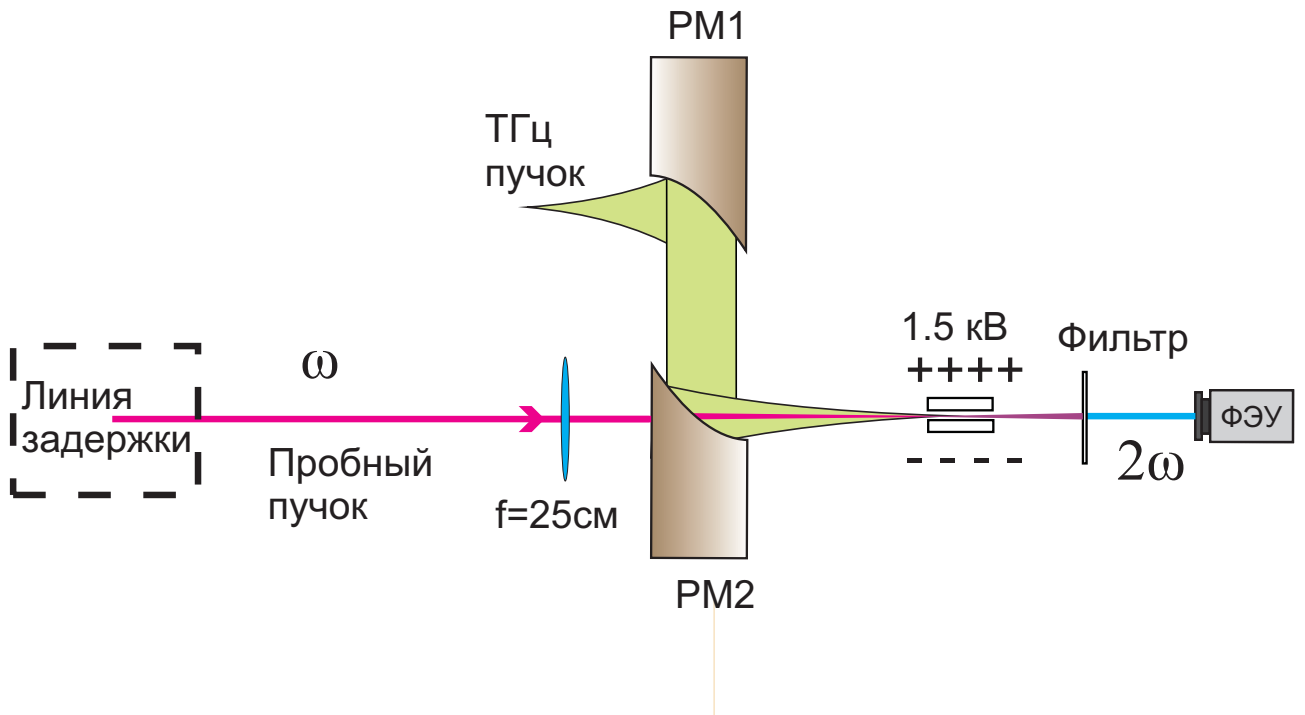


Рис. 2.5. Схема фрагмента экспериментальной установки, предназначенной для детектирования ТГц излучения в плазме оптического пробоя по генерации второй гармоники пробного оптического импульса

Возникающее в результате четырехволнового взаимодействия в воздухе излучение второй гармоники детектирующего излучения (процесс  $2\omega = \omega + \omega + 0$ ) несёт информацию о квадрате величины низкочастотного поля, которое является суммой поля ТГц импульса и постоянного электрического поля:

$$I_{2\omega} \propto E_{\omega}^4 (E_{THz} + E_{DC})^2 \propto (E_{THz}^2 + 2E_{THz}E_{DC} + E_{DC}^2)$$

Второе слагаемое в скобках отвечает за когерентное детектирование ТГц поля, так

как является прямо пропорциональным первой степени поля. Для исключения вкладов остальных слагаемых полярность постоянного поля меняется на противоположную при помощи модулятора высокого напряжения перед приходом каждого следующего оптического импульса. Излучение второй гармоники отделяется от фундаментального при помощи диэлектрического зеркала и пары интерференционных фильтров, пропускающих узкую полосу 395..405 нм. Далее излучение регистрируется при помощи ФЭУ Hamamatsu R106UH, сигнал с которого идёт на синхронный усилитель. Синхронное детектирование на частоте смены полярности напряжения позволяет выделить член, пропорциональный величине терагерцового поля при данном значении временной задержки между терагерцовым и детектирующим импульсом.

Поскольку в процессе детектирования в перетяжке оптического импульса взаимодействуют два низкочастотных поля, одно из которых является заданным и известным, это позволяет предложить метод оценки величины неизвестного терагерцового поля. Если перекрыть пучок ТГц излучения, то на детектор будет приходить лишь излучение второй гармоники, обусловленное взаимодействием с постоянным полем (только слагаемое  $W_{DC^2}$ ), величина которого  $E_{DC}$  с хорошей точностью известна. Если, кроме того, зафиксировать полярность постоянного поля  $E_{DC}$  для некоторого значения временной задержки  $\Delta$  сонаправленно с направлением ТГц поля в этот момент времени  $E_{THz}(\Delta)$  и измерить интенсивность второй гармоники, то при помощи элементарных алгебраических преобразований можно вычислить величину ТГц поля. Подробно этот способ описан в работе нашей исследовательской группы [117]. Например, для энергии первой гармоники в пучке генерации в однопучковой схеме была получена амплитуда ТГц поля в максимуме, равная 2.5 кВ/см. Кроме того, в работах [117],[118] был описан фототоковый микроскопический механизм детектирования (то есть учитывающий движение свободных электронов в отличие от традиционно упоминаемого механизма, учитывающего нелинейный отклик связанных электронов) при интенсивностях детектирующего пучка, достаточных для фотоионизации. Однако в использованном режиме детектирования в настоящей работе, была использована энергия 65 мкДж в пробном импульсе первой гармоники. При этом еще не происходит фотоионизации газа, и основным механизмом детектирования является нелинейный отклик связанных электронов. При выбранных экспериментальных параметрах удается реализовать детектирование ТГц излучения в диапазоне от 0.5 до 7 ТГц, что показано на рисунке 2.6.

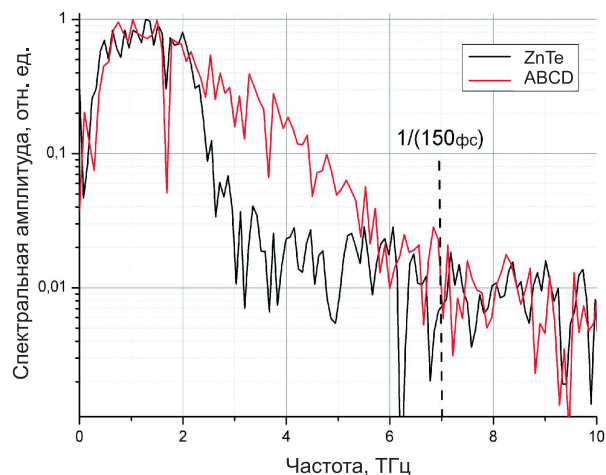


Рис. 2.6. Спектр ТГц излучения из плазмы оптического пробоя, зарегистрированный при помощи генерации второй гармоники в газовой среде. Для сравнения на том же графике представлен тот же ТГц сигнал, детектированный при помощи электрооптического кристалла ZnTe толщиной 1 мм.

Параметры спектрометра, которые достигались в приведенных экспериментальных схемах, составили:

**Амплитуда ТГц поля (в фокусе параболического зеркала):** до 1.5 кВ/см

**Типичное спектральное разрешение:** 20 ТГц

**Доступный спектральный диапазон:** 0.5-7 ТГц при детектировании в газовой среде; 0.3-2.5 ТГц при электрооптическом детектировании

**Динамический диапазон:** 40дБ

**Время записи одного спектра:** примерно 5 минут

**Доступная для анализа поляризация ТГц излучения:** любая для электрооптического детектирования; детектирование в газовой среде настроено на работу с горизонтально поляризованным ТГц излучением

Созданный спектрометр позволяет, таким образом, проводить эксперименты по исследованию поляризации ТГц излучения. Для исследования поляризации оптического излучения второй и третьей гармоники требовалась модификация системы сбора и анализа излучения, вышедшего из зоны взаимодействия.

Для этого оптическое излучение второй и третьей гармоники коллимируется при помощи кварцевой линзы, установленной вместо внеосевого параболического зеркала. В

дальнейшем, в зависимости от задачи, излучение либо направляется при помощи металлического зеркала на входную щель монохроматора Princeton Instruments Acton 500i с ПЗС-камерой Princeton Instruments Pixis 400 в качестве детектора для исследования излучения третьей гармоники, либо на дифракционную решетку с плотностью 1200 штрихов/мм для анализа излучения второй гармоники при помощи фотодиода Thorlabs PDB 150C. Непосредственно перед детектором излучения устанавливалась призма Глана для анализа поляризации. Схема этой модификации установки приведена на рисунке 2.7.

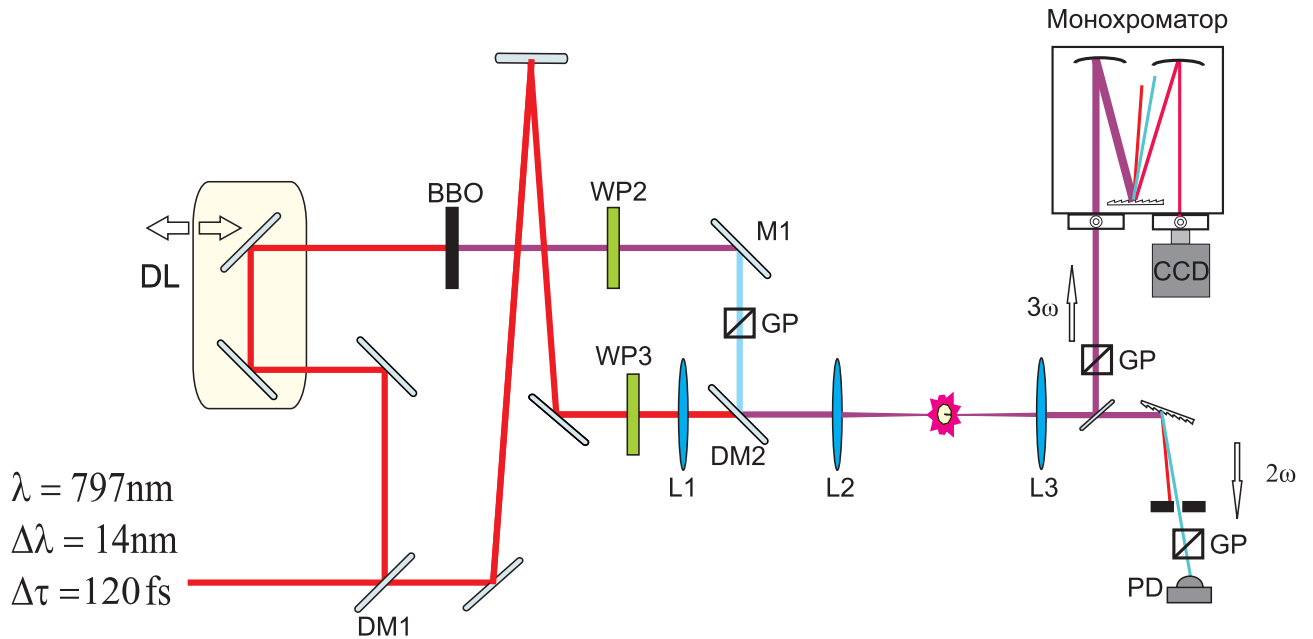


Рис. 2.7. Схема установки, предназначенной для исследования поляризации излучения второй и третьей гармоники лазерного излучения

## 2.5. Интерферометр Майкельсона для изучения спектральных характеристик ТГц излучения

Тем не менее, для описанного метода регистрации в области высоких частот спектральная чувствительность детектирования снижается и не дает возможности корректно оценить полную ширину спектра ТГц излучения. Для определения спектральной ширины генерируемого излучения был создан интерферометр Майкельсона, приемником в котором служил кремниевый болометр. Общая схема установки показана на рисунке 2.8.

Терагерцовое излучение генерируется в схеме без разделения пучков первой и второй

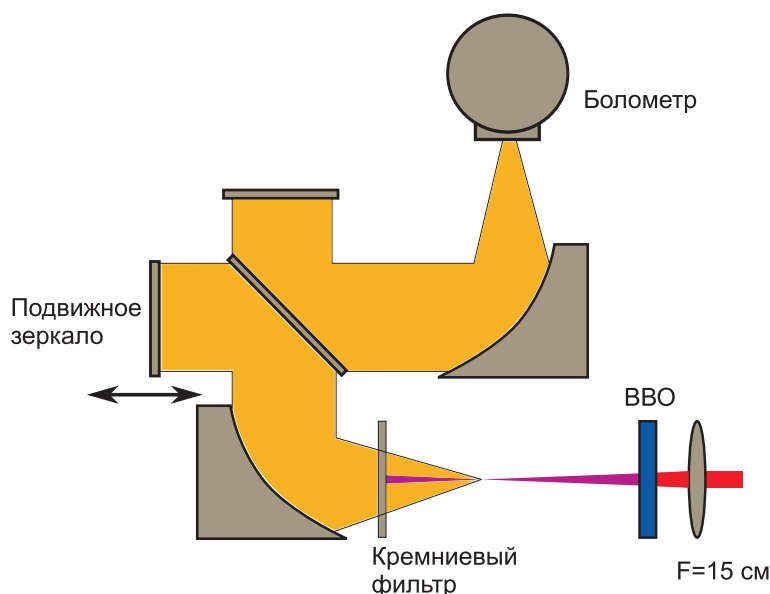


Рис. 2.8. Схема экспериментальной установки для получения автокорреляционной функции терагерцового импульса. В основе схемы лежит интерферометр Майкельсона, детектором служит кремниевый болометр.

гармоники. Луч регенеративного усилителя, имеющий энергию до 1.4 мДж в импульсе, фокусируется при помощи линзы с фокусным расстоянием 15 см, кристалл ВВО располагается в сходящемся пучке так, чтобы максимизировать энергию ТГц излучения. Далее ТГц излучение коллимируется при помощи внеосевого параболического зеркала с апертурой 2 дюйма и фокусным расстоянием 10 см. Параллельный терагерцовый пучок делится на два равных по амплитуде при помощи кремниевого делителя, имеющего коэффициент отражения 50% и апертуру 2 дюйма. Два полученных пучка представляют собой плечи интерферометра. В каждом из них расположено плоское металлическое зеркало большой апертуры, направляющее луч обратно на делительную пластинку. Одно из зеркал установлено на моторизованной платформе, способной двигаться с минимальным размером шага 1.25 мкм. Делительная пластинка является прозрачной в терагерцовом диапазоне вплоть до 18 ТГц, где существует пик фононного поглощения [95]. После делительной пластинки терагерцовое излучение фокусируется при помощи второго параболического зеркала с фокусным расстоянием 15 см в приемное окно кремниевого болометра. Болометр LN-6/С произведен фирмой Infrared Laboratories в США. Он работает при температуре 4.2 К, поэтому его чувствительный элемент помещен в гелиевый криостат, внешняя рубашка которого охлаждается жидким азотом, а холодная плита - жидким гелием. Входное окно криостата прозрачно во всем ТГц и дальнем ИК диапазоне (до 25 ТГц), а внутри крио-



стата, перед детектором, помещается один из трех фильтров, отсекающих ИК излучение. Фильтры имеют верхнюю границу пропускания на частотах 1.5, 3 и 24 ТГц. Для исследования ширины спектра ТГц излучения из плазмы оптического пробоя подходит лишь последний из этих фильтров. Поскольку характерное время отклика болометра и его усилителя составляет менее миллисекунды, электрический сигнал можно непосредственно анализировать синхронным усилителем на частоте повторения лазера (1 кГц), без дополнительной модуляции оптическим прерывателем, как это требуется для других типов интегральных детекторов (акустооптической ячейки Голея и пироэлектрического приемника). Для регистрации автокорреляционной функции измеряется интенсивность сигнала на болометре от разности длин плеч интерферометра. Фурье-образ полученной интерферограммы представляет собой спектр мощности ТГц импульса. Спектральное разрешение при типичном размере интерферограммы 800 точек составляет 150 ГГц, а доступный спектральный диапазон определяется характеристиками выбранного внутреннего фильтра болометра, а также поглощением делительной пластинки. Поэтому максимально доступный для анализа частотный диапазон составляет от 0 до 18 ТГц.

## 2.6. Выводы по главе 2

Таким образом, с использованием фемтосекундного лазера с высокой частотой повторения импульсов (1 кГц) и систем широкополосного детектирования в диапазоне от 0 до 18 ТГц разработан и создан многофункциональный спектрометр-поляриметр, позволяющий проводить эксперименты в оптическом и ТГц диапазонах с возможностью управления поляризацией, интенсивностью и временной задержкой пучков первой и второй гармоник.

## Глава 3

## Экспериментальные исследования поляризационных и спектральных свойств ТГц излучения

### 3.1. Введение

Множество исследований генерации терагерцового излучения в плазме оптического пробоя, проводилось для демонстрации возможностей управления параметрами генерации путем изменения поляризаций и фаз возбуждающих оптических полей, а также свойств газовой среды. Например, в работах [48, 63, 119] исследовались зависимости эффективности генерации от давления газа. При высоких давлениях газовой смеси спектр излучения претерпевал изменения, что объяснялось потерей когерентности движения фотоэлектронов при их рассеянии на окружающих молекулах (так называемый процесс обратного тормозного излучения [119]). В работе немецкой группы Бабушкина теоретически предсказывается возможность управления спектром ТГц излучения посредством контроля моментов туннельной ионизации атомов, которые зависят от частот и фаз возбуждающего оптического излучения [120]. Кроме того, управление разностью фаз и поляризациями излучения двух гармоник позволило провести поляризационные эксперименты ([47, 49]). В этих работах было экспериментально показано, что управление разностью фаз между первой и второй гармоникой приводит к изменению интенсивности и состояния поляризации ТГц поля. Поляризационные эксперименты в этих статьях проводились по сходной методике: измерялась интенсивность ТГц излучения при различных значениях разности фаз и различных ориентациях анализатора ТГц излучения, помещенного перед детектором. В зависимости от возможностей для управления поляризациями и фазами оптических гармоник в описанных экспериментальных схемах были исследованы случаи двух линейных поляризаций  $\omega$  и  $2\omega$  под различными углами друг к другу ( $55^\circ$  в работе Линденберга [49],  $0^\circ$  и  $90^\circ$  в работе Жанга [47]), а также двух циркулярных поляризаций и двух эллиптических поляризаций (также в работе Жанга). В частности, для двух циркулярных поляризаций с одинаковым направлением вращения показано, что направление вектора поляризации ТГц излучения изменяется при изменении разности фаз между двумя пучками, но сама поляризация при этом остается близкой к линейной (см. рис. (3.1))

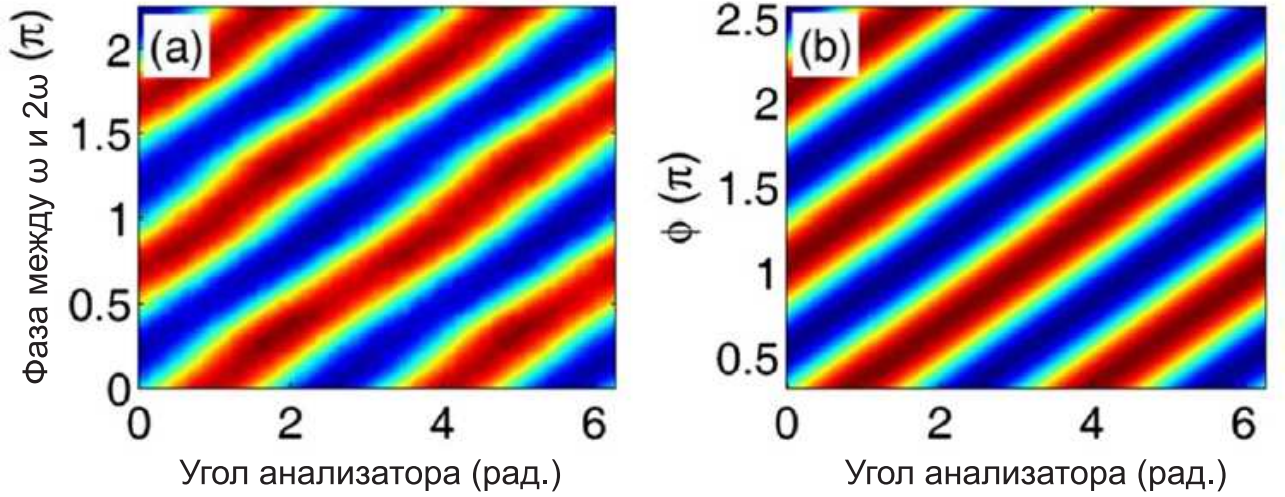


Рис. 3.1. Интенсивность ТГц излучения, прошедшего через анализатор при различных ориентациях анализатора (горизонтальная ось) и различных разностях фаз между гармониками (вертикальная ось) при двух циркулярных поляризациях пучков  $\omega$  и  $2\omega$  с одинаковым направлением вращения [47]

Экспериментальному исследованию свойств эффективного тензора диэлектрической восприимчивости третьего порядка для плазмы оптического пробоя при генерации терагерцового излучения были посвящены работы [60, 61]. Обе работы выполнялись в схеме с отдельным управлением пучками первой и второй гармоники. Авторы регистрировали амплитуду [60] и интенсивность [61] ТГц излучения, поляризованного параллельно и ортогонально поляризации первой гармоники.

В обеих работах было показано, что при ортогональных поляризациях первой и второй гармоники амплитуда ТГц излучения как минимум на порядок уступает амплитуде при параллельных поляризациях. Говоря на языке нелинейностей это эквивалентно соотношению  $\chi_{xxxy}^{(3)}/\chi_{xxxx}^{(3)} < 0.1$ , считая ось  $x$  сонаправлена с поляризацией фундаментальной гармоники (индексы тензора соответствуют поляризациям терагерцового излучения, пучков второй, первой и первой гармоники соответственно). Мисирович также заявляет о значительном вкладе в генерацию компонент  $\chi_{xyxy}^{(3)} + \chi_{xyyx}^{(3)}$ , которые он определял, используя интегральный детектор ТГц излучения. Однако наибольшее удивление вызвало появление терагерцового излучения, которое соответствует компоненте  $\chi_{xyyy}^{(3)}$ , несвойственной изотропным средам. В обеих упомянутых работах этой компоненте приписывалось ненулевое значение при больших интенсивностях излучения накачки, и ее появление объяснялось

нарушениями пространственной симметрии при образовании филамента. Результаты измерений компонент тензоров, приведенные авторами статей [60, 61], представлены в таблице 3.1.

Таблица 3.1. Компоненты тензора нелинейной восприимчивости третьего порядка, приведенные в статьях Кси [60] и Мисировича [61]

THz, $2\omega, \omega, \omega$	Амплитуда ТГц поля, усл. ед. (из работы Кси)	Амплитуда ТГц поля, усл. ед. (из работы Мисировича)
<i>xxxx</i>	1	1
<i>yuxx</i>	0.05	0.1
<i>xuxx</i>	0.04	0.2
<i>xuyu</i>	0.1	0.3
<i>yuyu</i>	-	0.15
<i>xuyu + xuyx</i>	-	0.98

Отличие поляризации комбинационного излучения в плазме оптического пробоя газов от поляризации, обусловленной нерезонансным откликом изотропной среды, уже наблюдалось ранее в экспериментах Коротеева и Гладкова [121]. Авторы объясняли экспериментально наблюдаемую поляризацию проявлением квазирезонансной нелинейной восприимчивости: поскольку в плазме оптического пробоя существует множество молекул не в основном электронном состоянии, то четырехволновой процесс КАРС стартует из одного из возбужденных состояний, из которого появляется вероятность резонансного протекания процесса, так как высоковозбужденные состояния находятся на маленьких расстояниях друг от друга по энергии (см. схематический рисунок 3.2 из статьи [122]).

Таким образом, при анализе известных работ по исследованию поляризации терагерцового излучения из плазмы оптического пробоя газов становится ясно, что имеющиеся данные во многом противоречивы и не дают законченного представления о состоянии поляризации излучения при произвольных возбуждающих фемтосекундных импульсах. Установлено, что экспериментально наблюдаемые свойства ТГц излучения можно описать при введении анизотропного эффективного тензора нелинейной восприимчивости, но природа этого тензора до сих пор не ясна. Эксперименты, которые проводятся в данной главе диссертации при контролируемых поляризациях и разностях фаз и временных

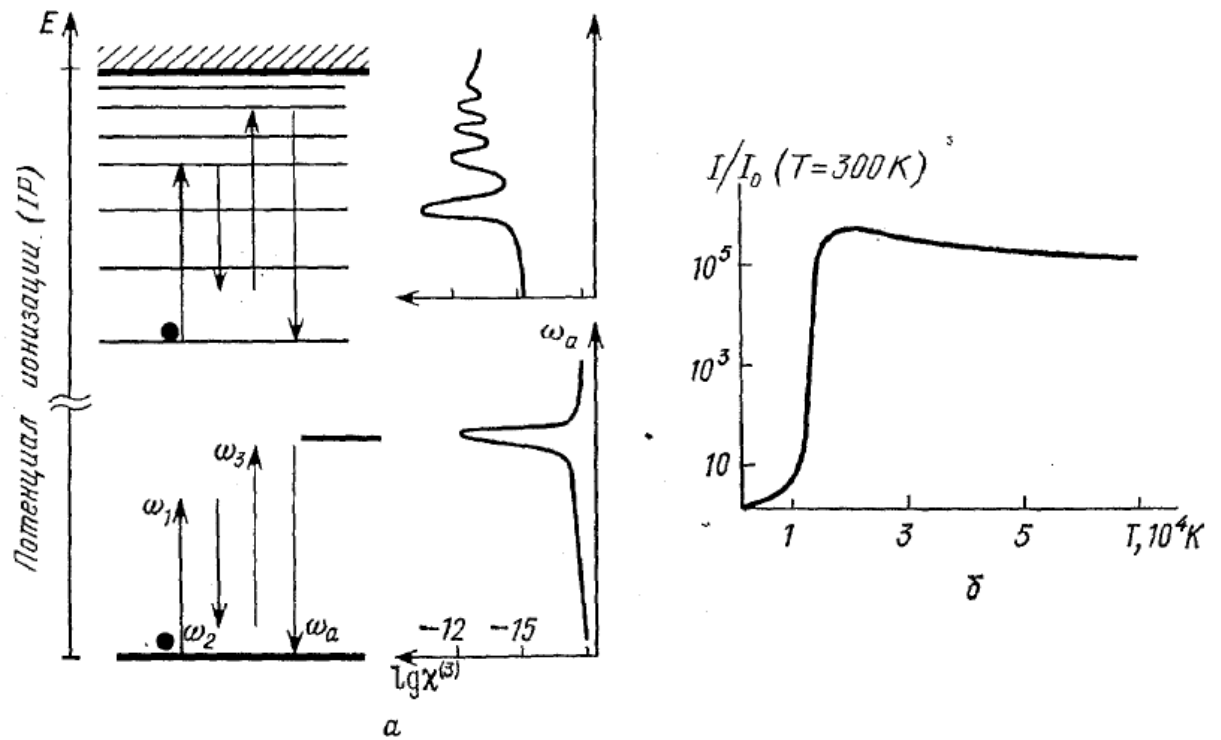


Рис. 3.2. Возрастание оптических восприимчивостей атомарного газа при его возбуждении на примере кубической восприимчивости: а) Схема, иллюстрирующая установление режима квазирезонанса между частотами переходов среды и возбуждающего излучения. б) - Зависимость интенсивности первоначально нерезонансного сигнала КАРС модельного газа атомов водорода от температуры [122]

задержках между импульсами первой и второй гармоники, позволяют дополнить картину и сопоставить эмпирические данные с теоретическими, полученными в рамках описанных выше основных механизмов нелинейности в среде оптического пробоя.

Поскольку в эксперименте ожидается зафиксировать отличия поляризации ТГц излучения, получаемой в эксперименте от поляризации, обусловленной свойствами изотропной нерезонансной среды, важно определить, не связаны ли эти отличия с явлением ориентации молекул газа возбуждающим оптическим полем (это явление неоднократно наблюдалось при взаимодействии фемтосекундных оптических импульсов с молекулярными газами). Для этого необходимо сравнение поляризации ТГц излучения, полученной при оптическом пробое молекулярного газа (например, воздуха), с поляризацией, полученной при оптическом пробое атомарного газа (например, аргона) при прочих равных условиях.

### **3.2. Специфика понятия поляризации для импульсного ТГц излучения**

Прежде чем приступать к экспериментальному исследованию поляризации ТГц излучения, необходимо подчеркнуть некоторую специфику самого понятия “поляризация” для излучения в терагерцовом диапазоне частот. Это связано с тем, что импульсное терагерцовое излучение является, как правило, широкополосным, и это в первую очередь характерно для излучения из плазмы оптического пробоя. Так, излучение, получаемое при оптическом пробое азота двухцветным импульсом длительностью 85 фс, имеет спектр, распространяющийся до приблизительно от 0.5 до 10 ТГц [70], то есть покрывает более четырех октав частоты. Различные частотные компоненты такого импульса при распространении в двулучепреломляющих средах могут приобретать различные частотные фазовые сдвиги между ортогональными проекциями электрического поля. Таким образом, каждая спектральная компонента импульса получит некоторую степень эллиптичности, в общем случае, неодинаковую. Смысл понятия поляризации импульса в целом в данном случае размывается за исключением частного случая линейной поляризации, при котором плоскость колебаний вектора электрического поля остается неизменной, и совпадает с плоскостью колебаний для каждой спектральной компоненты данного импульса. В остальных случаях поляризацию ТГц импульса можно охарактеризовать двумя способами [90, 123]: либо перейти в спектральное представление импульса и рассматривать поляризацию каж-

дой отдельной спектральной компоненты, либо, оставаясь во временном представлении, описать годограф электрического поля, то есть указать положение конца электрического вектора в системе координат, связанной с импульсом, в каждый момент времени.

Второй способ является более наглядным и удобным для визуального восприятия, а первый удобнее при теоретическом описании. Для обоих способов описания поляризации характерно то, что они требуют знания зависимости величины и направления вектора электрического поля от времени. Пример описание состояния поляризации импульса, обладающего широким спектром (в общем случае, любого электромагнитного импульса, для которого несущая частота и длительность импульса соотносятся как  $\omega\tau \approx 1$ ; этому условию удовлетворяет импульсное ТГц излучение), можно найти в работе [124]. В частности, в ней рассмотрена эволюция конца вектора электрического поля для широкополосного ТГц импульса ( $\omega\tau \approx 1$ ), в котором каждая спектральная компонента является циркулярно поляризованной. Было продемонстрировано, что для такого широкополосного импульса при циркулярной поляризации не является постоянным направление вращения конца вектора электрического поля, что кардинально расходится с классическими представлениями о циркулярно поляризованном монохроматическом или узкополосном импульсном излучении. Примеры экспериментальных работ, посвященных получению и анализу состояния поляризации ТГц излучения, отличного от линейного, приведены в статьях [125], [126], [127]. В работе [125] особенно интересно и наглядно представлено сравнение поляризации, близкой к циркулярной, для широкополосного и узкополосного терагерцового излучения. Только для узкополосного излучения конец вектора электрического поля описывает классическую спираль (см. рис. 3.3).

### 3.3. Поляризация ТГц излучения

#### 3.3.1. Измерения в схеме без разделения пучков первой и второй гармоники

В настоящей работе экспериментальное исследование поляризационных свойств и фазовых зависимостей при генерации терагерцового излучения проводилось как в двухпучковой схеме, подробно описанной в главе 2, так и в однопучковой схеме, в которой кристалл ВВО располагался непосредственно перед фокальной областью линзы. Азимутальный угол поворота кристалла составлял  $55^\circ$  к поляризации излучения на основной частоте, поскольку при этом достигалась наибольшая эффективность генерации низкоча-

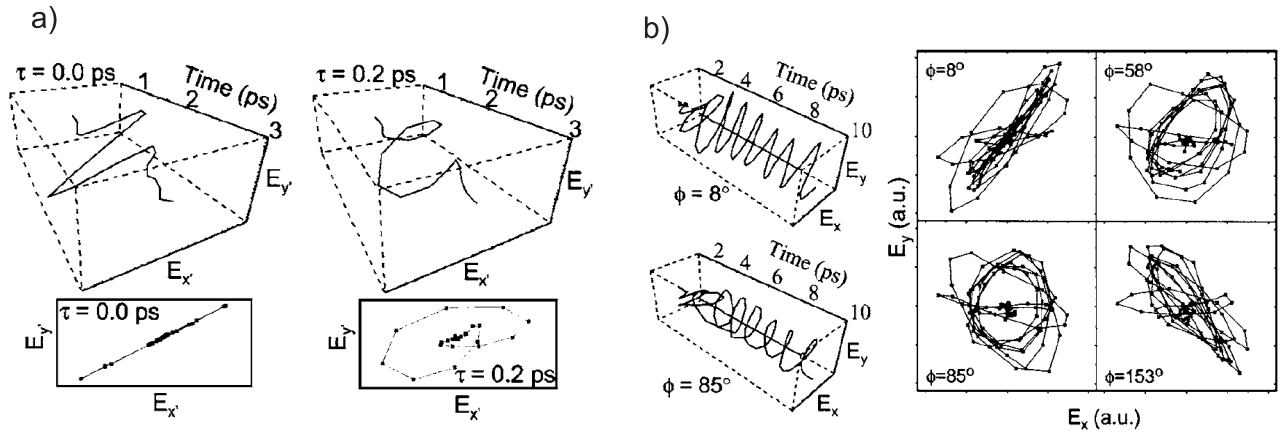


Рис. 3.3. Траектория конца вектора электрического поля для различных состояний поляризации ТГц излучения. а) Широкополосное излучение, линейная и циркулярная поляризация. б) Узкополосное излучение, различные степени эллиптичности

стотного излучения. Положение и ориентация кристалла ВВО подбирались путём максимизации интенсивности ТГц импульса, детектируемой акустооптической ячейкой Голея.

Движение кристалла ВВО вдоль направления распространения обеспечивает контролируемое изменение разности фаз между первой и второй гармоникой. С учётом дисперсии воздуха при атмосферном давлении для длин волн 400 нм и 800 нм перемещение в 5.2 см эквивалентно изменению разности фаз между гармониками на  $2\pi$ :  $\Delta\psi = \psi_2 - 2\psi_1 = \frac{2\omega d}{c} \Delta n$ . Кроме того, при приближении кристалла ВВО к точке фокуса эффективность процесса ГВГ увеличивается и величина поля второй гармоники возрастает.

В ходе эксперимента регистрировалась интенсивность, измеряемая ячейкой Голея, перед которой помещался анализатор ТГц излучения. При этом имелось два изменяемых параметра: ориентация анализатора ТГц излучения перед приемником, и расстояние от кристалла ВВО до перетяжки. Для удобства восприятия результатов координата положения кристалла пересчитывалась в разность фаз между излучениями первой и второй гармоники с точностью до неизвестной аддитивной константы. Результаты экспериментальных измерений интенсивности ТГц излучения от разности фаз и от ориентации анализатора излучения показаны на рисунке 3.4, а. Для сравнения, на рисунке 3.4, б представлена теоретическая зависимость, рассчитанная в рамках модели формирования фототока при туннельной фотоионизации в согласии с формулами (1.16), (1.18).

Из экспериментальных и теоретических графиков видно, что эффективность генерации ТГц излучения для любой фиксированной поляризации меняется периодически при



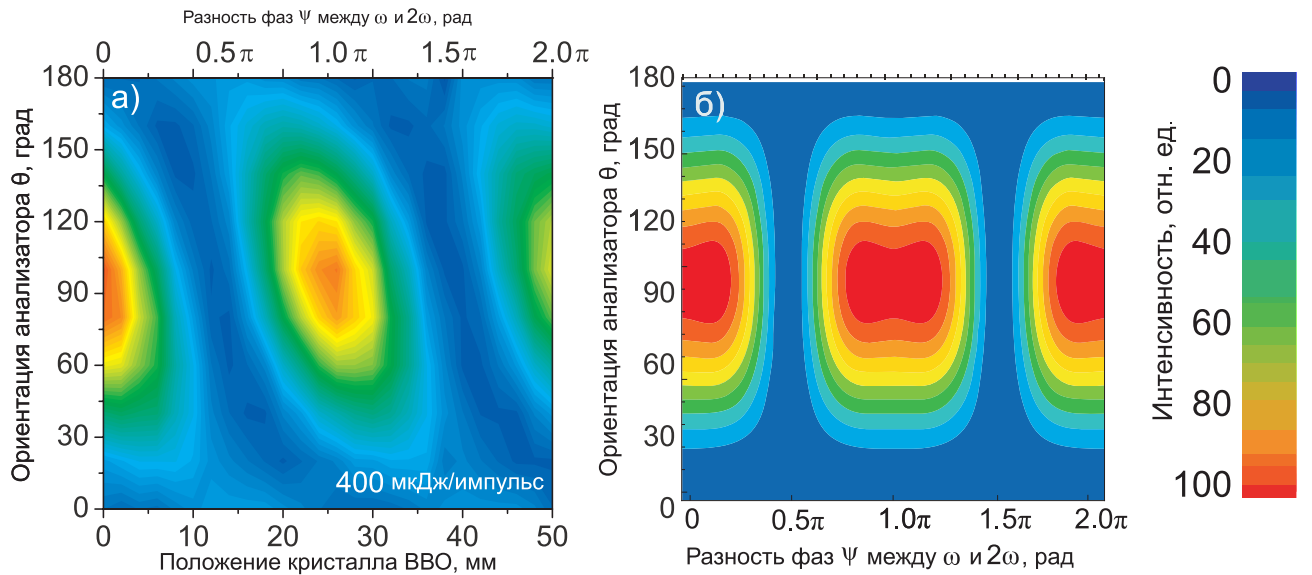


Рис. 3.4. а) Интенсивность ТГц излучения, прошедшего через анализатор, ориентированный под углом  $\theta$ , в зависимости от разности фаз между гармониками  $\psi$ . Энергия в импульсе первой гармоники перед кристаллом ВВО составляет 400 мкДж, угол между первой и второй гармоникой  $55^\circ$ , поляризация излучения первой гармоники соответствует углу  $90^\circ$  анализатора. б) Расчетная зависимость интенсивности, вычисленная по формулам (1.16), (1.18)

изменении разности фаз между первой и второй гармониками, что согласуется как с моделью четырехволнового смешения ( $E_{THz}(t) \propto \chi^{(3)} E_{2\omega}(t) E_\omega^*(t) E_\omega^*(t) \cos(\psi)$  [60]), так и с фототоковой моделью (сравнение левого и правого графика на рис. 3.4). При оптимальной разности фаз (на графике это соответствует точкам максимальной яркости), поляризация излучения близка к линейной и направлена вдоль поляризации первой гармоники.

Тем не менее, существует большое различие между экспериментально наблюдаемой зависимостью и зависимостью, описываемой в рамках рассмотренной модели фототоковой генерации ТГц излучения. Из рисунка 3.4, а видно, что при изменении значения разности фаз максимум интенсивности прошедшего сигнала достигается при различных ориентациях анализатора, то есть поляризация излучения поворачивается с изменением  $\psi$ . На рисунке это соответствует “наклону” областей с наибольшей эффективностью генерации относительно осей графика. Тем не менее, модельные вычисления не приводят к такому результату, как можно видеть из рисунка 3.4, б. Есть несколько причин такого различия экспериментальных данных от теоретических. Модель предполагает строго детерминированное постоянное соотношение между поляризациями и фазами излучения на частоте

первой и второй гармоники, и, по сути, описывает излучение из одной точки лазерной искры. В реальности в различных точках лазерной искры разность фаз  $\psi$  вследствие самомодуляции и дисперсии в образующейся плазме изменяется, а поляризация второй гармоники поворачивается благодаря оптическому эффекту Керра (3.3) (более подробно этот эффект рассмотрен в главе 4). Кроме того, важную роль играет небольшая эллиптичность, приобретаемая излучением на фундаментальной частоте при прохождении через кристалл ВВО, если он наклонен по отношению к падающему излучению даже на малый угол. Об этом также упоминалось в работе Линденберга [49].

Еще одним фактором, несколько затрудняющим интерпретацию экспериментальных результатов в данной схеме генерации, является терагерцовое излучение, генерируемое в кристалле второй гармоники. Оно распространяется соосно с терагерцовым излучением, имеет сравнительно высокую интенсивность и малую расходимость, поэтому практически невозможно отделить его в такой схеме эксперимента от терагерцового излучения из плазмы.

Таким образом, в поставленном эксперименте была охарактеризована поляризация излучения, генерируемого в однопучковой схеме. При разности фаз между гармониками, при которой достигается максимальная эффективность генерации, терагерцовое излучение имеет поляризацию, близкую к линейной, параллельной первой гармонике. Изменение фазы между гармониками приводит к уменьшению эффективности генерации при одновременном повороте эллипса поляризации терагерцового излучения. Несмотря на то, что поляризационные свойства плазмы как нелинейной среды в такой схеме генерации получить трудно, все полученные данные имеют практическую ценность, поскольку именно однопучковая схема генерации наиболее удобна для применения в широкополосных ТГц спектрометрах.

Наиболее надёжно контролируемых параметров возбуждающего излучения можно добиться в двухпучковой схеме генерации терагерцового излучения. В ней также сводится к минимуму вклад от генерации в кристалле ВВО, поскольку терагерцовое излучение из кристалла не отражается от диэлектрических зеркал в плече второй гармоники, и, следовательно, не достигает ни области генерации, ни детектора ТГц излучения.

Исследование поляризации ТГц излучения в двухпучковой схеме проводилось при помощи проволочного анализатора ТГц излучения и акустооптической ячейки Голея в качестве детектора. Энергия возбуждающего пучка первой и второй гармоники вблизи

перетяжки составляла 230 и 50 мкДж в импульсе соответственно.

Линейная поляризация излучения второй гармоники была зафиксирована вдоль оси  $x$ . Поляризация первой гармоники была изменяемым параметром эксперимента, она задавалась фазовой пластинкой  $\lambda/2$  и дополнительно очищалась призмой глана. Изменяемый угол между поляризациями первой и второй гармоники составляет  $\psi$  (см. выражение (1.27)).

В начале эксперимента выставлялись параллельные поляризации гармоник и при помощи линейного транслятора производился поиск оптической длины пучка второй гармоники, при котором импульсы прибывают в перетяжку одновременно. При этом интенсивность терагерцового излучения на детекторе была максимальной. Далее для ряда поляризаций первой гармоники проводилась серия измерений интенсивности ТГц излучения на детекторе в зависимости от ориентации ТГц анализатора. Результаты измерений для углов между поляризациями  $0^\circ$ ,  $30^\circ$ ,  $50^\circ$ ,  $70^\circ$  показаны на рисунке 3.5. На этих же графиках сплошными линиями показаны аппроксимации экспериментальных данных гармонической функцией, позволяющие определить направление поляризации ТГц излучения и степень его эллиптичности.

Из графиков на рисунке 3.5 видно, что для углов в диапазоне  $0 - 70^\circ$  поляризация ТГц излучения практически совпадает с направлением поляризации первой гармоники, причем при углах, меньших  $50^\circ$ , излучение линейно поляризовано в пределах точности измерений. Этот результат расходится как с направлением тока свободных электронов с учётом поляризации (и в туннельном, и в многофотонном приближении, что видно из рис. 1.3 и 1.4), так и поляризацией связанных электронов в приближении в изотропной нерезонансной среде без дисперсии (рис. 1.5). Для всех упомянутых моделей характерно более существенное отличие направления поляризации ТГц излучения и от направления поляризации первой гармоники.

Отдельно рассмотрим случай строго ортогональных поляризаций первой и второй гармоники. В этой конфигурации наблюдаемый терагерцовый сигнал имеет линейную поляризацию, параллельную поляризации второй гармоники (см. рис. 3.6). Этот результат хорошо согласуется как с направлением нелинейной поляризации третьего порядка в среде без дисперсии, так и с направлением тока свободных электронов в туннельном и многофотонном приближении. Однако, полученная в эксперименте интенсивность ТГц излучения в данной конфигурации приблизительно в 42 раза меньше, чем наблюдаемая при

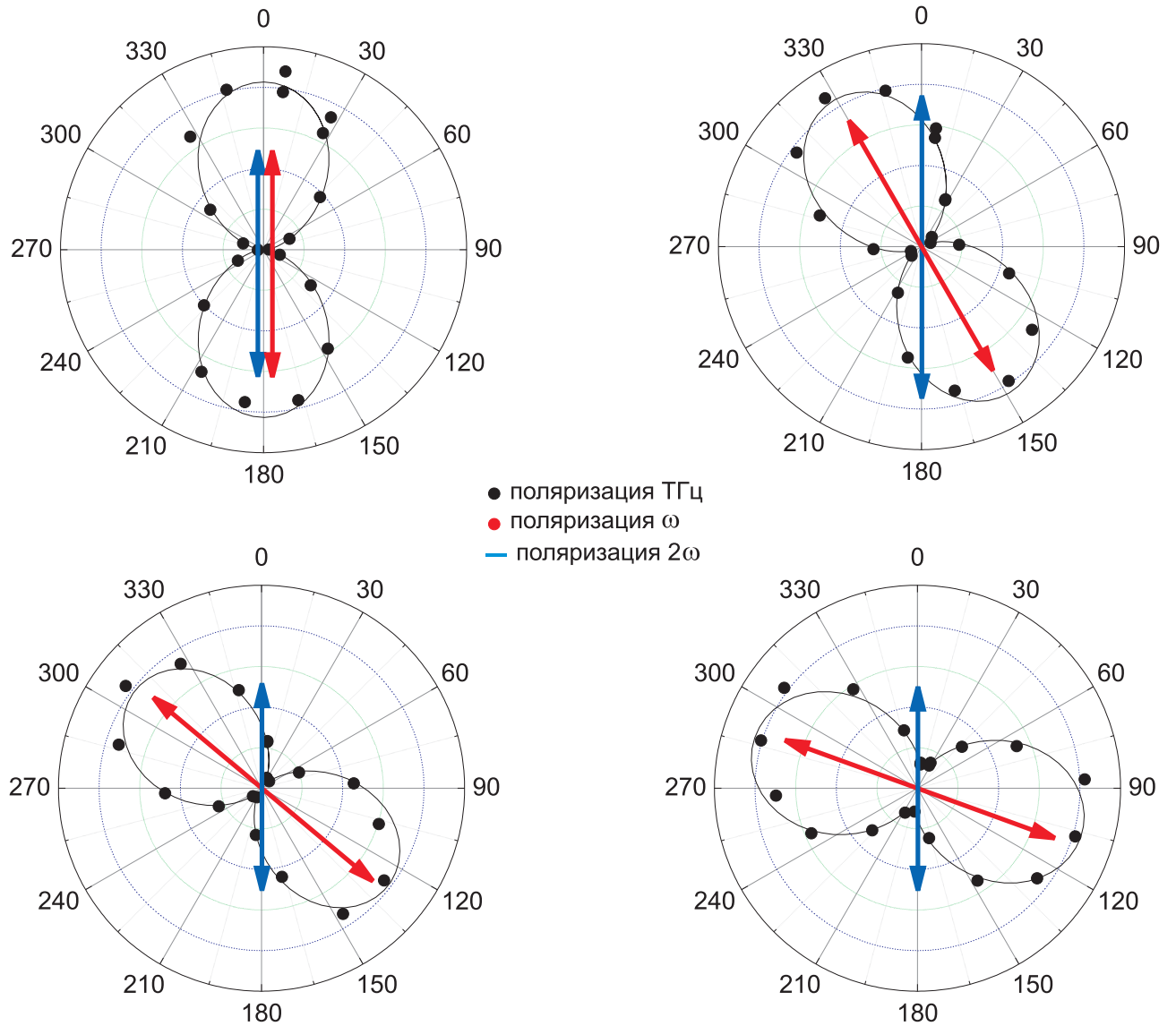


Рис. 3.5. Поляризации терагерцового излучения для различных значений угла между линейными поляризациями первой и второй гармоники ( $0^\circ$ ,  $30^\circ$ ,  $50^\circ$ ,  $70^\circ$ )

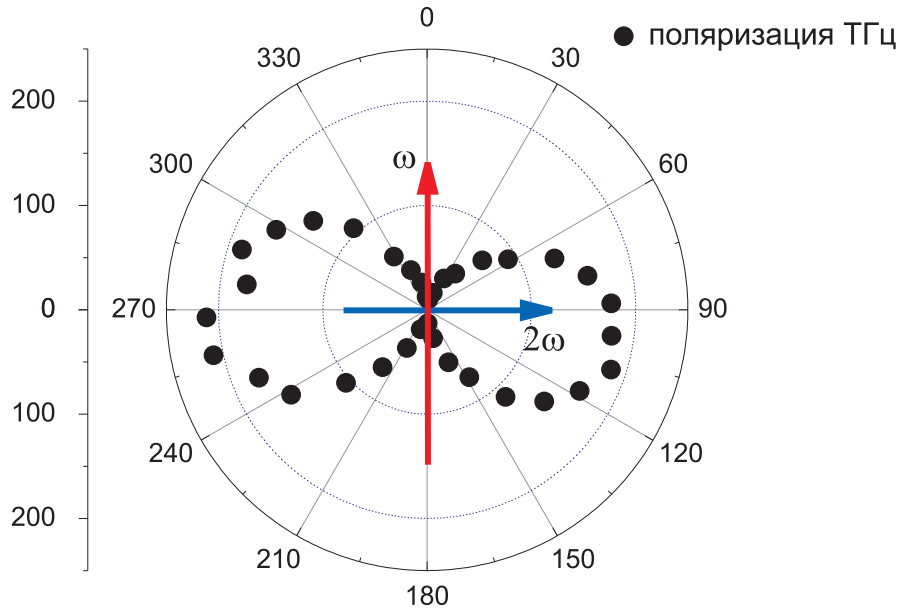


Рис. 3.6. Поляризация ТГц излучения при линейных взаимно ортогональных поляризациях первой и второй гармоники

ортогональных поляризациях. Ожидаемое в рамках модели поляризации связанных электронов в нерезонансной среде соотношение интенсивностей должно составлять 1:9. Для фототоковой модели в приближении туннельной ионизации также 1:9, а в приближении многофотонной ионизации - примерно 1:5.3, учитывая энергию пучка фундаментальной гармоники, равную 230 мкДж, что соответствует параметру Келдыша 2.9.

Наблюдаемая в эксперименте поляризация ТГц излучения существенно отличается от ожидаемой в рамках моделей фототока и четырехволнового оптического выпрямления в изотропной нерезонансной среде. Тем не менее, для описания экспериментальных зависимостей интенсивности и поляризации ТГц излучения от угла  $\psi$  можно ввести эффективный тензор нелинейной восприимчивости. Были найдены следующие нормализованные компоненты тензора  $\hat{\chi}^{(3)}$ , которому наиболее хорошо соответствуют экспериментальные данные:

$$\begin{aligned} \chi_{xxxx}^{(3)} &= 1 & \chi_{yuyx}^{(3)} &= 0.05 & \chi_{xyyx}^{(3)} &= \chi_{xyyy}^{(3)} = 0 \\ \chi_{yuyu}^{(3)} &= 0.33 & \chi_{xyxy}^{(3)} + \chi_{xyyx}^{(3)} &= 1.25. \end{aligned} \quad (3.1)$$

Для сравнения экспериментальных данных с различными моделями, на рисунке 1.5 показаны экспериментальные зависимости направления поляризации и интенсивности ТГц излучения, а также результаты моделирования в предположении нерезонансной изотроп-

ной среды (черным цветом), поляризация, обусловленная найденным эффективным тензором нелинейной восприимчивости среды (3.1), а также тензором нелинейной восприимчивости среды из работы Мисировича [61] (см. таблицу 3.1). Видно, что тензорные компоненты, найденные в работе Мисировича, удовлетворительно описывают лишь интенсивность ТГц излучения, полученной в настоящей работе. Феноменологическое отличие свойств среды от изотропных и нерезонансных может свидетельствовать как о непостоянстве фазовых и поляризационных соотношений между полями двух гармоник на всей длине перетяжки, так и об одновременном проявлении механизмов фототока и нелинейного отклика связанных молекул. Как видно из рисунка 1.5, экспериментальные точки занимают промежуточное положение между модельными кривыми для этих двух механизмов.

Поскольку при углах между поляризациями оптических гармоник от  $0^\circ$  до  $70^\circ$  ТГц излучение поляризовано практически параллельно первой гармонике, а при угле  $90^\circ$  эти поляризации уже перпендикулярны, интересно рассмотреть подробнее случай  $\phi = 80^\circ$ . При этом направление поляризации терагерцового излучения существенно отличается от обеих гармоник. Результат измерений можно видеть на рисунке 1.5 синими точками. Более того, для этой конфигурации наиболее сильно выражена зависимость поляризации терагерцового излучения от временной задержки между импульсами первой и второй гармоники, которая представлена на рисунке 3.7. Отрицательные значения временной задержки на графике соответствуют тому, что импульс второй гармоники опережает импульс первой гармоники. На этом же рисунке показана зависимость интенсивности регистрируемого ТГц излучения от временной задержки в отсутствие ТГц анализатора.

На рисунке 3.7 видно, что поляризация терагерцового излучения лежит за пределами сектора, ограниченного поляризациями пучков  $\omega$  и  $2\omega$  для отрицательных и близких к нулевым значениям временной задержки. Для положительных значений линии задержки поляризация терагерцового излучения лежит в указанном секторе, и отличается от поляризации первой гармоники приблизительно на  $10^\circ$ . Моделирование различных механизмов нелинейности (безынерционный керровский отклик связанных электронов, ток свободных электронов с учётом процесса фотоионизации в туннельном приближении) для такой конфигурации возбуждающих полей (выражения (1.21), (1.17)) дает результаты, показанные на рисунке 3.8. Поляризация излучения, обусловленного током свободных электронов в туннельном приближении, отстоит от вектора  $\mathbf{E}_\omega$  на угол  $\arctan\left(\frac{1}{3}\tan(80^\circ)\right) = 62^\circ$ . Поляри-

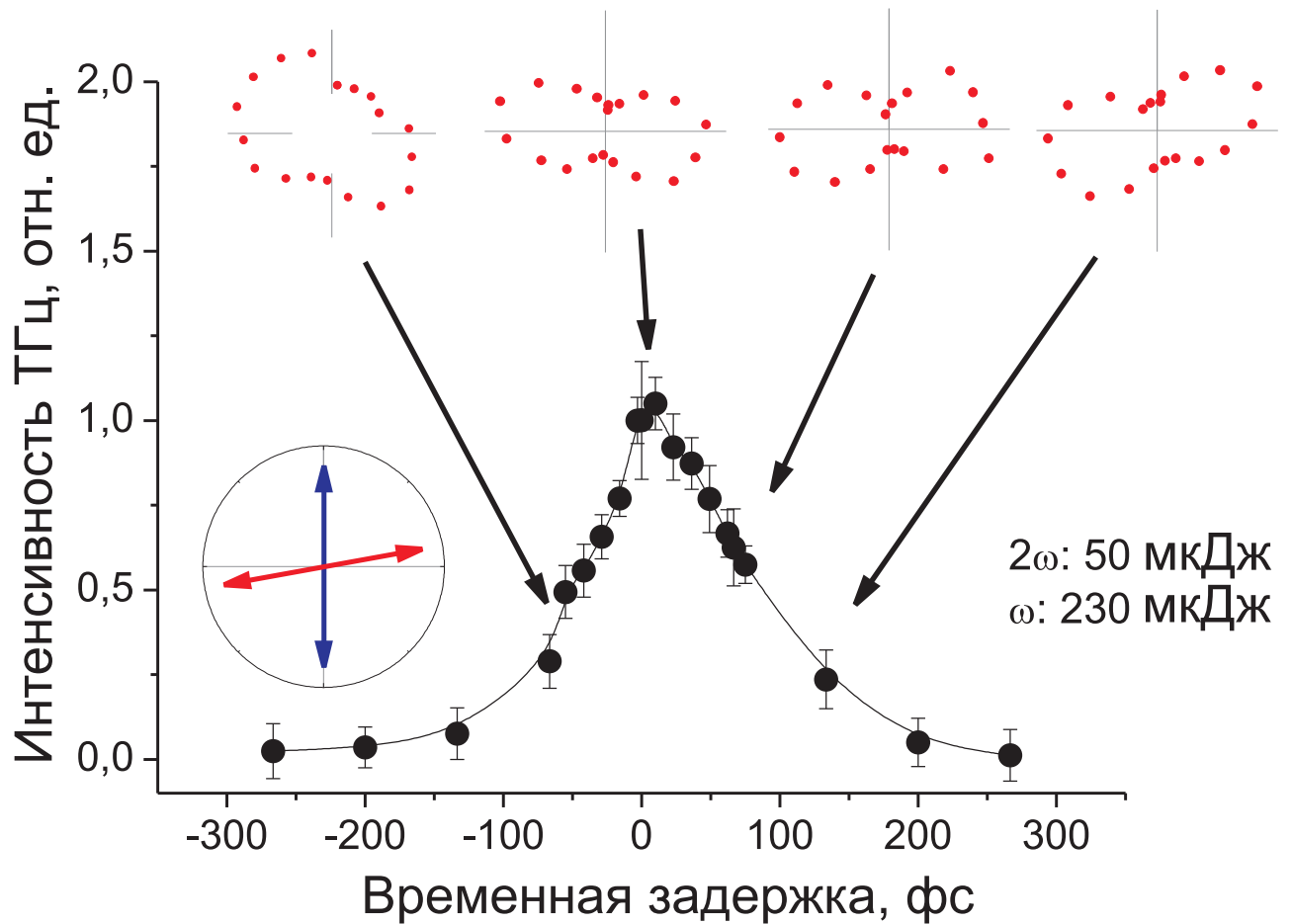


Рис. 3.7. Поляризация терагерцового излучения в зависимости от времени задержки между импульсами первой и второй гармоники. Поляризации первой и второй гармоники линейны и образуют между собой угол 80 градусов. Для отрицательных значений временной задержки импульс второй гармоники прибывает раньше импульса первой гармоники. Энергия первой гармоники 230 мкДж в импульсе, для второй гармоники - 50 мкДж в импульсе.

зация излучения, обусловленного нерезонансным откликом изотропной среды, составляет с вектором  $\mathbf{E}_\omega$  такой же угол  $\arctan\left(\frac{1}{3}\tan(80^\circ)\right) = 62^\circ$ , но эти векторы лежат по разные стороны относительно вектора  $\mathbf{E}_\omega$ .

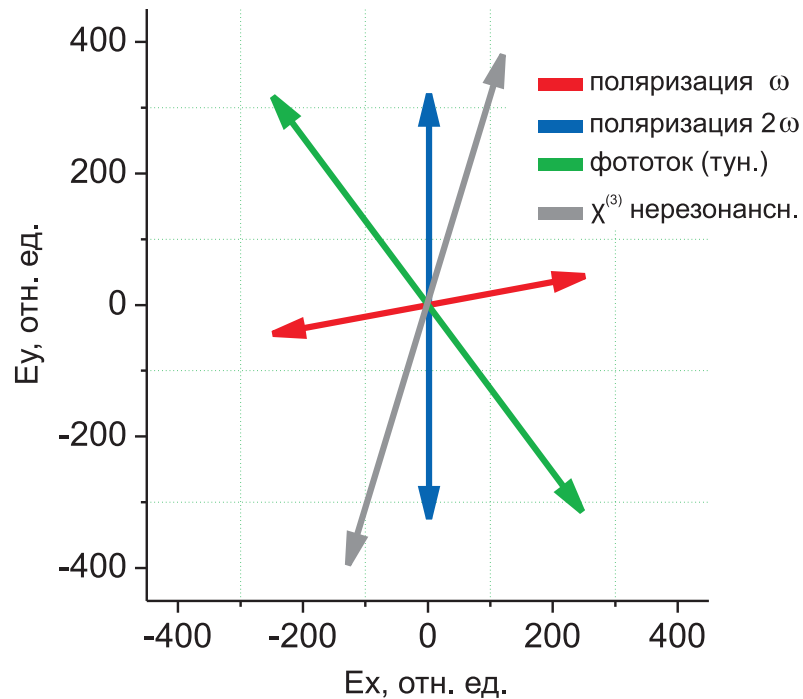


Рис. 3.8. Поляризация терагерцового излучения при угле между  $80^\circ$  поляризациями  $\omega$  и  $2\omega$ , обусловленная различными механизмами нелинейности. Красным цветом показана поляризация импульса первой гармоники, синим цветом - поляризация второй гармоники. Зеленым цветом показана поляризация импульса фототока в туннельном приближении, серым - поляризация третьего порядка связанных электронов

Сравнение рисунков 3.8 и 3.7 показывает, что для опережающего импульса второй гармоники поляризация нелинейного отклика связанных электронов в терагерцовом диапазоне соответствует поляризации тока свободных электронов с учетом туннельной ионизации, а при опережающем импульсе первой гармоники она близка к поляризации импульса первой гармоники.

Для этой же конфигурации возбуждающих полей были также проведены измерения при меньшей интенсивности излучения первой гармоники. При уменьшении интенсивности импульса первой гармоники (рис. 3.9) до 180 мкДж в импульсе поляризация ТГц излучения для всех временных задержек становится более близкой к поляризации тока свободных электронов в туннельном приближении, а для еще более низкой энергии (180 мкДж в импульсе первой гармоники) поляризация ТГц излучения окончательно становит-



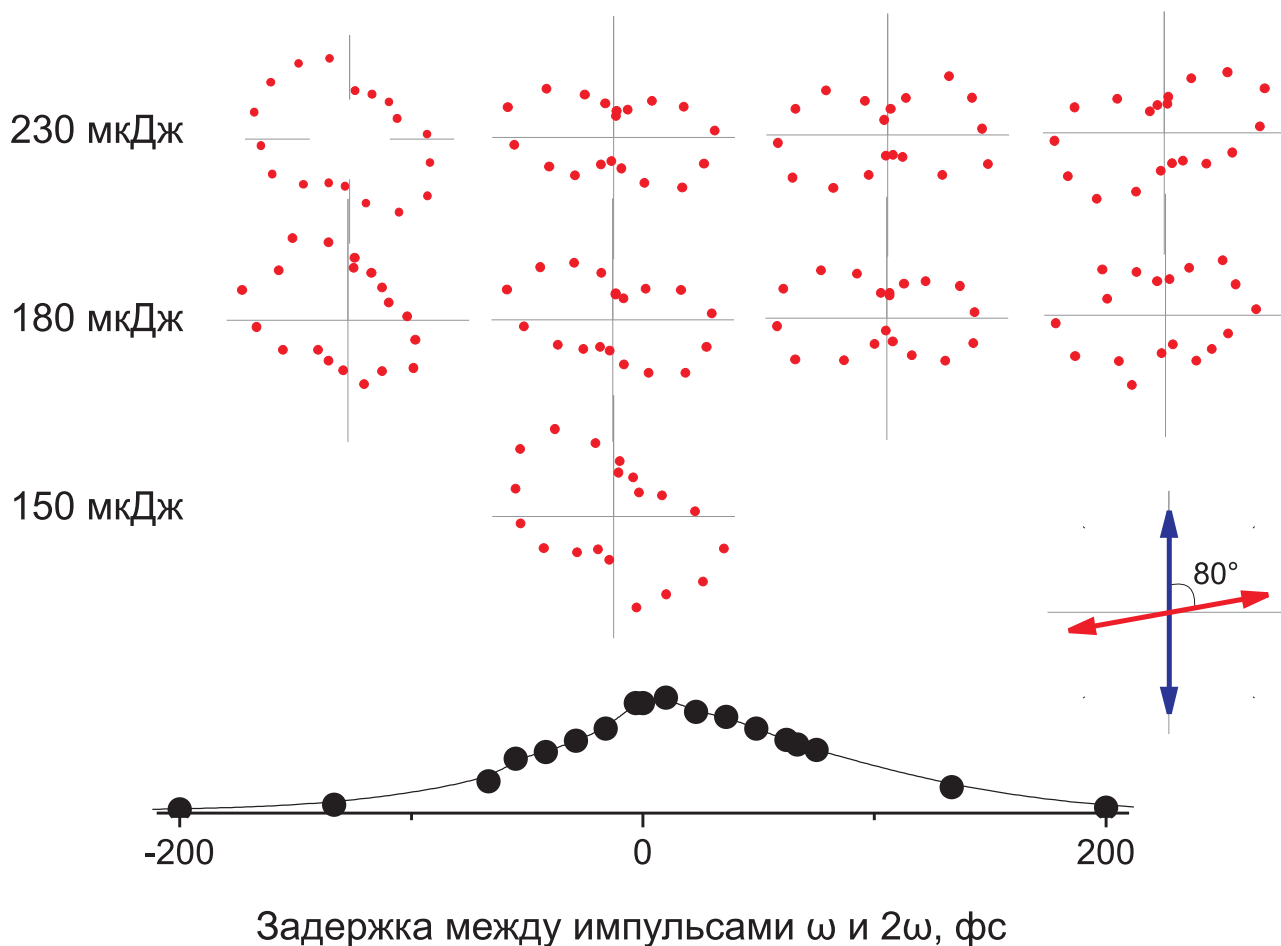


Рис. 3.9. Поляризация терагерцового излучения в зависимости от времени задержки между импульсами первой и второй гармоники. Поляризации первой и второй гармоники линейны и образуют между собой угол 80 градусов. Энергия в импульсе второй гармоники постоянна и составляет 50 мкДж, а энергия первой гармоники берется равной 150, 180 и 230 мкДж. Для отрицательных значений временной задержки импульс второй гармоники опережает импульс первой гармоники

се подобной поляризации тока свободных электронов в туннельном приближении.

Похожие результаты получаются при других взаимных ориентациях поляризации оптических гармоник. На рисунке 3.10 показана временная зависимость поляризации ТГц излучения для угла между поляризациями первой и второй гармоники в  $10^\circ$  и энергиях 230 мкДж и 50 мкДж в импульсах первой и второй гармоники соответственно. Поляризация ТГц излучения в случае, когда вторая гармоника опережает первую гармонику на 120 фс (первая из точек, в которых измерена поляризация), повернута на  $7^\circ$  относительно поляризации первой гармоники и находится за пределами сектора, ограниченного поляризациями  $\omega$  и  $2\omega$ . Для остальных четырех задержек второй гармоники (-66, 0, 66, 133

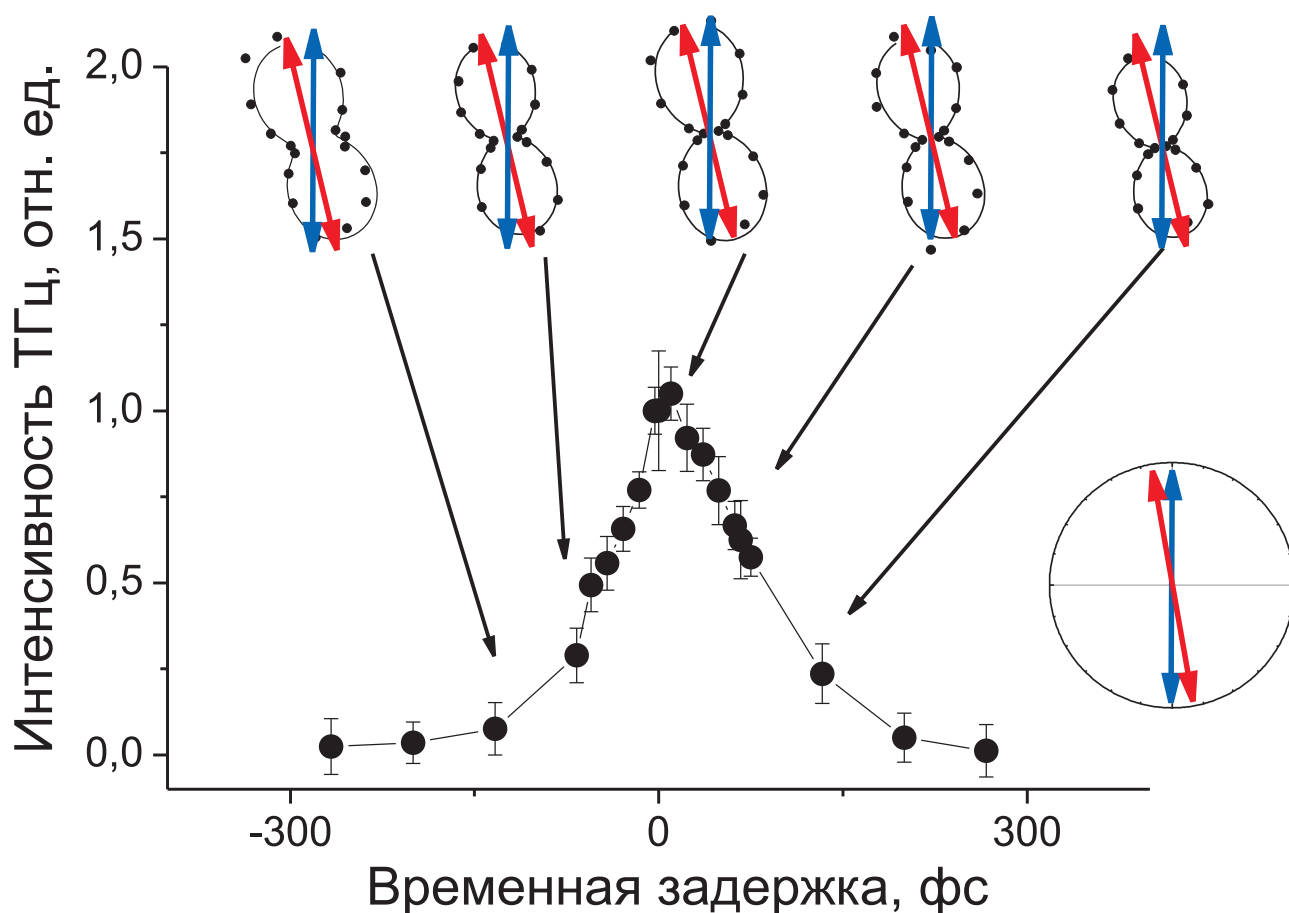


Рис. 3.10. Поляризация терагерцового излучения в зависимости от времени задержки между импульсами первой и второй гармоники. Поляризации первой и второй гармоники линейны и образуют между собой угол 80 градусов. Для отрицательных значений временной задержки импульс второй гармоники опережает импульс первой гармоники. Энергия первой гармоники 230 мкДж в импульсе, для второй гармоники - 50 мкДж в импульсе.

фс) поляризация ТГц излучения совпадает с поляризацией первой гармоники с точностью до  $2^\circ$ . Анализ различных модельных механизмов нелинейного отклика (выражения (1.21), (1.17)) показывает, что поляризация тока свободных электронов с учетом ионизации в туннельном приближении лежит за пределами сектора между векторами  $\omega$  и  $2\omega$  и составляет угол  $\arctan\left(\frac{1}{3}\tan(10^\circ)\right) = 3.4^\circ$  с вектором  $\omega$ . Поляризация нерезонансного мгновенного керровского отклика связанных электронов составляет тот же угол с вектором  $\omega$ , но лежит внутри сектора  $\omega - 2\omega$  см. рис. 3.11. Как и в предыдущем рассмотренном случае, поляризация ТГц импульса более соответствует поляризации фототока, если импульс второй гармоники опережает импульс первой гармоники.

Одна из возможных причин отклонения экспериментальных результатов от теоре-

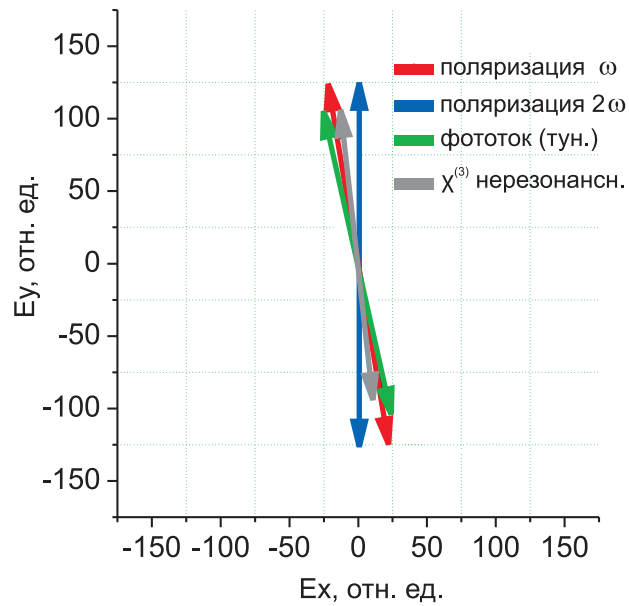


Рис. 3.11. Поляризация терагерцового излучения при угле между  $10^\circ$  поляризациями  $\omega$  и  $2\omega$ , обусловленная различными механизмами нелинейности. Красным цветом показана поляризация импульса первой гармоники, синим цветом - поляризация второй гармоники. Зеленым цветом показана поляризация импульса фототока в туннельном приближении, серым - нерезонансный вклад в  $\chi^{(3)}$ , черным - комплексным тензором  $\chi^{(3)}$  с полностью поляризованной резонансной частью

тических в приближении фототока или нерезонансной изотропной среды связана с ориентирующим воздействием оптического поля первой гармоники [128]. Как уже упоминалось в Главе 2, когерентное возбуждение вращательных уровней двухатомных молекул, в большом количестве присутствующих в воздухе, на масштабах времени порядка 100 фс приводит к частично-ориентированному состоянию среды с выделенным направлением, связанным с поляризацией излучения первой гармоники. Поскольку этот эффект имеет запаздывающий характер в отличие от нелинейности связанных электронов, он должен по-разному проявляться для различных сдвигов во времени между возбуждающими импульсами первой и второй гармоники. Для случая опережающего импульса второй гармоники (отрицательные временные задержки), импульс первой гармоники попадает в среду, когда последняя еще находится в слабовозбужденном состоянии и молекулы ориентированы хаотически. Для таких временных задержек главную роль в формировании ТГц излучения играет фототок, поляризация которого лежит за пределами сектора  $\omega - 2\omega$ .

В противоположном случае импульс второй гармоники встречает возбужденную среду, и поляризация ТГц излучения практически совпадает с поляризацией первой гармоники (поскольку оно является выделенным направлением ориентации молекул). Для определения роли ориентирующего воздействия оптического поля первой гармоники на молекулы газа необходимо сопоставить поляризацию ТГц излучения, генерируемого в воздухе, с поляризацией, возникающей при генерации в атомарных газах.

Для того, чтобы сравнить поляризацию ТГц излучения, генерируемого в молекулярном газе (воздухе) и атомарном (на примере аргона), эксперимент был проведен в газовой кювете для воздуха и аргона в полностью идентичных условиях. Использованная кювета представляла T-образную трубку из нержавеющей стали с вакуумными фланцами. В качестве входного окна кюветы была использована пластинка кварца КУ-1 толщиной 1 мм, выходное окно было сделано из тефлона и имело толщину 3 мм. Боковой вход кюветы использовался для откачки до давления 1 торр при помощи диафрагменного форвакуумного насоса и заполнения кюветы газом. Кювета помещалась в установку так, что фокус линзы, использованной для генерации, располагался на оси кюветы на расстоянии 3 см от выходного окна для оптимизации сбора ТГц излучения. Временная задержка между импульсами первой и второй гармоники выставлялась равной нулю, при этом энергия ТГц излучения была максимальной. Интенсивность терагерцового излучения, получаемого из кюветы, была в несколько раз меньше, чем в ее отсутствие при давлении воздуха 1 атм, что обусловлено геометрическими потерями на выходе из кюветы и френелевскими потерями на входном окне. Кроме того, интенсивность оптического излучения было необходимо понижать для избежания оптического повреждения входного окна кюветы. Сигнал, регистрируемый из аргона, был примерно в 5 раз слабее, чем из воздуха. В такой схеме были проведены измерения зависимости поляризации ТГц излучения от угла между линейными поляризациями первой и второй гармоники для аргона и воздуха при давлении 1 атм. Результаты измерений в аргоне и воздухе (включая измерения без кюветы, описанные выше) сведены на один график 3.12. Видно, что поляризация терагерцового излучения в двух различных газах полностью идентична. Это означает, что влияние процесса ориентации молекул воздуха полем первой гармоники на поляризацию ТГц излучения незначительно, и анизотропия эффективного тензора нелинейной восприимчивости не связана с этим явлением.

Еще один механизм, способный объяснить близость плоскости поляризации ТГц излу-

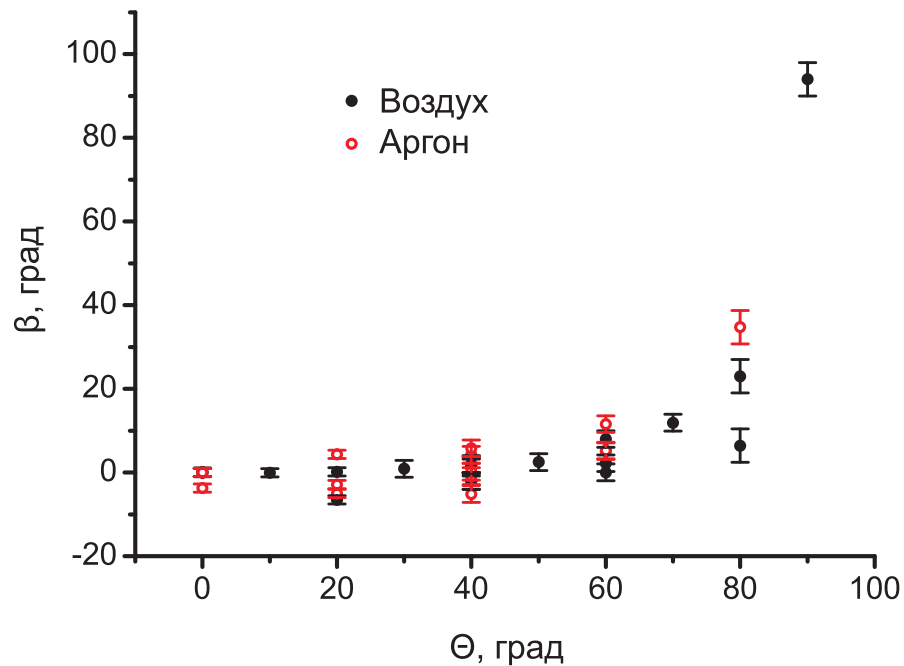


Рис. 3.12. Угол  $\beta$  между поляризациями первой гармоники и ТГц излучения в зависимости от угла  $\Theta$  между поляризациями первой и второй гармоники, измеренные при генерации в воздухе и аргоне при атмосферном давлении

чения к направлению поляризации фундаментальной гармоники, заключается во влиянии излучения первой гармоники на поляризацию излучения второй гармоники - оптическом эффекте Керра. Поскольку достигаемая в условиях эксперимента интенсивность первой гармоники достаточно велика (порядка  $10^{14}$  Вт/см<sup>3</sup>), а область плазменного облака вблизи перетяжки, где происходит нелинейное взаимодействие, имеет длину порядка сантиметра, состояние поляризации второй гармоники претерпевает значительные изменения по сравнению с ее исходным состоянием, и поэтому в процессе генерации ТГц излучения на различных участках перетяжки лазерного пучка поля первой и второй гармоники взаимодействуют с различными соотношениями фаз и поляризаций. Полная картина такого взаимодействия может быть получена только в рамках численного моделирования, но некоторые экспериментальные данные, связанные с проявлением этого процесса приведены в *параграфе 3.5* данной работы.

Кроме того, в работе исследовалась поляризация ТГц излучения при циркулярной поляризации излучения первой гармоники и линейно поляризованном излучении второй гармоники. В этом эксперименте энергия излучения первой гармоники равнялась 320 мкДж в импульсе, а второй гармоники - 50 мкДж в импульсе. Выравнивание оптических длин двух пучков производилось путём поиска положения длины плеча  $2\omega$ , которому соответствовал

максимум генерации комбинационной третьей гармоники.

Как и в предыдущем эксперименте, интенсивность излучения регистрировалась при помощи ячейки Голея, сигнал с которой в дальнейшем обрабатывался при помощи синхронного усилителя. Было обнаружено, что вне зависимости от ориентации анализатора интенсивность измеренного ТГц излучения остается практически неизменной (см. рис. 3.13). Это могло говорить как о циркулярно поляризованном излучении, так и о “случайно поляризованном излучении”, при котором каждый следующий импульс имеет случайное направление поляризации, а система регистрации производит усреднение по множеству импульсов и не успевает отслеживать разницу между соседними импульсами. Время отклика ячейки Голея составляет десятки миллисекунд, поэтому она автоматически усредняет интенсивность по нескольким десяткам терагерцовых импульсов.

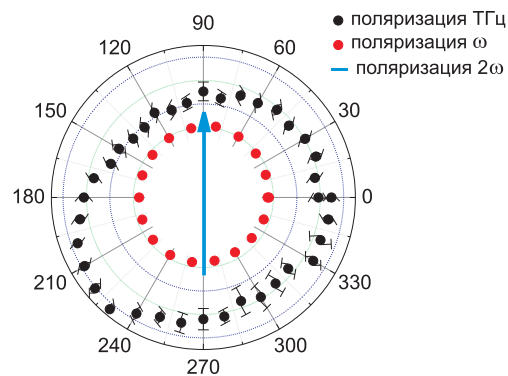


Рис. 3.13. Поляризация оптического и терагерцового излучения в случае взаимодействия циркулярно поляризованной первой гармоники и линейной второй гармоники.

Для того, чтобы определить, с каким из этих двух случаев мы столкнулись, нужно исключить возможность усреднения по многим импульсам при детектировании. Если перевести регенеративный усилитель из килогерцового режима в режим с частотой повторения импульсов 10 Гц, то ячейка Голея позволяет наблюдать на осциллографе интенсивность отдельных терагерцовых импульсов. На рис. 3.14, а) и 3.14, б) показаны отдельные импульсы терагерцового излучения, регистрируемые ячейкой Голея при отсутствии анализатора ТГц излучения и при его присутствии в оптическом тракте.

На первом графике видно, что, несмотря на наличие флуктуаций интенсивности, она в целом имеет постоянное значение. При помещении в ТГц пучок анализатора ТГц излучения относительные флуктуации интенсивности резко возрастают, причем появляются импульсы с практически нулевой интенсивностью. Это означает, что отдельные терагерцовые

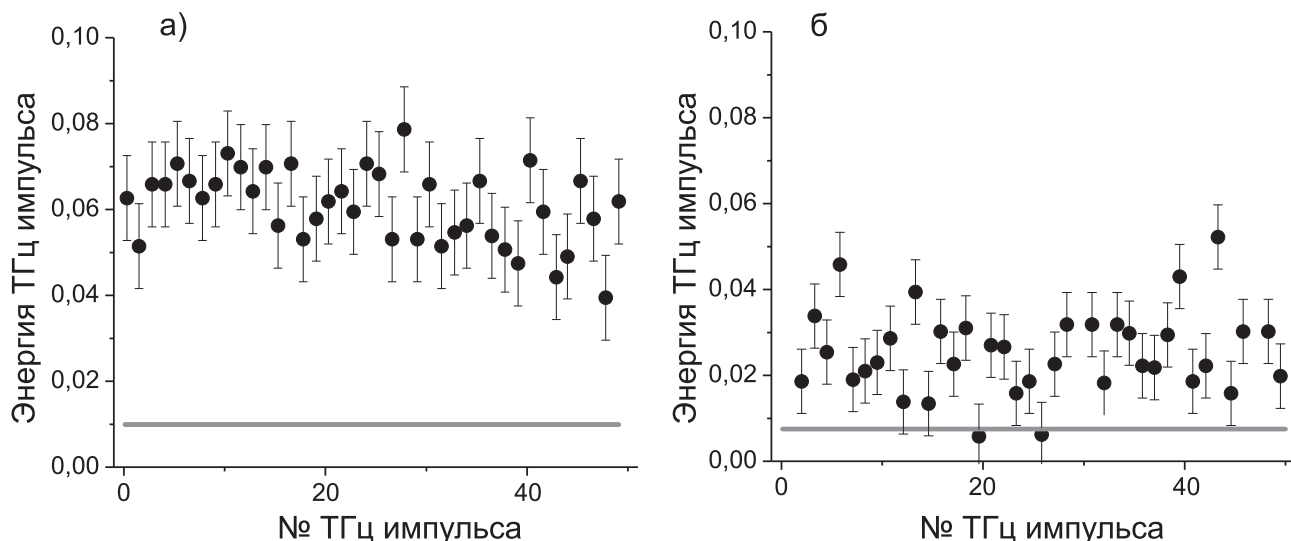


Рис. 3.14. Интенсивность последовательных импульсов ТГц излучения при взаимодействии циркулярно поляризованной первой гармоники и линейной второй гармоники в случае отсутствия (а) и присутствия (б) ТГц анализатора перед детектором

импульсы имеют одинаковую интенсивность, но направление их поляризации случайно меняется от импульса к импульсу. При этом поляризация отдельных импульсов линейна, так как при любой ориентации анализатора наблюдались импульсы с интенсивностью, близкой к нулю, и интенсивностью, близкой к средней в отсутствие анализатора. Причина такого хаотического изменения поляризации заключается в том, что в силу флуктуации оптических длин каждого из плеч пары импульсов первой и второй гармоники приходят со случайными значениями разности фаз  $\psi$  в случае, когда в установке не включена система принудительной стабилизации оптических длин плеч первой и второй гармоники.

Для той же конфигурации оптических полей, но при работающей системе активной стабилизации разности длин, был проведен поляризационный эксперимент с использованием системы детектирования ТГц поля с временным разрешением. Для этого использовалось электрооптическое детектирование в кристалле ZnTe толщиной 1 мм, а ориентация кристалла была выбрана таким образом, чтобы она позволяла детектировать с приблизительно равной эффективностью две взаимно ортогональных компоненты поляризации низкочастотного излучения. В ходе эксперимента использовался анализатор ТГц излучения, установленный в коллимированный терагерцовый пучок. Для исследования состояния поляризации, регистрировался временной профиль излучения для двух взаимно ортогональных ориентаций анализатора. На рисунке 3.15 а) результаты данных измерений представ-

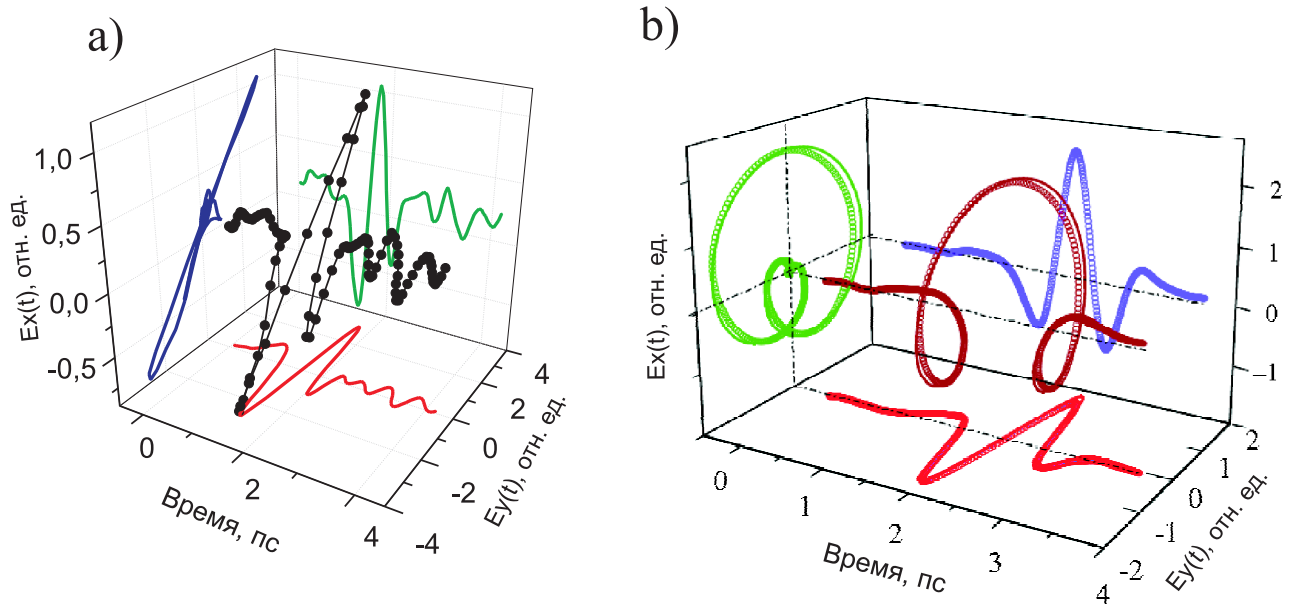


Рис. 3.15. а) Две проекции профиля ТГц поля при возбуждении циркулярно поляризованным излучением первой гармоники и линейно поляризованным излучением второй гармоники, полученные при помощи электрооптического детектирования и ТГц анализатора, помещенного в параллельный пучок. б) Две проекции профиля поля ТГц импульса, имеющего циркулярную поляризацию, рассчитанные и измеренные в работе [124]

лены в трехмерной форме: на двух гранях красным и зеленым показаны профили ТГц поля  $\mathbf{E}_{THzx}(t)$  и  $\mathbf{E}_{THzy}(t)$  в координатах E-t, полученные в результате измерений, на третьей грани синим - годограф конца вектора электрического поля  $\mathbf{E}_{THz}(t) = \mathbf{E}_{THzx}(t) + \mathbf{E}_{THzy}(t)$  в координатах  $E_x - E_y$ , между ними черным цветом - трехмерный профиль конца вектора электрического поля в осях  $E_x - E_y - t$ . Сравнение временного профиля двух проекций ТГц поля говорит об их идентичности, то есть вектор электрического поля всё время остаётся приблизительно в одной плоскости и поляризацию излучения можно считать близкой к линейной. Для сопоставления на рисунке 3.15 б) приведены изображения, построенные в тех же осях, для циркулярно поляризованного импульса ТГц излучения из работы [124]. В этой работе циркулярно поляризованное ТГц излучение было получено при помощи ромба Френеля. Трехмерный профиль поля в настоящей работе имеет принципиально иной характер, и можно заключить, что при данной конфигурации поляризаций возбуждающих полей мы не имеем дела с циркулярно поляризованным терагерцовым излучением.

Таким образом, при возбуждении плазмы циркулярно поляризованным импульсом первой гармоники и линейно поляризованным излучением второй гармоники ТГц излуче-



ние имеет линейную поляризацию, направление которой зависит от разности фаз  $\psi$  между полями первой и второй гармоники, а амплитуда одинакова для всех значений  $\psi$

Тем не менее, нужно упомянуть, что экспериментальная схема, использующая электрооптическое детектирование в паре с анализатором ТГц излучения не всегда является удобной для полной характеристики поляризации ТГц поля. Величина регистрируемого сигнала в данной схеме является функцией сразу нескольких параметров: поляризации детектирующего пучка, угла ориентации ТГц анализатора, ориентации электрооптического кристалла, ориентации конца электрического вектора ТГц поля в данный момент времени. При этом трудно добиться равной чувствительности системы детектирования к излучению для двух ортогональных поляризаций. Поэтому для случаев, если поляризация излучения близка к линейной, наиболее простым и удобным способом определения ее ориентации является комбинация интегрального детектора (например, ячейки Голея, пироэлектрика или болометра), и анализатора ТГц излучения.

### 3.4. Спектр терагерцового излучения

Для оценки полной ширины спектра терагерцового излучения был использован терагерцовый интерферометр Майкельсона с кремниевым болометром в качестве детектора излучения, описанный в Главе 2. Отметим при этом, что проблема исследования полной ширины спектра терагерцового излучения уже неоднократно решалась различными группами при помощи автокорреляционного метода с применением интерферометра Майкельсона (например, [38, 129]). Тем не менее, знание спектра излучения является ключевым для дальнейших применений плазмы оптического пробоя как источника ТГц излучения применительно к излучению данного конкретного фемтосекундного лазера. Кроме того, частотный спектр излучения позволяет получить также важную информацию о механизмах, обеспечивающих генерацию излучения (см. работу [91]).

При этом генерация излучения была реализована в наиболее удобном для практических применений однопучковом варианте, при достаточно высоких значениях энергии излучения накачки (до 1.4 мДж в импульсе). Величина сигнала, регистрируемого болометром при фиксированных длинах плеч интерферометра, была существенно выше амплитуды шумов на коротких масштабах времени, но медленный дрейф величины сигнала с характерным временем порядка минуты достигал 10-20% от его величины. Обычный размер интерферограммы, которой достаточно для определения ширины спектра излуче-

ния, составлял 500-700 точек с шагом 2.5 мкм. Сигнал в каждой точке обрабатывался синхронным усилителем с константой времени 20 либо 50 мс, и на запись одной точки с учетом времени перемещения транслятора до следующей точки составляло порядка 1/4 секунды. Таким образом, медленный дрейф величины сигнала за время записи интерферограммы существенно затруднял ее анализ, поэтому выполнялась последовательная запись нескольких интерферограмм (до 50) в автоматическом режиме в одинаковых условиях и последующее их усреднение. Характерный пример усредненной интерферограммы, полученной при возбуждении импульсом длительностью 130 фс и энергией 1.4 мДж, при фокусировке через кристалл ВВО при помощи линзы с фокусным расстоянием 15 см, показан на рисунке 3.16, а. Стоит отметить также, что упомянутый шум системы с временами порядка секунд проявляется в наибольшей степени для случая, когда в болометре используется фильтр, пропускающий излучение с частотами ниже 24 ТГц и в установке используются только дополнительные кремниевые фильтры. Если перед кремниевой пластинкой, используемой для отражения оптического излучения после перетяжки, поставить дополнительный тефлоновый фильтр, то есть рассеять оптическое излучение, то флуктуации фона практически исчезают, но тефлоновый фильтр отсекает компоненты ТГц излучения с частотой выше 5 ТГц. Предположительно, флуктуации фона связаны с нагревом и оптическим возбуждением кремниевой пластины.

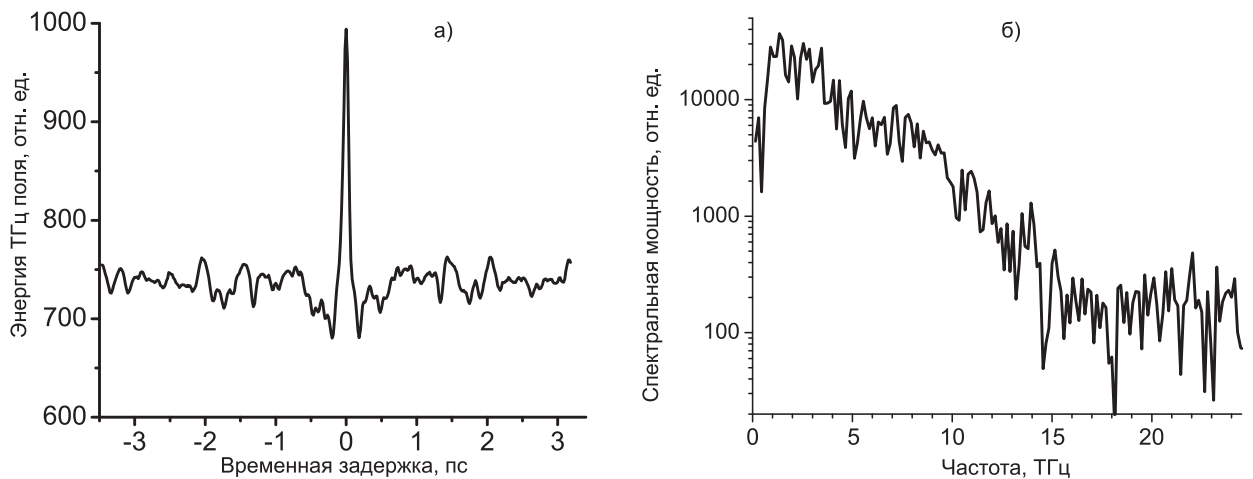


Рис. 3.16. а) Пример автокорреляционной функции, полученной при помощи интерферометра при возбуждении импульсом длительностью 130 фс и энергией 1.4 мДж; б) Спектр мощности ТГц импульса, полученный путем фурье-преобразования этой автокорреляционной функции

Как известно, фурье-образ автокорреляционной функции соответствует спектральной плотности мощности исследуемого излучения. Для спектрально-ограниченного воз-

буждающего импульса длительностью 130 фс она построена на рисунке 3.16, б. Сравнение с графиком 2.6, полученным при детектировании в плазме оптического пробоя, наглядно показывает преимущества интерферометрического детектирования перед другими методиками, позволяя увидеть наличие спектральных компонент выше 10 ТГц при возбуждении импульсом с длительностью 120-130 фс. Следует помнить, однако, что на графике 2.6 приведена спектральная амплитуда ТГц импульса, а на графике 3.16, б - спектральная мощность. Очевидным недостатком такого метода является высокая стоимость его реализации, так как болометр при работе требует криогенных температур. Кроме того, в данном методе детектирования происходит потеря информации о фазе сигнала в отличие от традиционных для данного диапазона методов терагерцовой спектроскопии с временным разрешением.

Поскольку интерферометрический метод детектирования не требует наличия пробного оптического импульса, возникает возможность исследовать зависимость спектра излучаемого ТГц импульса от длительности оптического импульса путем введения чирпа при помощи компрессора регенеративного усилителя. В эксперименте использовался как положительный, так и отрицательный чирп и длительности оптического импульса от 130 фс (спектрально-ограниченный импульс) до 700 фс для чирпа обоих знаков (см. рис. 3.17). Обнаружено, что спектр терагерцового импульса состоит из двух компонент, высокочастотной и низкочастотной. При минимальной длительности импульса низкочастотная часть спектра превышает по интенсивности высокочастотную приблизительно на порядок, но при введении положительного чирпа и увеличении длительности до примерно 300-350 фс спектральная интенсивность компонент приблизительно выравнивается, а полная ширина спектра несколько сужается. При дальнейшем увеличении длительности при том же знаке чирпа ширина спектра продолжает сужаться, а отдельные спектральные компоненты становится трудно разделить. Введение отрицательного чирпа приводит к быстрому уменьшению интенсивности и ширины спектра, причем высокочастотная его компонента исчезает уже при незначительном увеличении длительности (см. рис. 3.17). Описанные результаты хорошо согласуются с выводами нашей работы в Optics Letters 2013 года [91]. В работе было показано, что вклады фототока свободных электронов и нерезонансной нелинейной поляризации третьего порядка в генерацию ТГц излучения могут быть разделены между собой спектрально. Спектр фототока, обусловленного ионизацией атомов и молекул, лежит в более низкочастотной части спектра и максимум его спектральной

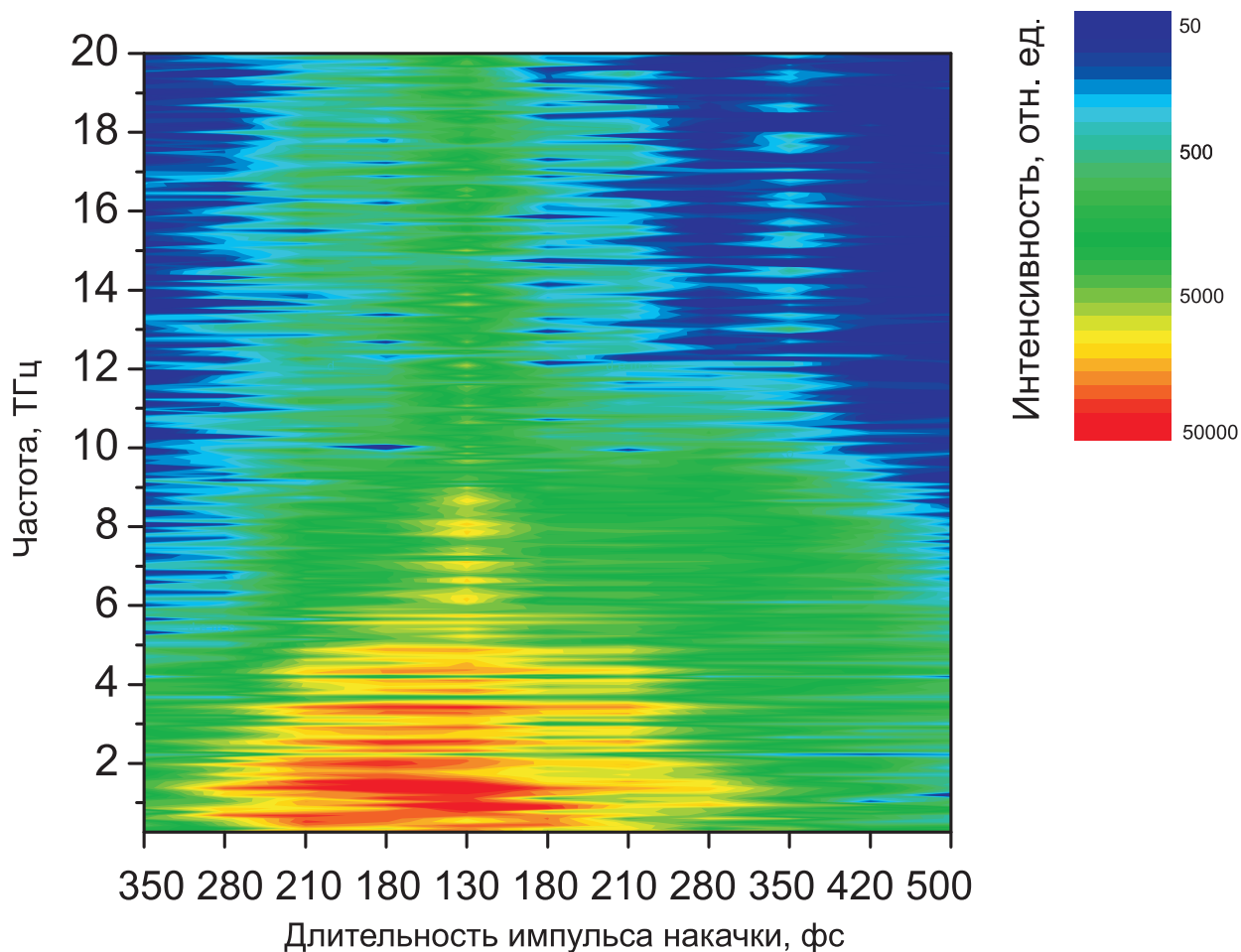


Рис. 3.17. Зависимость спектра излучаемого ТГц импульса от длительности возбуждающего оптического импульса. Левая часть графика соответствует введению отрицательного чирпа, правая - положительного

интенсивности пропорционален длительности импульса в степени  $-1/2$  ( $\omega_{max}^{pc} \propto \tau^{-1/2}$ ), в то время как спектр компоненты, обусловленной нерезонансной нелинейной поляризацией третьего порядка имеет максимум спектральной интенсивности в более высокочастотной области и изменяется при изменении длительности по закону  $\omega_{max}^{pol} \propto \tau^{-1}$  [91]. В качестве примера на рисунке 3.18, а) приведен спектр ТГц импульса при возбуждении импульсом длительностью 130 фс, а также фототоковая и поляризационная компонента ТГц излучения, приведенная для импульса такой длительности в работе [91]. Видно хорошее соответствие экспериментального и модельных спектров. Следует отметить, что до сих пор никому не удавалось экспериментально продемонстрировать наличие высоко- и низкочастотной компонент в спектре ТГц импульса из плазмы оптического пробоя и возможность управления соотношением между ними.

На рисунке 3.18, б) показано сравнение спектров ТГц импульса, полученного при

детектировании в плазме оптического пробоя (ABCD-детектирование) и при помощи интерферометра Майкельсона. Видно, что вследствие уменьшения спектральной чувствительности метода ABCD в области высоких частот часто ТГц спектра, обусловленную нерезонансной нелинейной поляризацией третьего порядка, практически невозможно исследовать этой методикой. В отличие от методики ABCD, интерферометр позволяет получить информацию также и о высокочастотных компонентах излучения. В области 0-4 ТГц данные, полученные этими двумя методиками, хорошо согласуются между собой.

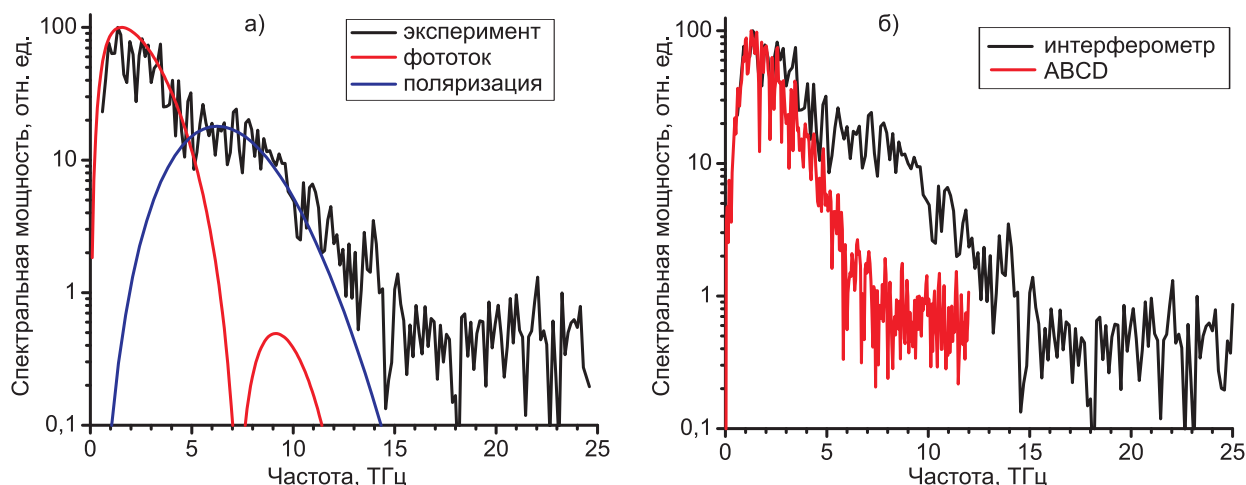


Рис. 3.18. а) Спектр мощности ТГц излучения, полученный при помощи интерферометра Майкельсона (черным), и вычисленный в рамках модели фототока (красным) и нелинейной поляризации третьего порядка (синим) [91]. б) Сравнение спектра ТГц импульса, полученного при помощи ABCD детектирования (красным) и интерферометрического детектирования (черным)

Поскольку при помощи интерферометра удастся зарегистрировать высокочастотную часть спектра терагерцового излучения, естественным образом возникает желание использовать интерферометр для спектроскопических измерений. В отличие от фурье-спектроскопии, в данном случае используется импульсное излучение, максимум интенсивности которого находится в терагерцовом диапазоне. В качестве примера, демонстрирующего наличие терагерцового излучения с частотами выше 5 ТГц, был измерен спектр пропускания инфракрасного фильтра КРС-5 (бромид-иодида таллия) [130] толщиной 3 мм, прозрачный в диапазоне 0.56-52 мкм. Фильтр помещался непосредственно перед входным окном болометра в ТГц пучок, прошедший через интерферометр. Интерферограмма сигнала, прошедшего через фильтр, его фурье-образ и фурье-образ опорного сигнала, прописанного без образца, приведены на рисунке 3.19 а) и б). На рисунке 3.19 в) показано сравнение спектра пропускания, полученного при помощи ТГц интерферометра и при помощи

коммерческого фурье-спектрометра фирмы Bruker, в том же диапазоне. Общий характер зависимости совпадает до 8-9 ТГц, после чего спектр сигнала, прошедшего через фильтр сравнивается с уровнем шума.

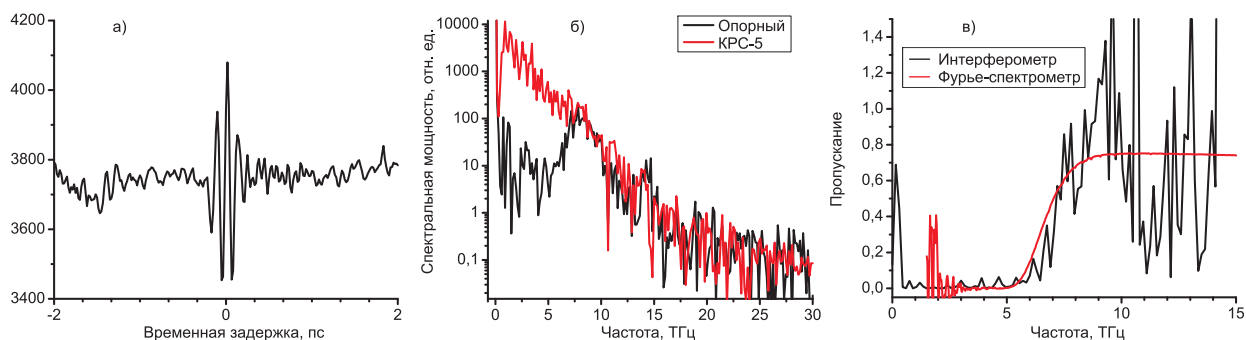


Рис. 3.19. а) Интерферограмма ТГц импульса, прошедшего через фильтр КРС-5 толщиной 3 мм б) Спектры мощности опорного сигнала и сигнала, прошедшего через фильтр КРС-5 в) Сравнение спектра пропускания, полученного при помощи интерферометра и при помощи фурье-спектрометра Bruker

### 3.5. Другие нелинейно-оптические процессы третьего порядка в плазме оптического пробоя среды

Помимо генерации ТГц излучения, в области фокуса двухцветного фемтосекундного излучения могут происходить и другие нелинейные процессы третьего порядка. В качестве примера можно рассмотреть генерацию излучения на частоте третьей и пятой гармоники  $3\omega = 2\omega + 2\omega - \omega$  и  $5\omega = 2\omega + 2\omega + \omega$  [131, 132], генерация излучения на частоте четвертой гармоники ( $4\omega = 2\omega + \omega + \omega$ ), а также изменение поляризации второй гармоники ( $2\omega = 2\omega + \omega - \omega$ ) под действием накачки на частоте  $\omega$  (оптический эффект Керра, наведенное двулучепреломление) [133, 134]. Процесс генерации комбинационной четвертой гармоники и оптический эффект Керра вызывают особый интерес как дополнение к исследованию поляризации терагерцового излучения, поскольку они имеют тот же порядок по амплитудам полей на частотах  $\omega$  и  $2\omega$ , что и процесс генерации ТГц излучения в рамках феноменологической модели нелинейности третьего порядка. Ранее в данной главе было показано, что наблюдаемая в эксперименте поляризация ТГц излучения отличалась как от направления фототока, так и от направления нелинейной поляризации связанных электронов в приближении изотропной среды без дисперсии. Целью данного параграфа

является сравнение поляризации оптических компонент излучения, обусловленной откликом свободных и связанных электронов, с экспериментально наблюдаемой поляризацией. Однако, поскольку имеющееся экспериментальное оборудование не позволяло проводить измерения характеристик излучения четвертой и пятой гармоник, в работе рассматриваются только компоненты на частотах второй и третьей гармоники.

### 3.5.1. Оптический эффект Керра, наведенное двулучепреломление среды

Рассмотрим сначала нелинейную поляризацию на частоте второй гармоники при возбуждении оптическими импульсами, линейные поляризации которых направлены под углом  $\psi$  друг к другу (см. выражения (1.27) при  $\phi_1 = 0$ ). Генерация ТГц излучения в этой конфигурации полей была рассмотрена в предыдущей главе. Нелинейную поляризацию третьего порядка в приближении отсутствия дисперсии диэлектрической восприимчивости  $\chi^{(3)}$  для изотропной нерезонансной среды вновь представим в виде (1.26). Поскольку спектр падающего излучения является сравнительно узким, а процессами генерации суперконтинуума и фазовой самомодуляции мы пренебрегаем, нелинейную поляризацию можно представить в виде суммы отдельных компонент, соответствующих различным гармоникам фундаментальной частоты. В работе [133] утверждалось, что даже для случая узкого высокоинтенсивного филамента при рассмотрении этого эффекта корректно пользоваться приближением заданных полей  $\mathbf{E}_1(t)$  и  $\mathbf{E}_2(t)$ , поэтому для теоретического описания также воспользуемся этим приближением. В этом случае величина  $\mathbf{P}^{(2\omega)}(t)$ , определяющая генерацию второй гармоники, может быть записана в виде

$$\begin{aligned} P_x^{(2\omega)}(t) &= \chi_{1111}^{(3)} \left( \frac{E_1^2(t)E_2(t)}{2} \cos(2\omega t + \phi) (2 + \cos 2\psi) \right) \\ P_y^{(2\omega)}(t) &= \chi_{1111}^{(3)} \left( \frac{E_1^2(t)E_2(t)}{2} \cos(2\omega t + \phi) \sin 2\psi \right). \end{aligned} \quad (3.2)$$

Излучение перетяжки пропорционально второй производной нелинейной поляризации по времени. Как следует из выражения (3.2), при произвольном угле  $\psi$  между начальным направлением поляризации первой и второй гармоники имеет место нелинейный отклик на частоте второй гармоники с поляризацией, перпендикулярной начальной. Тогда измеряемая в эксперименте энергия излучения второй гармоники с новой поляризацией имеет следующую зависимость от угла между гармониками:

$$W_y^{(2\omega)}(t, \psi) = W_{y,max}^{(2\omega)}(t) \sin^2 2\psi \quad (3.3)$$

Эта зависимость была получена в [133, 134] теоретически и проверялась экспериментально при филаментации в аргоне. Это означает, что поворот поляризации второй гармоники имеет гармоническую зависимость от  $\psi$  и максимум этой зависимости достигается при  $45^\circ$ .

Напротив, в случае нелинейности, вызванной фототоком свободных электронов, не приводит к появлению излучения второй гармоники, поляризованного вдоль оси  $y$  (на рисунке 1.4 компонента излучения на второй гармонике вдоль оси  $y$  на 6 порядков менее интенсивна, чем вдоль оси  $x$ ). Таким образом, изменение состояния поляризации второй гармоники обусловлено нелинейностью третьего порядка нейтральных молекул.

В данной работе экспериментально исследуется эта зависимость в условиях оптического пробоя воздуха при жесткой фокусировке. В отличие от аргона, содержание в воздухе молекулярных газов ( $N_2, O_2$ ) приводит к появлению еще одного эффекта: поляризация второй гармоники изменяется даже в случаях, когда импульс первой гармоники опережает импульс второй гармоники на единицы и десятки пикосекунд. Физическая причина возникновения этих пиков состоит в том, что оптическое поле импульса первой гармоники оказывает ориентирующее воздействие на молекулы газов в воздухе (прежде всего, это касается двухатомных газов  $N_2, O_2$ ). Средний угол  $\xi$  между направлением оси молекулы и осью поляризации излучения, удовлетворяющий в равновесии условию  $\langle \cos^2 \xi \rangle = 1/3$ , в результате этого воздействия уменьшается, а среднее значение квадрата косинуса, соответственно, увеличивается. После прекращения импульса вращение молекул приводит к разориентации среды ( $\langle \cos^2 \xi \rangle \simeq 1/3$ ), однако, спустя половину периода вращения одного сорта молекул (например,  $N_2$ ), они вновь выстраиваются коллинеарно, т.е. рефазировются, приводя к ориентированному состоянию среды ( $\langle \cos^2 \xi \rangle > 1/3$ ). Спустя четверть периода вращения молекулы с момента возбуждения все молекулы, наоборот, приходят в максимально разориентированное состояние, которое резко отличается от равновесного (изотропного) распределения по ориентациям ( $\langle \cos^2 \xi \rangle < 1/3$ ). Эти состояния “максимальной ориентации” и “максимальной разориентации” периодически повторяются до тех пор, пока вращение молекул не потеряет когерентность из-за процессов поперечной релаксации.

Экспериментальное исследование процесса четырехволнового взаимодействия, изменяющего состояние поляризации второй гармоники, проводилось при фиксированном состоянии поляризации плеча  $2\omega$ . В пучок второй гармоники непосредственно перед дихроичным зеркалом DM2 был установлен дополнительный анализатор (призма Глана)



для чистки поляризации. После перетяжки пучок коллимировался линзой, затем проходил через анализатор (призму Глана), скрещенный с исходной поляризацией плеча  $2\omega$ , и далее измерялась его интенсивность. Изменяемым параметром в эксперименте была поляризация пучка первой гармоники. Она задавалась при помощи полуволновой пластинки WP1 в плече  $\omega$ . После области взаимодействия вторая гармоника отделялась от первой при помощи дифракционной решетки, и её интенсивность регистрировалась фотодиодом. При совмещении оптических длин двух плеч при помощи линии задержки, наблюдался острый максимум интенсивности второй гармоники, поляризованной ортогонально исходному направлению. Этот эффект описывается в рамках формализма четырехволнового взаимодействия для изотропной среды (см. выражение (3.2)), но не возникает в модели фототоковой нелинейности (см. рисунок 1.4).

Согласно формализму четырехволнового взаимодействия, поляризация второй гармоники должна испытывать максимальный поворот при угле  $45^\circ$  между входными поляризациями первой и второй гармоники вне зависимости от того, является ли среда резонансной, и эффект должен сводиться к нулю при коллинеарных и взаимно ортогональных направлениях поляризаций двух пучков (выражение (3.3)). Экспериментально измеренная зависимость интенсивности второй гармоники, прошедшей через анализатор, от направления поляризации первой гармоники, показана на рисунке 3.20 зелеными кружками. На этом же графике сплошной линией зеленого цвета показана теоретическая зависимость (выражение (3.3)). Видно хорошее согласие экспериментальных данных с моделью четырехволнового взаимодействия в изотропной нерезонансной среде.

Далее рассматривалась ненулевая временная задержка между импульсами первой и второй гармоники. Если импульс второй гармоники опережает импульс первой гармоники, его поляризация не меняется, и на детекторе наблюдается нулевой сигнал. Для обратной ситуации, когда вторая гармоника приходит позже импульса первой гармоники, сигнал на фотодиоде равен нулю не для всех значений задержки между импульсами, что видно на рисунке 3.21.

Подобный процесс неоднократно наблюдался другими группами для ряда молекулярных газов, включая  $N_2$ ,  $O_2$ ,  $CO_2$  [135–137]. Кроме того, было экспериментально показано отсутствие подобного эффекта в одноатомных газах на примере ряда инертных газов [92]. В последнее время появились работы по исследованию этого явления с применением терагерцового излучения. Так, группа Нельсона экспериментально показала, что ориентацию

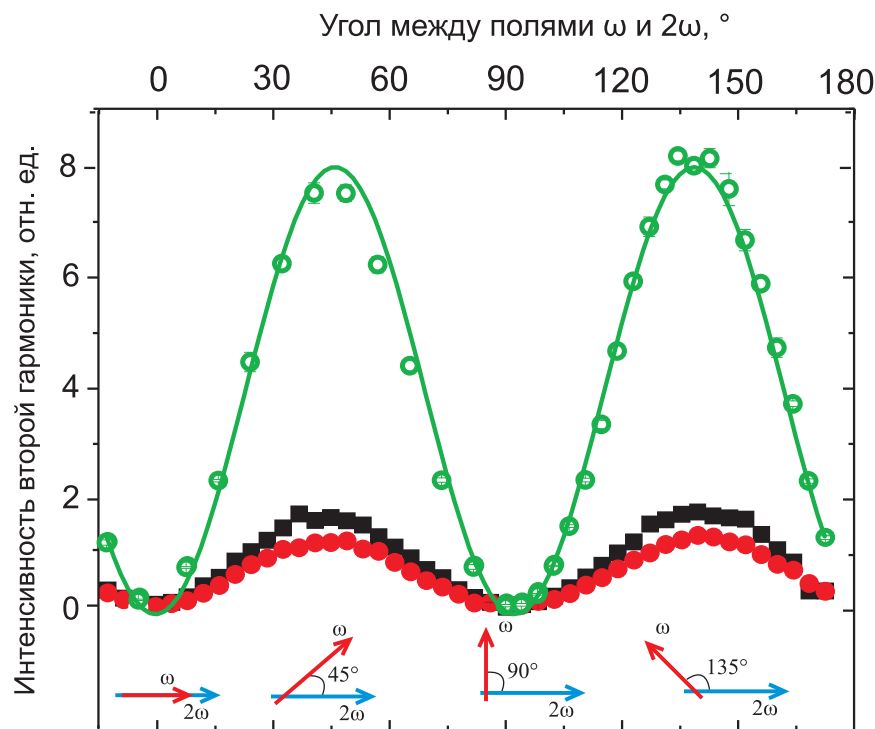


Рис. 3.20. Интенсивность излучения на частоте  $2\omega$ , поляризованной ортогонально изначальному направлению поляризации, в зависимости от направления поляризации излучения на фундаментальной частоте. Красным и черным показаны аналогичные зависимости для моментов, когда вторая гармоника прибывает в перетяжку одновременно с первым выстраиванием молекул  $O_2$  и  $N_2$  соответственно вдоль поля первой гармоники

молекул можно производить при помощи терагерцового импульса [138, 139], а в группе Ки-ма исследовалась генерация ТГц излучения при помощи двухцветного импульса в среде, которая была предварительно подготовлена другим двухцветным импульсом [140].

Процесс фазировки вращений молекул импульсом титан-сапфирового лазера является в данном случае нерезонансным и неадиабатическим, поскольку длительность возбуждающего импульса намного меньше периода вращения молекул. Максимальное выстраивание молекул вдоль поля происходит уже после прохождения возбуждающего лазерного импульса [128]. При этом возбуждаются вращательные подуровни основного состояния, и их число определяется выражением  $J_{max} \sim \tau_{pulse}/\Omega_r^{-1}$ , где  $\Omega_r$  - частота Раби, а  $\tau_{pulse}$  - длительность возбуждающего лазерного импульса.

Согласно [128], в случае нерезонансного неадиабатического возбуждения частота Раби и степень ориентации среды пропорциональны квадрату поля, и наблюдаемая экспериментально интенсивность второй гармоники в направлении, ортогональном исходному,

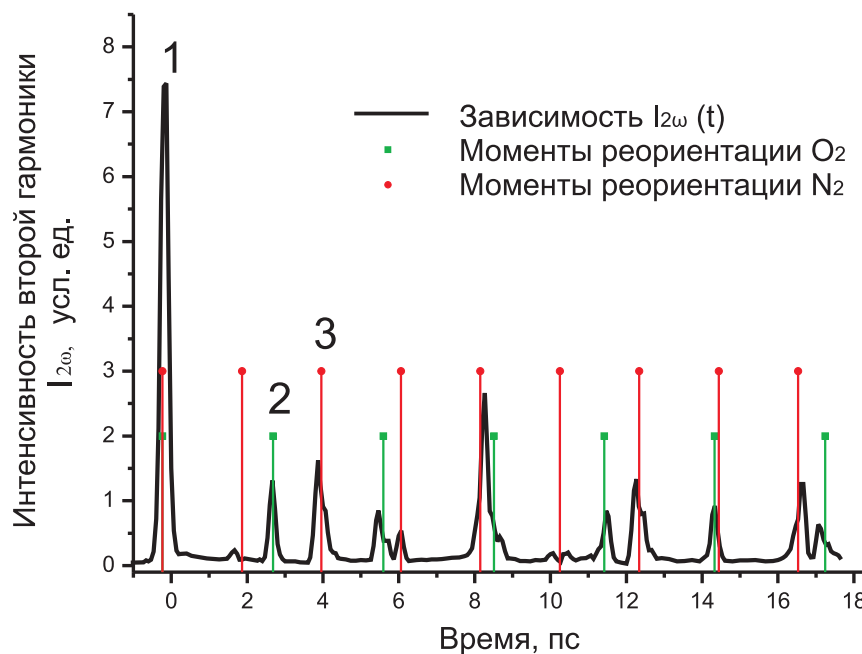


Рис. 3.21. Интенсивность излучения на частоте  $2\omega$ , поляризованной ортогонально изначальному направлению поляризации, в зависимости от задержки импульса второй гармоники относительно импульса на фундаментальной частоте, от энергии импульса накачки

должна быть пропорциональна квадрату интенсивности импульса частотой  $\omega$ .

В нашем эксперименте эта зависимость была измерена при помощи аттенюатора, установленного в плече  $\omega$ . Графики зависимости интенсивности второй гармоники от энергии импульса накачки для момента совпадения импульсов по времени, а также в моменты первой рефазировки колебаний  $N_2$  (4 пс после прихода импульса первой гармоники) и  $O_2$  (3 пс после прихода импульса первой гармоники) показаны на рисунке 3.22. Аппроксимация степенной функцией показывает для обоих газов степень возрастания  $\approx 1.7$ , что подтверждает нерезонансный характер фазировки и для момента совпадения импульсов по времени соответствует результату, ожидаемому в рамках формализма четырехволнового взаимодействия (см. формулу (3.3)).

Важно отметить, что экспериментально наблюдаемое изменение поляризации второй гармоники в экспериментах, проведенных в рамках данной диссертационной работы, было весьма существенным, что находится в некотором противоречии с результатами, приведенными в работе [133]. На рисунке 3.23 показана поляризация излучения второй гармоники, покидающего перетяжку, при фиксированном состоянии поляризации перед фокусировкой ( $45^\circ$  между плоскостями поляризации  $\omega$  и  $2\omega$ ), для трех различных ин-

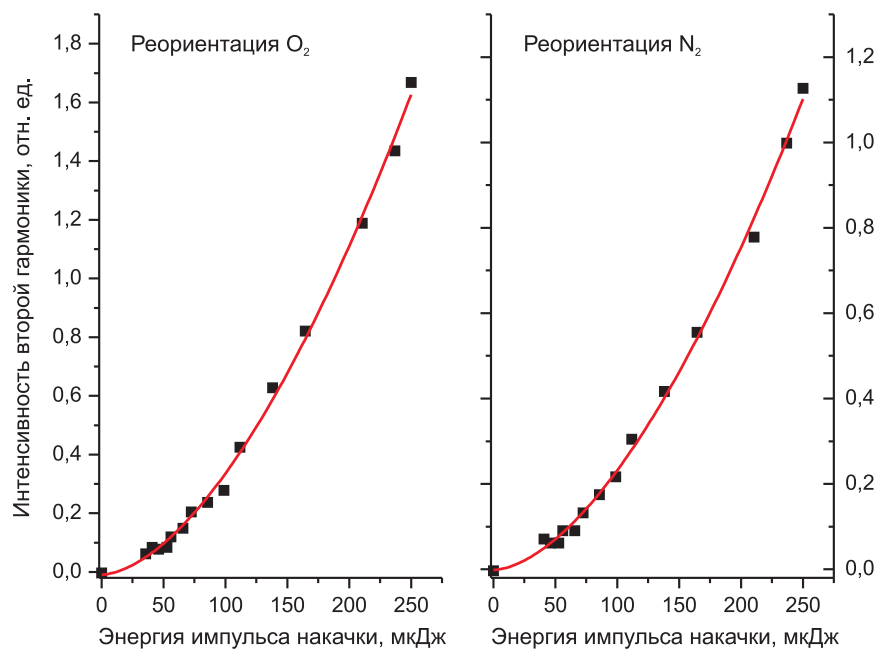


Рис. 3.22. Интенсивность излучения на частоте  $2\omega$ , поляризованной ортогонально изначальному направлению поляризации для моментов рефазировки молекул  $N_2$  и  $O_2$

тенсивностей излучения первой гармоники. На рисунках хорошо видно, что излучение второй гармоники становится деполаризованным, и этот эффект возрастает при увеличении интенсивности фундаментального излучения. Этот результат свидетельствует о том, что взаимодействием между излучением оптических гармоник в протяженной области перетяжки пренебрегать некорректно. Таким образом для полного описания поляризации оптических компонент и терагерцового излучения из плазмы оптического пробоя, необходимо учитывать проявление всех нелинейно-оптических взаимодействий по крайней мере до третьего порядка включительно с учетом дисперсии в генерируемой плазме и прочих эффектов, связанных с распространением всех видов излучения. Это может быть реализовано в рамках численного моделирования и не поддается аналитическому описанию с использованием простых моделей, введенных в данной работе.

### 3.5.2. Поляризация излучения на частоте третьей гармоники

В другой конфигурации полей, рассматриваемой в данной работе, первая гармоника имеет циркулярную поляризацию, а вторая гармоника поляризована линейно вдоль оси  $x$  (см. выражения (1.27) при  $\phi_1 = \pi/2$ ,  $\psi = \pi/4$ ).

Компоненты нелинейной поляризации, осциллирующие на частотах  $2\omega$  и  $3\omega$ , согласно

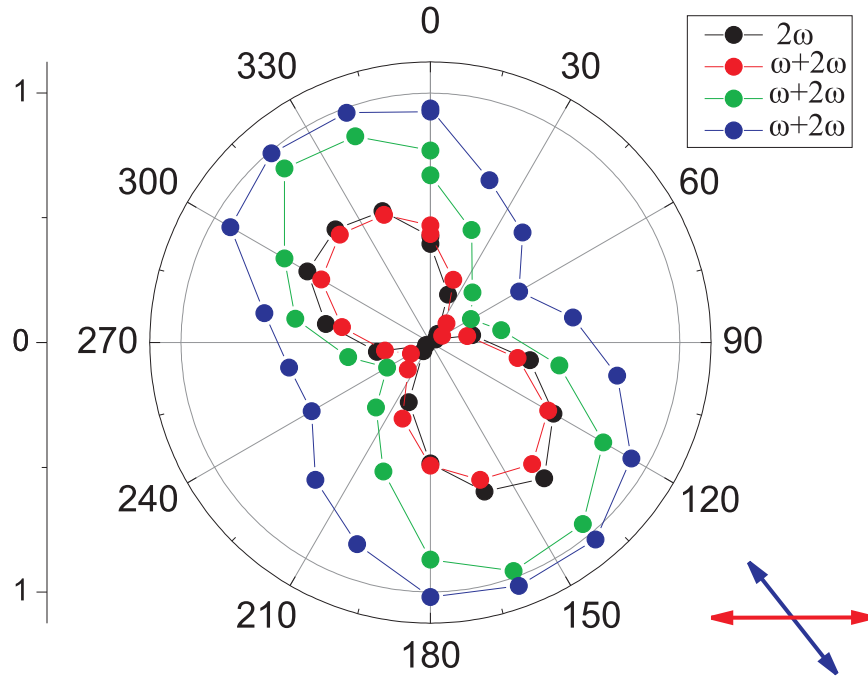


Рис. 3.23. Поляризация излучения на частоте  $2\omega$ , выходящего из перетяжки, при линейно поляризованных излучениях первой и второй гармоники под углом  $45^\circ$  друг к другу. Черным показана поляризация второй гармоники в отсутствие излучения первой гармоники, красным, зеленым и синим - поляризация второй гармоники при энергиях первой гармоники 100, 150, 200 мкДж в импульсе

выражению (1.26), принимают при этом вид

$$P_x(t) = 2 \cdot E_\omega^2 \cdot E_{2\omega} \cdot \cos(2\omega t + \psi) + 3/4 \cdot E_2^3 \cdot \cos(2\omega t + \psi) + 3/4 \cdot E_\omega \cdot E_{2\omega}^2 \cdot \cos(3\omega t + 2\psi)$$

$$P_y(t) = -1/4 \cdot E_1 \cdot E_2^2 \cdot \sin(3\omega t + 2\psi) \quad (3.4)$$

Обратим внимание на члены выражений (3.4), описывающие поляризацию на частоте  $3\omega$ . Видно, что в результате четырехволнового смешения в области перетяжки появляется излучение третьей гармоники, поляризованное эллиптически с соотношением полуосей 9:1 по интенсивности. Состояние поляризации второй гармоники, как видно из этих выражений, не претерпевает изменений.

Если рассматривать излучение на тех же частотных компонентах, обусловленное действием фототока свободных электронов туннельном приближении, результаты будут несколько отличными (см. рис. 3.24). Излучение второй гармоники, как и для предыду-

шего механизма, будет иметь линейную поляризацию вдоль исходного направления, излучение третьей гармоники будет поляризовано эллиптически с соотношением полуосей, несколько превышающим значение 9:1.

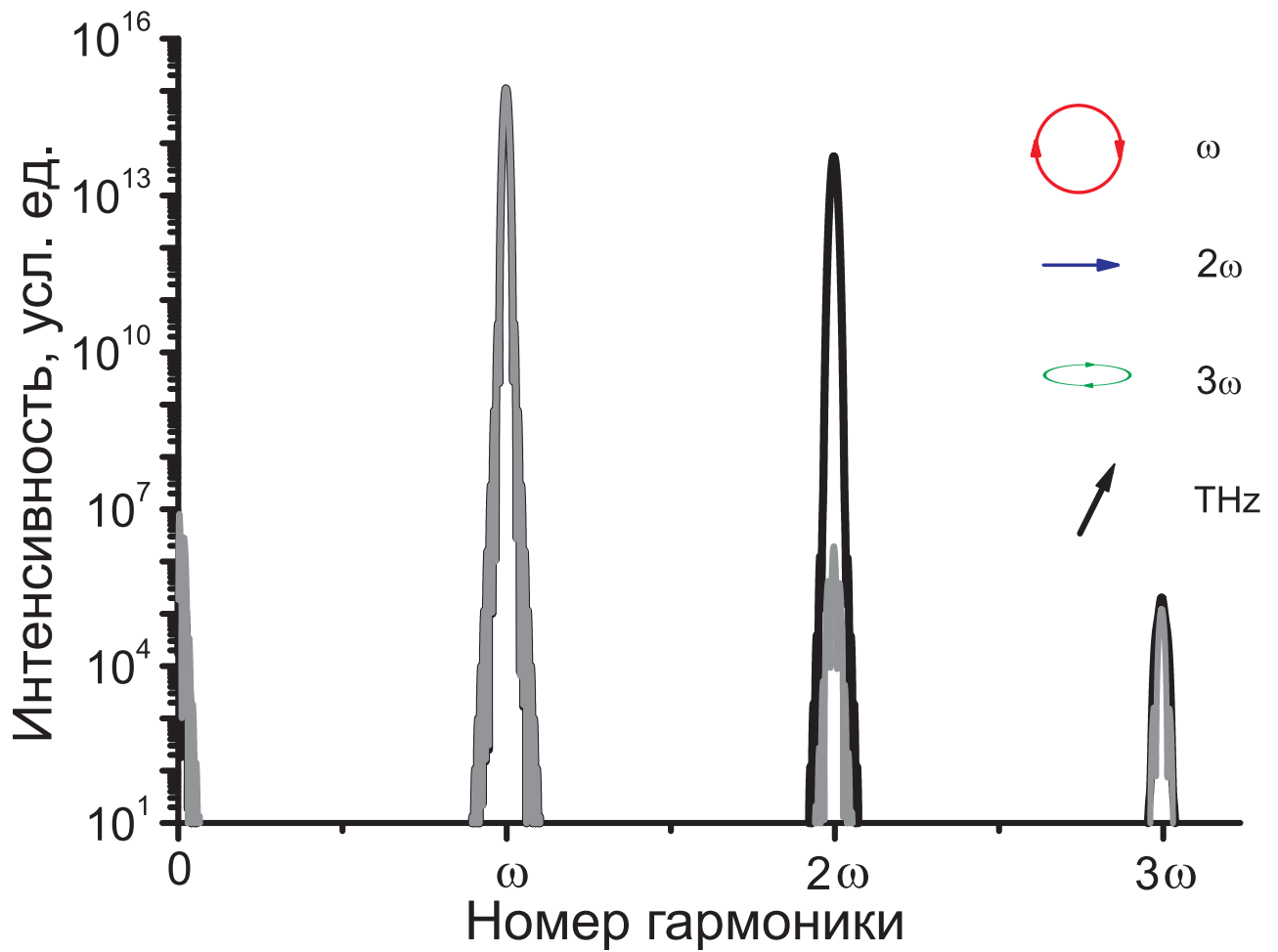


Рис. 3.24. Спектр интенсивности двух ортогональных компонент фототока свободных электронов при возбуждении циркулярно-поляризованным излучением первой гармоники и линейно-поляризованным излучением второй гармоники. Черным на графике показана интенсивность излучения поляризованного вдоль оси x, серым - вдоль оси y. Стрелками в углу изображены направления поляризации излучений первой и второй гармоник, а также результирующего излучения третьей гармоники и ТГц излучения.

Для экспериментального исследования генерации комбинационной третьей гармоники ( $3\omega = 2\omega + 2\omega - \omega$ ), при помощи четвертьволновой фазовой пластинки в плече фундаментальной гармоники устанавливалась поляризация, максимально близкая к циркулярной. Для настройки положения фазовой пластинки при помощи монохроматора наблюдалась интенсивность излучения третьей гармоники при закрытом пучке второй гармоники. По-

сколькo процесс ГТГ для циркулярно поляризованного излучения запрещен, оптимальной настройке фазовой пластинки соответствует минимуму интенсивности. Поскольку диэлектрическое зеркало DM2, с помощью которого проводилось совмещение пучков первой и второй гармоники (рис. 2.1) имело несколько различный коэффициент пропускания для s- и p- поляризации, поэтому минимальной эллиптичности можно было добиться дополнительным наклоном фазовой пластинки. Достигнутое значение соотношения большой и малой осей эллипса поляризации пучка составило 95.1%, полученный эллипс поляризации показан красным цветом на рисунке 3.25. Малый остаток излучения конверсионной третьей гармоники при оптимальной настройке фазовой пластинки в дальнейшем не превышал уровень погрешности измерений интенсивности исследуемой комбинационной третьей гармоники.

Далее производился поиск значений временной задержки между импульсами первой и второй гармоники, при которых в перетяжке происходила генерация комбинационной третьей гармоники. Сканирование временной задержки дает только один острый максимум, соответствующий равенству оптических длин пучков. Иных максимумов, подобных увиденным при измерении поляризации второй гармоники, в эксперименте не наблюдалось.

Экспериментально полученная зависимость интенсивности третьей гармоники от ориентации анализатора показана на рисунке 3.25 вместе с теоретической зависимостью, описываемой выражением (3.4). Видно, что наблюдаемая эллиптическая поляризация по ориентации большой полуоси и по степени эллиптичности удовлетворительно согласуется с теоретической зависимостью для нерезонансной изотропной газовой среды. Таким образом, модель четырехволнового взаимодействия в изотропной нерезонансной среде позволяет с удовлетворительной точностью аналитически описать состояние поляризации комбинационной третьей гармоники, генерируемой в перетяжке при смешении циркулярно поляризованного пучка  $\omega$  и линейно поляризованного пучка  $2\omega$ .

### 3.6. Выводы по главе 3

1. Поляризация терагерцового излучения, возникающего при коллинеарном взаимодействии линейно-поляризованных фемтосекундных импульсов первой и второй гармоник титан-сапфирового лазера с длительностью порядка 100 фс и энергиями до 0.5 мДж и 0.02 мДж, с углом между направлениями их поляризации меньшим  $70^\circ$  и при отсутствии вре-

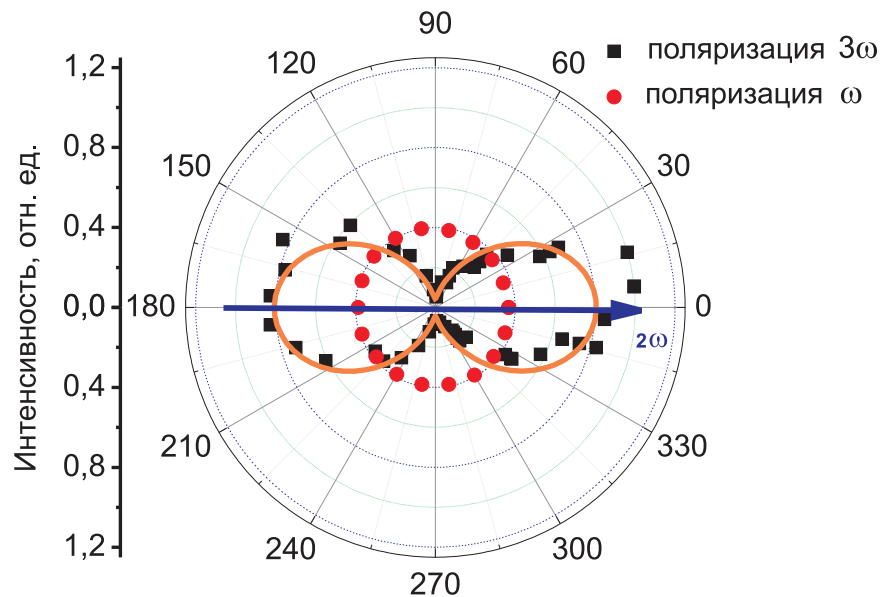


Рис. 3.25. Поляризации излучения первой и второй гармоники, используемые в эксперименте по генерации комбинационной третьей гармоники, а также поляризация генерируемого излучения на частоте  $3\omega$ , генерируемой при смешении циркулярно поляризованного пучка  $\omega$  и линейно поляризованного пучка  $2\omega$ . Оранжевым показана теоретическая зависимость, получаемая с учетом выражения (3.4).

менной задержки между ними в воздухе и аргоне при комнатной температуре, близка к линейной и совпадает по направлению с поляризацией первой гармоники.

2. Показана возможность управления состоянием поляризации терагерцового излучения, возникающего при коллинеарном взаимодействии линейно-поляризованных фемтосекундных импульсов первой и второй гармоник, с помощью изменения временной задержки между ними.

3. При коллинеарном взаимодействии в воздухе линейно поляризованного фемтосекундного импульса второй гармоники и циркулярно поляризованного импульса первой гармоники титан-сапфирового лазера при их энергиях порядка 0.5 мДж и до 0.02 мДж соответственно, возникающее терагерцовое излучение линейно поляризовано, при этом направление поляризации определяется разностью фаз между гармониками.

4. Вид спектра терагерцового импульса, возникающего при взаимодействии фемтосекундных импульсов первой и второй гармоник титан-сапфирового лазера с газовой плазменной средой, зависит от нелинейной поляризации среды и её проводимости.

5. Ориентации эллипсов поляризации второй и третьей гармоник, возникающих при коллинеарном взаимодействии фемтосекундных импульсов первой и второй гармоник



титан-сапфирового лазера в воздухе при их энергиях до 0.5 мДж и до 0.02 мДж соответственно, совпадают с результатами, полученными теоретически для кубических сред без пространственной и частотной дисперсии

6. Линейно поляризованный импульс второй гармоники, распространяющийся в воздухе коллинеарно с импульсом первой гармоники, имеющим иную линейную поляризацию и более высокую интенсивность, деполаризуется в результате взаимодействия с первой гармоникой в области оптического пробоя.

## Глава 4

## Пространственный профиль интенсивности и поляризации ТГц излучения

### 4.1. Введение

Существует несколько методик экспериментального изучения пространственного профиля интенсивности излучения импульсных терагерцовых источников. Ряд из них предполагает измерение профиля методом изменения положения детектора излучения относительно генератора. Такие измерения можно проводить, в частности, с применением болометрического детектора, имеющего малую апертуру. Группа Шевалы ([141]) использовала для этой цели фотопроводящую антенну, детектировавшую временной профиль ТГц поля в данной точке пространства, то есть появлялась возможность анализировать распространение отдельных компонент спектра излученного поля в пространстве. Другая группа методов предполагает получение информации о профиле поля косвенным образом, сканируя пространственное распределение поля щелевой или ирисовой диафрагмой при неподвижном положении детектора излучения.

Первое экспериментальное исследование пространственного профиля излучения плазмы оптического пробоя для различных условий фокусировки было дано в статье [142], где пространственная селекция осуществлялась с помощью щелевой диафрагмы, а детектирование производилось электрооптическим методом. При условии жесткой фокусировки отмечался конусовидный характер направленности излучения на высоких частотах в отличие от приосевого распространения низких частот. Стоит отметить, что использование электрооптического детектирования ограничило исследованный частотный диапазон до 2 ТГц.

Второй эксперимент по наблюдению пространственного профиля интенсивности излучения из плазмы оптического пробоя приводится в работе [41] при помощи гетеродинного детектора на частоте 0.1 ТГц для случая длинного излучающего филамента и одночастотной схемы возбуждения плазмы. При использовании только излучения первой гармоники для генерации терагерцового излучения преобладает механизм генерации за счет действия пондеромоторных сил на электронный газ вблизи фокуса лазерного импульса. Терагерцо-

вое излучение, вызванное таким механизмом, является конически направленным, причем в каждой точке конуса поляризация излучения направлена к оси конуса, то есть является радиальной (см. [40]). Аналогичные свойства должны проявляться для механизма генерации за счет так называемого переходного излучения, возникающего при прохождении фемтосекундного лазерного импульса через область с резким градиентом плотности электронов (см. [143]). В упомянутом эксперименте Дж. Амиго при помощи узкополосного детектора было продемонстрировано как коническое распределение интенсивности излучения, так наличие радиальной поляризации у этого излучения.

Целью данной главы является определение пространственной структуры ТГц пучка и его поляризации в наиболее распространенной конфигурации генератора: однопучковой схеме, в которой кристалл второй гармоники устанавливается непосредственно перед плазменным облаком в сходящемся оптическом пучке. Стоит отметить, что на момент выполнения данной работы пространственно-частотные характеристики ТГц излучения из плазмы оптического пробоя в таком режиме генерации были практически неисследованы.

## **4.2. Визуализация пространственной структуры ТГц излучения при помощи матрицы микроболометров**

Для визуализации пространственного распределения ТГц излучения, генерируемого в плазме оптического пробоя в эксперименте была использована матрица микроболометров на оксиде ванадия, разработанная в Институте физики полупроводников в Новосибирске [144]. Матрица микроболометров имеет разрешение  $320 \times 240$  при размере одного элемента 51 мкм. Общий размер матрицы равен  $16 \times 12$  мм при факторе заполнения 0.55. Термочувствительный элемент состоит из слоя оксида ванадия толщиной 100 нм, полученного золь-гель методом, заключенного между двумя поддерживающими слоями нитрида кремния толщиной по 150 нм. Нитрид кремния не обладает поглощением в ТГц диапазоне, а оксид ванадия имеет поглощение порядка 10%. Под чувствительным элементом расположено алюминиевое зеркало, заставляющее ТГц излучение второй раз пройти через чувствительный элемент. Расстояние до зеркала выбрано равным  $\lambda/4$  для середины используемого диапазона частот, чтобы отраженное от зеркала излучение испытало с падающим конструктивную интерференцию в чувствительном элементе. Поскольку изначально матрица болометров была рассчитана на работу в ближнем ИК диапазоне (10.6

мкм), расстояние между зеркалом и слоем оксида ванадия составляет 2 мкм. Таким образом, в терагерцовом диапазоне излучение не испытывает конструктивной интерференции в пространстве между зеркалом и слоем оксида ванадия. Однако, поскольку поперечный размер каждого чувствительного элемента составляет 51 мкм, излучение с вдвое большей длиной волны может быть детектировано матрицей. Максимум чувствительности матрицы попадает, таким образом, примерно на частоту 3 ТГц.

Терагерцовое излучение после перетяжки коллимировалось внеосевым параболическим зеркалом, после чего оптическое излучение отделялось от терагерцового при помощи кремниевого фильтра. Далее терагерцовый пучок фокусировался при помощи второго параболического зеркала. Матрица микроболометров помещалась в области фокуса параболического зеркала. ИК-излучение перетяжки блокировалось 5 мм пластиной из тефлона.

При помещении плоскости приемника в фокальную плоскость параболического зеркала 2 на матрице регистрировалось яркое светящееся пятно, являющееся изображением сфокусированного ТГц пучка (см.рис. 4.1). Поперечные размеры пятна не превышают 500 мкм.

Важно отметить, что столь малый поперечный размер пятна, близкий к длине волны в ТГц диапазоне частот, говорит о хорошей фокусировке ТГц излучения при помощи системы из двух параболических зеркал.

При перемещении детектора вдоль оси распространения ТГц излучения дальше от фокуса параболического зеркала изображение на матрице расплывается в кольцо с провалом интенсивности вблизи центра (см. рис. 4.2). Это является свидетельством того, что терагерцовое излучение из плазмы направлено преимущественно в конус. Доля энергии излучения, направленного вдоль оси распространения оптического импульса, при этом невелика. Изображения, полученные матрицей микроболометров в двух разных точках на оси распространения ТГц (в фокусе ТГц пучка и на некотором расстоянии от него), позволяют оценить угол раствора конуса, возникающего при данных условиях генерации излучения.

Изображения, показанные на рис. 4.2 и рис. 4.1, получены в фокусе ТГц излучения и в 9.1 мм дальше от фокуса соответственно. Энергия излучения первой гармоники составляла при этом 900 мкДж в импульсе. Угол между поляризациями излучений  $\omega$  и  $2\omega$  составлял  $55^\circ$ , что соответствовало максимуму эффективности генерации. Для данных условий эксперимента полный угол раскрытия конуса составляет примерно  $19^\circ$ . Здесь при-

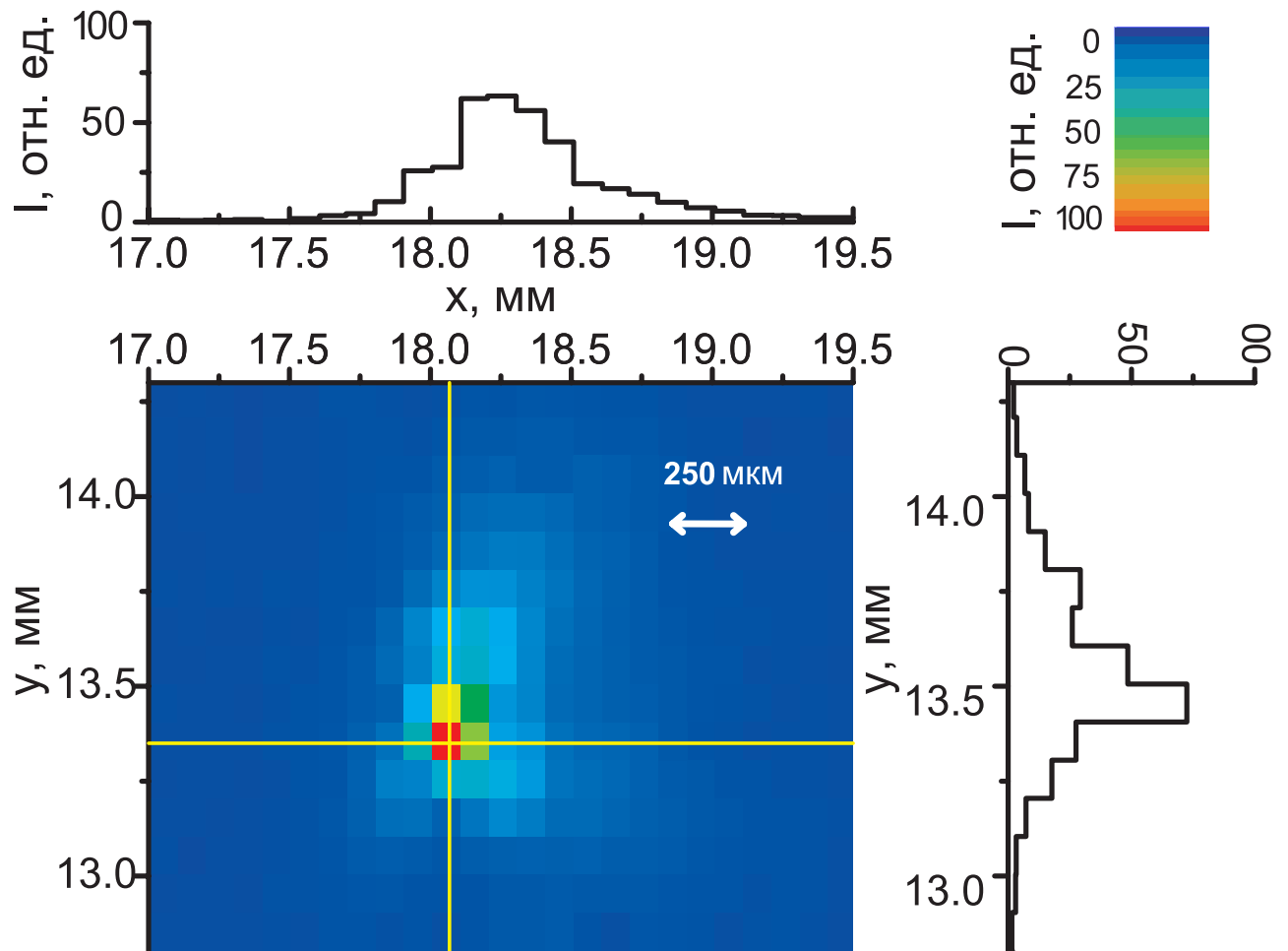


Рис. 4.1. Увеличенное изображение фокального пятна ТГц сигнала при входной мощности излучения фундаментальной гармоники 900 мкДж. Размеры по вертикальной и горизонтальной оси указаны в миллиметрах.

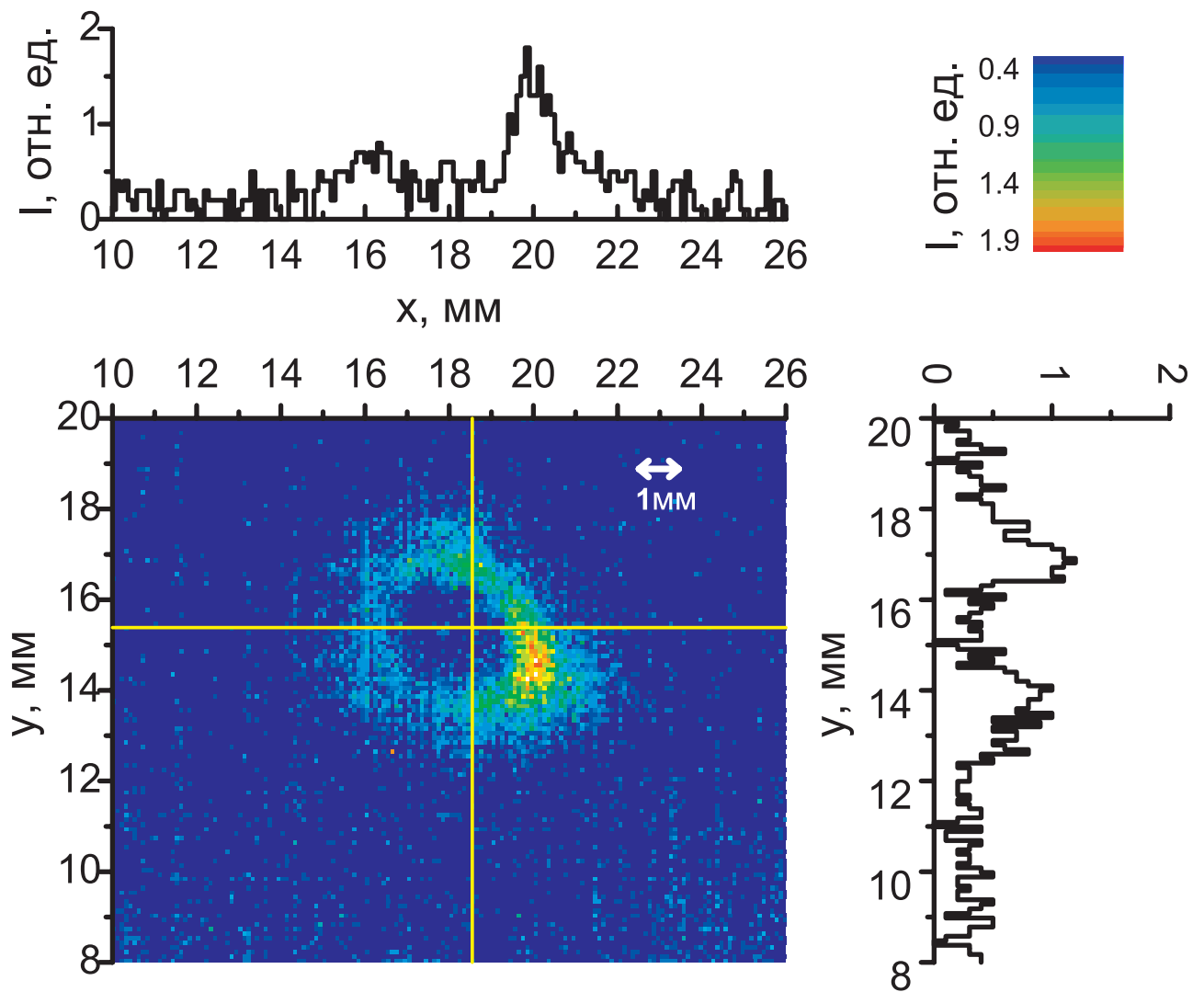


Рис. 4.2. Изображение профиля ТГц поля, полученное матрицей микроболометров на расстоянии 9.1 мм от положения фокуса параболического зеркала.

нято во внимание угловое увеличение системы параболических зеркал, равное 1.5. Вариация положения кристалла ВВО и, соответственно, разности фаз  $\psi$  между первой и второй гармоникой на входе в плазму приводит к периодическому изменению яркости картины, наблюдаемой на матрице болометров, с сохранением всех размеров и пропорций. Также не наблюдалось никаких принципиальных изменений при использовании других фильтров для отсекаания оптического пучка вместо кремниевого (кремний другой толщины, тефлон, пластик, бумага).

### **4.3. Определение пространственного профиля интенсивности и поляризации ТГц излучения при использовании детектирования с временным разрешением и при помощи ячейки Голея**

Для другого способа визуализации профиля интенсивности ТГц поля, примененного в настоящей работе, было использовано детектирование с временным разрешением в плазме оптического пробоя. Описание метода детектирования приведено в главе 3. Для исследования пространственных свойств ТГц излучения, в плече генерации, в 6 см позади фокальной области была помещена ирисовая диафрагма (см. рис. 2.1).

Изучение пространственных свойств ТГц излучения проводилось путём регистрации временных профилей ТГц поля и спектров излучения в зависимости от диаметра отверстия в диафрагме. Было обнаружено, что спектр детектированного сигнала существенным образом меняется при уменьшении этого диаметра (см. рис. 4.3). При диафрагме, открытой на угол менее  $6^\circ$ , терагерцовое излучение детектировать не удавалось. Открытие апертуры на больший угол позволяло детектировать сперва высокочастотную часть спектра ТГц импульса, а при еще больших углах - весь спектр излучения. Открытие апертуры на угол, больший  $14^\circ$ , уже не давало увеличения полезного сигнала ни на каких участках спектра, поскольку при этом уже задействовалась вся угловая апертура параболического зеркала, коллимирующего ТГц излучение. Таким образом, в приосевой области ТГц излучение отсутствует, что соответствует коническому профилю интенсивности. Высокочастотные компоненты спектра при этом распространяются ближе к оси симметрии конуса, чем низкочастотные.

Другой способ исследования пространственного профиля ТГц излучения реализован с использованием ячейки Голея в качестве детектора. Для этого на участке между параболическими зеркалами, на котором терагерцовое излучение является коллимированным, помещается экран большой площади, имеющий вертикальную щель толщиной 2мм, которая могла перемещаться поперек пучка при помощи линейного транслятора. Ячейка Голея, как и в предыдущих экспериментах, помещается в области фокуса второго параболического зеркала. В ходе эксперимента измерялась интенсивность регистрируемого ТГц сигнала в зависимости от поперечного положения щели. Типичный результат измерения показан на рисунке 4.4.

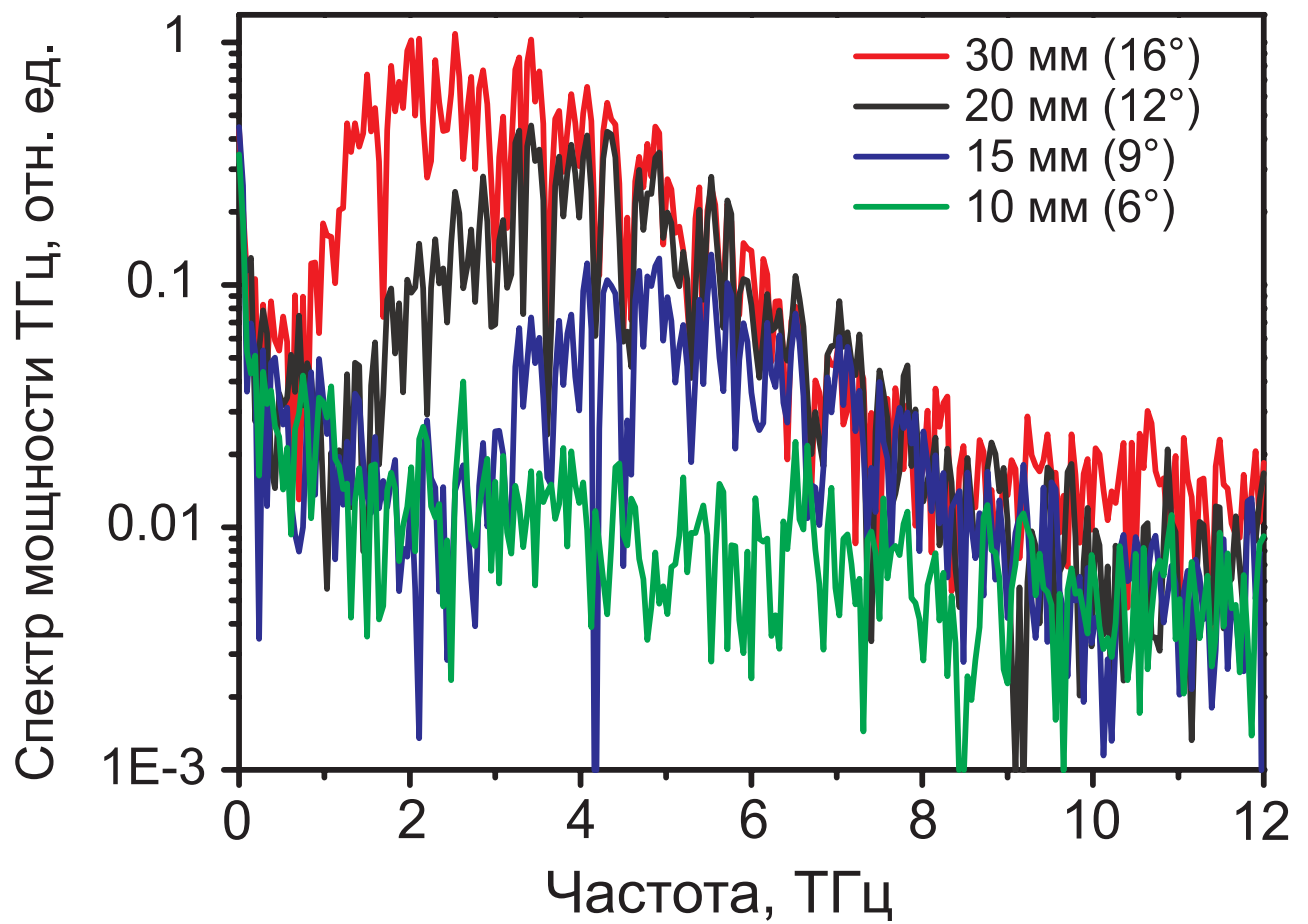


Рис. 4.3. Зависимость детектированного ТГц спектра от диаметра отверстия в диафрагме. В скобках указана полная угловая апертура диафрагмы.



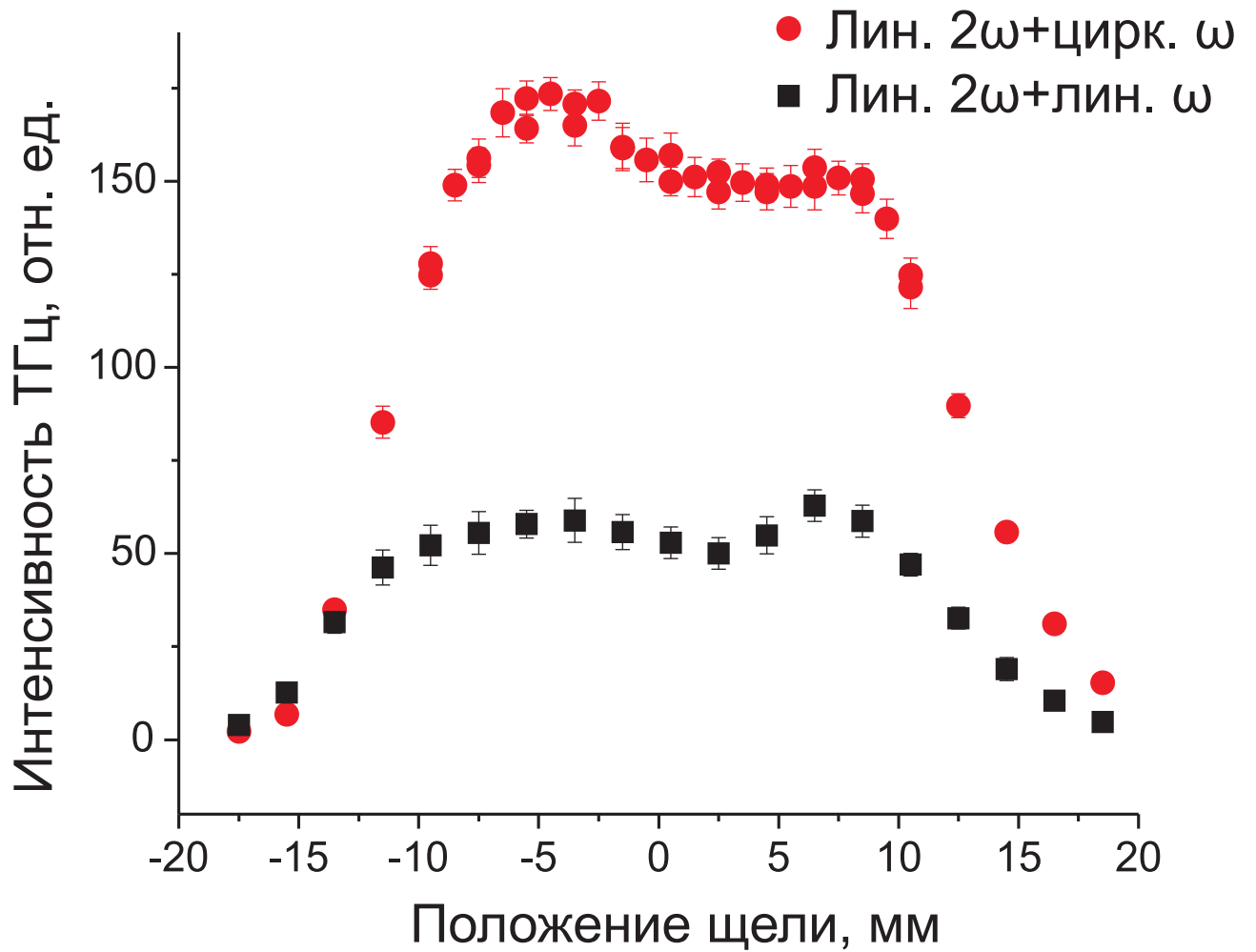


Рис. 4.4. Интенсивность ТГц излучения, достигающего детектора при сканировании вертикальной щелью поперек сечения ТГц пучка. Красным цветом показан результат измерения при циркулярной поляризации первой гармоники и линейной поляризации второй гармоники, черным - при линейных параллельных поляризациях оптических гармоник.

Характерный график с двумя пиками и провалом посередине свидетельствует о том, что поперечный профиль пучка, как минимум, не описывается гауссовским профилем. При наличии кольцевого поперечного сечения пучка, которое соответствует конической направленности излучения из перетяжки, сканирование щелью должно давать результат, аналогичный по форме полученному.

Кроме того, стоит отметить, что в данной постановке эксперимента есть возможность проверки однородности состояния поляризации ТГц излучения в различных областях пучка. Измерения показали, что при рассмотренных конфигурациях поляризаций оптических полей поляризация ТГц излучения в различных частях пучка одинакова с точностью, определяемой погрешностью эксперимента.

Таким образом, терагерцовое излучение из области перетяжки двухчастотного лазерного импульса имеет коническое распределение интенсивности. Наиболее высокочастотные компоненты спектра ТГц импульса имеют коническую направленность с меньшим углом раскрытия, чем для менее высокочастотных компонент. Это вызвано дифракцией при распространении ТГц излучения в плазме, создаваемой оптическими импульсами, а также большой протяженностью источника (лазерной искры) вдоль направления распространения оптических импульсов. В приосевой области плазменного облака плотность плазмы максимальна, на периферии она постепенно убывает. Оценки плотности электронов, достигаемых в лазерной искре, достигаемой в эксперименте на данной установке, приведены в нашей работе [88], и достигают  $9 \cdot 10^{16} \text{см}^{-3}$ . Плазменная частота, соответствующая этой плотности электронов, лежит в терагерцовом диапазоне частот ( $\nu_{pl} \approx 2.7$  ТГц). Если плотность электронов достигает таких значений на оси плазменного облака, ТГц излучение с частотой меньше плазменной, распространяться вдоль оси вообще не может, а с частотой, незначительно превышающей плазменную, оказывается в области сильной дисперсии. Напротив, та часть излучения, которая распространяется под углом к оси лазерного импульса, быстро покидает область плазмы и с большей вероятностью может достичь детектора. Очевидно при этом, что для более низкочастотного излучения оказывается “запрещенным” к распространению больший телесный угол, так как область критической для данных длин волн плазмы занимает больший объем. Поэтому вместо ожидаемой пространственной структуры дипольного излучения в эксперименте наблюдается коническое пространственное распределение различных частотных компонент ТГц излучения. Поляризация излучения при этом является одинаковой во всех пространствен-

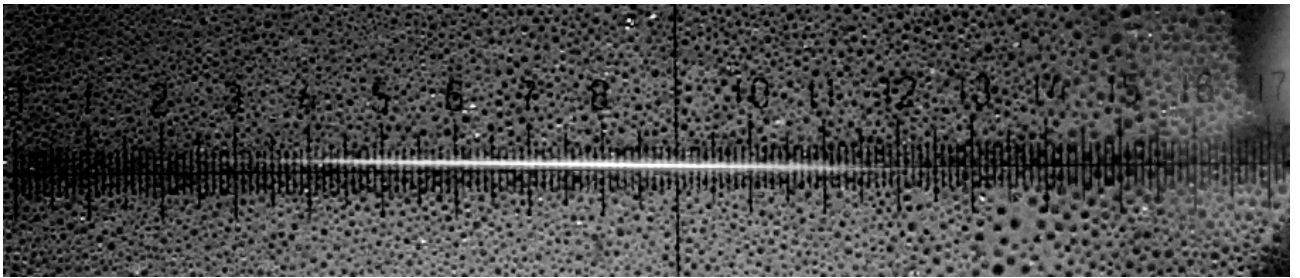


Рис. 4.5. Фотография плазменного облака, полученного при пробое воздуха оптическим полем, содержащим импульс первой гармоники с энергией 900 мкДж и импульс второй гармоники с энергией 50 мкДж. Изображение наложено на фотографию калибровочного слайда для микроскопа, полученную при том же увеличении объектива камеры.

ных участках конуса, как было показано в экспериментах, проведенных при помощи ячейки Голея.

В первой главе настоящей работы была в наиболее простом приближении показана связь между пространственным профилем ТГц излучения и длиной излучающей области (см. формулу (1.24) и обсуждение после неё, а также работу [81]). Максимум энергии ТГц излучения приходится в угол  $\sqrt{\frac{2\lambda}{L}}$  от оси оптического излучения. В условиях эксперимента длину излучающей области можно оценить по длине светящегося облака плазмы при съемке сбоку при помощи ССD-камеры. Фотография плазменного облака с наложенным на нее изображением калибровочного слайда для микроскопа, полученная при энергии первой гармоники 900 мкДж, показана на рисунке 4.5. Оценивая длину плазменного облака примерно в 9 мм, для ТГц излучения на частоте 1 ТГц (длина волны 300 мкм), получаем угол раскрытия конуса  $14.8^\circ$ , что в целом согласуется с результатами, полученными экспериментально (см. рис. 4.3).

Несмотря на то, что указанный механизм формирования конуса излучения прост для понимания, его моделирование потребует решения как задачи о распространении оптических компонент излучения через облако плазмы, создаваемое самим оптическим импульсом, так и задачу о дифракции широкополосного терагерцового излучения на этом же плазменном облаке, поперечные размеры которого сравнимы с длиной волны ТГц излучения, а плазменная частота лежит в верхней части терагерцового диапазона. Решение этих задач выходит за рамки данной диссертационной работы.

После того, как результаты проведенных измерений пространственного профиля ин-

тенсивности ТГц излучения были опубликованы в работе [88], ряд научных групп также заявлял о наблюдении конического профиля интенсивности ТГц [129, 145] и ИК излучения [146, 147] из плазмы оптического пробоя. Как правило, авторы использовали матрицу детекторов ИК излучения и непосредственное сканирование поперечного профиля пучка перемещением ячейки Голея, установленной на двухкоординатном трансляторе. Полученные данные интерпретировали как следствие протяженности плазменного источника ТГц излучения, на протяжении которого разность фаз между гармониками не остается постоянной, а также поглощением ТГц излучения в кремниевом фильтре в приосевой области.

#### 4.4. Выводы по главе 5

Пространственное распределение интенсивности линейно поляризованного терагерцового излучения, возникающего в газе при взаимодействии в газах фемтосекундных импульсов первой и второй гармоники титан-сапфирового лазера с длительностью порядка 100 фс и энергией до 1 мДж и до 0.05 мДж соответственно, имеет конический характер. Угол раскрытия конуса обратно пропорционален корню из длины образующегося плазменного канала и частоты терагерцового излучения.

## Глава 5

## Генерация ТГц излучения в плёнках диоксида ванадия

## 5.1. Введение

Как было продемонстрировано в предыдущих главах диссертации, при рассмотрении генерации ТГц излучения в плазме оптического пробоя газов возникла необходимость исследовать как вклад свободных, так и связанных электронов среды. Поляризационный подход к исследованию ТГц излучения открывал возможность разделить эти вклады между собой. В данной главе будет показано, что анализ поляризации ТГц излучения, генерируемого в неисследованном ранее источнике также позволяет пролить свет на механизм, ответственный за генерацию. Для этого будет рассмотрен процесс генерации импульсного ТГц излучения при взаимодействии фемтосекундных лазерных импульсов с тонкими плёнками диоксида ванадия. Для этого материала соотношение между количеством свободных и связанных электронов может варьироваться при изменении температуры благодаря наличию фазового перехода полупроводник-металл.

Среди перспективных материалов для применения в ТГц диапазоне частот диоксид ванадия  $\text{VO}_2$  занимает особое место. Это вещество испытывает фазовый переход [148] первого рода [149] из полупроводникового состояния в металлическое при температуре  $68^\circ$ , что приводит к увеличению его проводимости до четырех порядков величины [150]. При этом фазовом переходе от низкотемпературной моноклинной фазы (в дальнейшем будем пользоваться обозначением  $\text{VO}_2(\text{M})$ ) к высокотемпературной тетрагональной (обозначаемой в дальнейшем как  $\text{VO}_2(\text{R})$ ) фазе его оптические и терагерцовые свойства резко изменяются. Так, показатель преломления в оптическом диапазоне уменьшается от 2.67 до 2.26 [151], а для излучения ТГц диапазона частот его свойства приближаются к свойствам металла, то есть он отражает большую часть излучения [152]. Низкотемпературная фаза характеризуется шириной запрещенной зоны 0.7 эВ, а расщепление  $3d_{||}$  зоны, определяющей проводимость материала, имеет расщепление в 2.5 эВ [153]. Резкий контраст пропускания между двумя фазовыми состояниями и лёгкость достижения фазового перехода делают этот материал весьма привлекательным для использования в управляемых оптоэлектронных устройствах для оптического диапазона частот: оптических модуляторах, насыщающихся поглотителях, сверхбыстрых переключателях, метаматериалах, а также

элементах управления распространением ТГц пучка: управляемых аттенюаторах, амплитудных и фазовых экранах, зеркалах, поляризаторах ТГц излучения [154–156].

Фазовый переход в проводящее состояние может быть инициирован не только нагревом [157], но и лазерным излучением [158], приложением постоянного напряжения [159] или давления [160]. Комбинация этих воздействий позволяет достичь наиболее удобных условий для фазового перехода для решения конкретной прикладной задачи [157].

Резкий контраст проводимости двух фазовых состояний диоксида ванадия приводит к значительным различиям и в их нелинейно-оптических свойствах. Например, в экспериментах по генерации третьей гармоники [161],  $z$ -сканированию [162] и вырожденному четырехволновому смешению [163, 164] нелинейный отклик возрастал в ряде случаев на порядок величины при фазовом переходе в проводящее состояние.

При этом как изолирующая, так и проводящая фаза  $\text{VO}_2$  принадлежат центросимметричным классам материалов: низкотемпературная фаза имеет структуру рутила и принадлежит к пространственной группе  $P2_1/c$ , а высокотемпературная имеет моноклинную структуру и относится к пространственной группе  $P4_2/mnm$ . Таким образом, свойства симметрии запрещают протекание нелинейных процессов второго порядка в объеме среды в случае отсутствия какой-либо анизотропии [161].

Тем не менее, в ходе выполнения диссертационной работы удалось наблюдать процесс генерации терагерцового излучения в тонких пленках (35–300 нм) диоксида ванадия как в изолирующем, так и в проводящем фазовом состоянии при оптическом возбуждении импульсами регенеративного усилителя титан-сапфирового лазера. Данный процесс удовлетворительно описывается феноменологической моделью трехволнового смешения.

В ходе фазового перехода, металлическая и изолирующая фаза диоксида ванадия могут сосуществовать одновременно, свидетельствуя [165] о перколяционной природе фазового перехода. Подобным образом происходит переход от непроводящей островковой плёнки к проводящей в процессе роста сверхтонких металлических плёнок [166]. Однако, в отличие от последнего процесса, фазовый переход полупроводник-металл в плёнках диоксида ванадия намного более просто достигается и поддается изучению. Важно отметить, что в тонких плёнках металла как вблизи, так и после перколяционного перехода в металлическое состояние при возбуждении излучением фемтосекундного лазера наблюдалась генерация ТГц излучения [50–52, 54]. Для этих плёнок в качестве механизма генерации

называли как нелинейный отклик поверхности металла, так и движение электронов проводимости. Аналогию можно провести и с плёнками диоксида ванадия, хотя их существенное отличие от металлических плёнок заключается в существенно меньшей длине свободного пробега носителей заряда (она близка к периоду кристаллической решетки [167]).

Изучение нелинейно-оптических процессов второго порядка на поверхностях металлов активно проводится в течение нескольких десятилетий, в-основном, на примере генерации второй гармоники. Краткий исторический обзор работ по этой теме можно найти, например, в работах [168, 169]. Методы и подходы, развитые для теоретического описания генерации второй гармоники на поверхностях металлов, можно применять и для процесса генерации ТГц излучения, что будет показано в данной главе.

Целью данной главы является исследование процесса генерации терагерцового излучения в эпитаксиальных плёнках диоксида ванадия, выращенных на подложках с- и г-срезы сапфира. Основное внимание уделяется поляризации ТГц излучения, поскольку она может служить источником информации о механизме генерации и об анизотропии динамики носителей заряда в плёнках диоксида ванадия, которая в данный момент является предметом активных обсуждений [170].

## 5.2. Экспериментальная установка и образцы

Для исследования состояния поляризации ТГц излучения, генерируемого в плёнках диоксида ванадия, была создана экспериментальная установка, схематически изображённая на рисунке 5.1. Импульсы регенеративного усилителя титан-сапфирового лазера, имеющие энергию 0.5 мДж при длительности 50 фс и частоте повторения 1 кГц, падали по нормали на плёнку диоксида ванадия, выращенную на сапфировой подложке. Поскольку лазерное излучение не фокусировалось в образец, средняя интенсивность излучения составляла 6 Вт/см<sup>2</sup>, что не превышало наблюдавшийся в экспериментах других групп порог оптически-индуцированного фазового перехода [171]. ТГц излучение генерировалось в плёнке диоксида ванадия в направлении, совпадающем с направлением распространения лазерного импульса. Оно проходило сквозь сапфировую подложку и собиралось внеосевым параболическим зеркалом. Оптическое излучение, прошедшее сквозь образец, блокировалось комбинацией 0.5 мм полипропиленового фильтра и 0.35 мм кремниевой пластинки. Полипропиленовый фильтр был нужен для того, чтобы рассеять оптическое излучение перед попаданием на кремниевую пластинку и, таким образом, избавиться от паразитной

генерации ТГц излучения в кремнии при его фотовозбуждении. Кроме того, в ходе эксперимента было проверено, что генерация ТГц излучения в сапфировой подложке без плёнки диоксида ванадия отсутствует. После фильтров в пучок помещался анализатор ТГц излучения с фиксированной ориентацией, далее излучение фокусировалось при помощи внеосевого параболического зеркала в кристалл ZnTe толщиной 4 мм, где происходило электрооптическое детектирование [109]. Для такой толщины кристалла условия фазового синхронизма позволяют эффективно детектировать излучение в диапазоне до 2.5 ТГц. В этой части спектра нет фоновых линий диоксида ванадия [172], и свойства излучения определяются в первую очередь проводимостью свободных носителей заряда [152, 173].

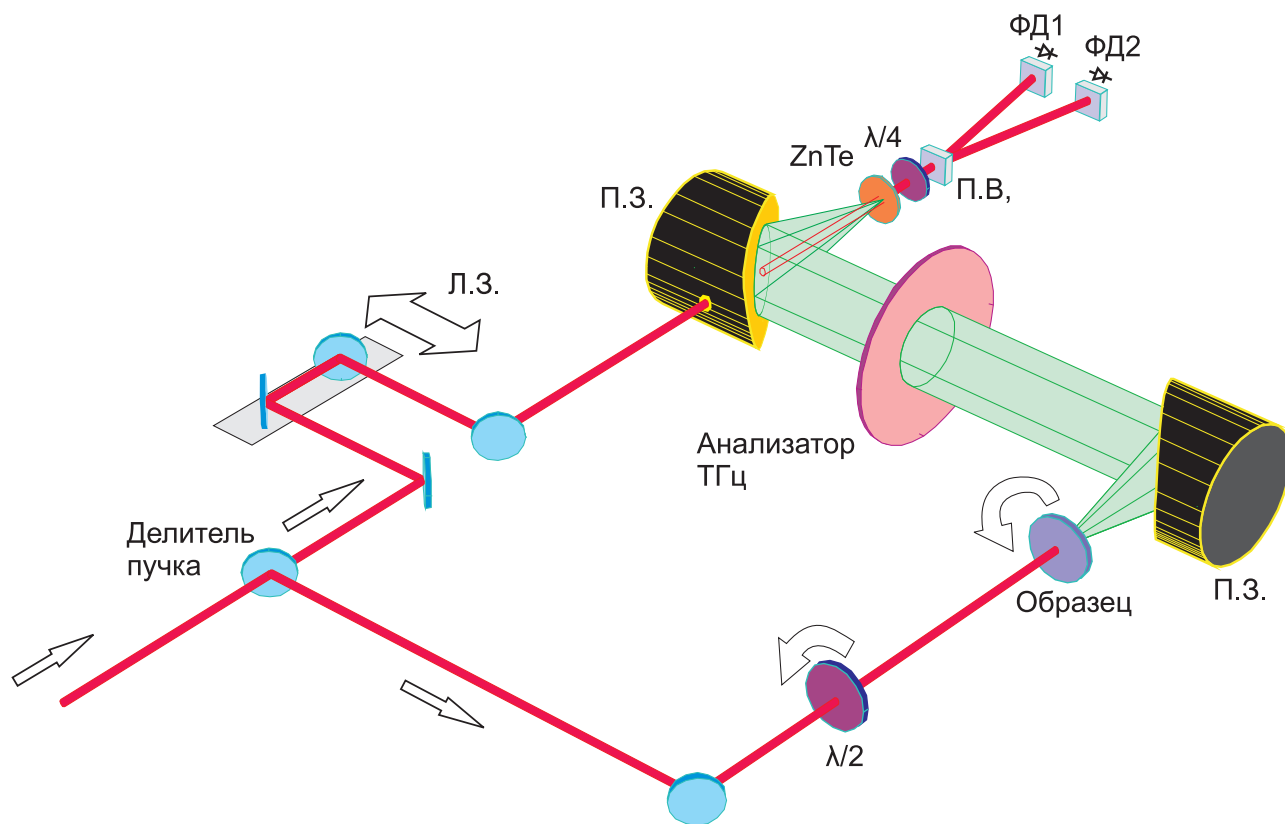


Рис. 5.1. Схема установки для исследования поляризации ТГц излучения, генерируемого в тонких пленках  $\text{VO}_2$ . Л.З. - линия задержки; П.З. - внеосевое параболическое зеркало; П.В. - призма Волластона; ФД - фотодиод

Интенсивность ТГц излучения, генерируемого в плёнках  $\text{VO}_2$ , была невелика, и её было недостаточно для проведения поляризационных измерений при помощи акустооптической ячейки Голея. Электрооптическое детектирование само по себе является поляризационно-чувствительным, поэтому эксперимент было бы некорректно проводить путем



вращения анализатора ТГц излучения при прочих фиксированных параметрах. Наиболее корректным и простым в реализации способом анализа поляризации было вращение самой плёнки  $\text{VO}_2$  совместно с поляризацией возбуждающего излучения накачки по азимутальному углу при фиксированной ориентации ТГц анализатора, детектирующего кристалла  $\text{ZnTe}$  и пробного пучка. Для этого образец закреплялся на вращающейся платформе перпендикулярно к падающему пучку, а в пучок накачки помещалась полуволновая фазовая пластинка, также закреплённая на автоматизированной вращающейся платформе. Серия измерений состояла из регистрации временного профиля ТГц излучения для ряда взаимных ориентаций анализатора излучения и пары “образец+поляризация накачки” с шагом 10 градусов по углу. Далее изменялся угол поворота поляризации накачки относительно азимутальной ориентации образца, и прописывалась следующая серия измерений. Для достижения фазового перехода образец прикреплялся к медной пластине, к которой прикреплялся нагревательный элемент (резистор). Измерения проводились для образца при комнатной температуре (непроводящая фаза  $\text{VO}_2$  и для образца при температуре  $80 \pm 2^\circ\text{C}$ , что соответствовало металлической фазе  $\text{VO}_2$ ).

Плёнки диоксида ванадия выращивают на различных типах подложек, как кристаллических, так и аморфных. При этом наибольший контраст проводимости между изолирующей и проводящей фазой достигается для случая, когда плёнки выращивают на срезе монокристаллического г-сапфира. При этом достигается эпитаксиальный рост ненапряженных плёнок  $\text{VO}_2$ , для которых наблюдается наибольшее изменение проводимости при фазовом переходе (на 4 порядка), наименьшая ширина гистерезиса фазового перехода и крупный размер кристаллитов  $\text{VO}_2$ .

Тонкие плёнки диоксида ванадия выращивают методами магнетронного напыления [174, 175], золь-гель методом [176], осаждением металлоорганических соединений из газообразной фазы (MOCVD) [177], а также методом импульсного лазерного осаждения (PLD, ИЛО) [178, 179]. В ходе работ в рамках данной диссертации использовались как плёнки, выращенные при помощи метода MOCVD на химическом факультете МГУ, так и выращенные методом импульсного лазерного осаждения в Институте проблем лазерных и информационных технологий (ИПЛИТ РАН) в Шатуре.

Плёнки диоксида ванадия, выращенные при помощи метода MOCVD, были получены в вертикальном тубулярном реакторе с горячими стенками при реакции между  $\text{VO}(\text{hfa})_2$  (SuperOx, 98%) с водяными парами в атмосфере инертного газа. Использовался аргон с

расходом 3.6 литров в час, и давление в реакторе составляло порядка 0.01 Торр. Водяной пар подавался в реактор путем впрыскивания воды в горячую (100°C) зону реактора. Температура в реакторе составляла 400°C. Плёнки диоксида ванадия выращивались на полированной поверхности монокристаллического сапфира (г-срез), предварительно очищенную при помощи ацетона. После нанесения плёнки при температуре 400°C, образец отжигался в реакторе до 600°C в течение часа при том же низком (0.01 Торр) давлении аргона.

Пленки VO<sub>2</sub>, выращенные путём импульсного лазерного осаждения, получались при различных плотностях энергии на мишени от 5.2 Дж • см<sup>-2</sup> до 5.9 Дж • см<sup>-2</sup>. В качестве мишеней использовали металлический ванадий чистотой 99.9%. Для равномерной обработки мишень вращалась с частотой примерно 1 Гц. Абляция мишеней осуществлялась эксимерным KrF – лазером с частотой повторения импульсов 10 Гц на установке ИЛО с механической сепарацией частиц для обеспечения режима бескапельного осаждения. Предварительный вакуум (10<sup>-7</sup> Торр) в рабочей камере достигался с помощью турбомолекулярного и криогенного насосов. Подложки располагались на расстоянии 70 мм от мишени. Осаждение пленок проводилось в атмосфере кислорода при давлении 20 мТорр и температуре подложки 630°C.

По данным рентгенофазового анализа ( $\omega/2\theta$  – сканирование), все выращенные методом МОСVD плёнки содержат отражения на углах 18.30, 37.14, 56.97 и 79.06°, соответствующие (100), (200)/(-211), (300) и (400)/(-422) отражениям моноклинной фазы VO<sub>2</sub>(M). Это говорит о том, что плёнки диоксида ванадия имеют кристаллиты двух ориентаций (100) и (-211) без присутствия какого-либо значительного количества других фаз или ориентаций VO<sub>2</sub>. С помощью  $\phi$ -сканирования образцов было подтверждено наличие биаксиальной текстуры с присутствием кристаллитов двух ориентаций (100) и (-211), их ориентация относительно осей подложки выглядит следующим образом: (100)VO<sub>2</sub> || (-1102) Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [011]VO<sub>2</sub> || [2-201]Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>; (-211)VO<sub>2</sub> || (1-102) Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [111]VO<sub>2</sub> || [2-201]Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Схематически взаимные расположения осей подложки и плёнки VO<sub>2</sub>, выращенной на подложках г-среза сапфира, показаны на рисунке 5.2.

Для плёнок, выращенных при помощи метода лазерного осаждения, рентгеновский анализ также свидетельствует о наличии двух ориентаций кристаллитов VO<sub>2</sub>(M) - (100) и (-211). Кроме того, в незначительном количестве присутствуют включения метастабильной фазы VO<sub>2</sub> и, для одной из плёнок, V<sub>6</sub>O<sub>13</sub> в ориентации (100). Для образцов, выращен-

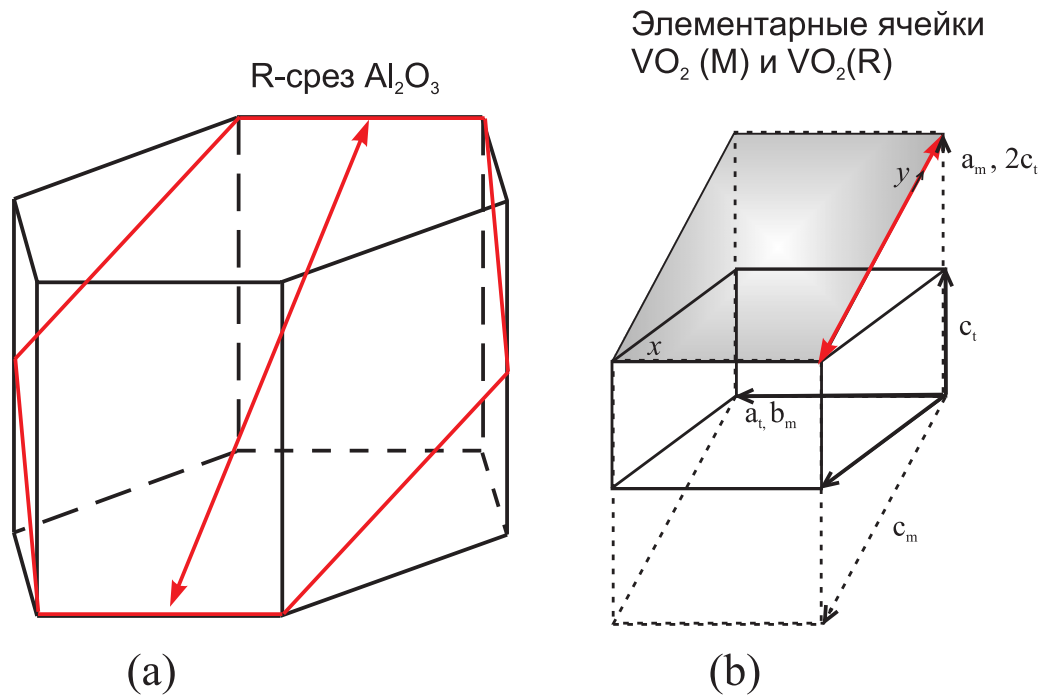


Рис. 5.2. (а) Схема r-среза сапфира (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>). Нужный срез выделен красным цветом на фоне элементарной ячейки сапфира. (б) Элементарные ячейки диоксида ванадия в непроводящей моноклинной (M) (пунктиром) и проводящей тетрагональной рутильной (R) фазе (сплошными линиями). Подписаны расположения осей моноклинной ячейки ( $a_m, b_m, c_m$ ) и тетрагональной ячейки ( $a_t, b_t, c_t$ ). Красной стрелкой на рисунках (а) и (б) показано расположение “необыкновенной” оси подложки, по которой в ходе эксперимента производится привязка ориентации плёнки VO<sub>2</sub> и поляризации оптического излучения

ных на подложках с-среза сапфира, наблюдалось присутствие текстуры (001) моноклинной фазы диоксида ванадия:  $(001)\text{VO}_2 \parallel (0001)\text{Al}_2\text{O}_3$ .

### 5.3. Экспериментальные результаты и обсуждение

Первоначальное исследование свойств имеющихся плёнок диоксида ванадия с точки зрения их проводимости и её изменения при фазовом переходе выполнялось при помощи регистрации спектров пропускания ТГц излучения в двух фазовых состояниях VO<sub>2</sub>. Контраст коэффициента пропускания в терагерцовом диапазоне частот - наиболее важная с точки зрения практических применений характеристика плёнок диоксида ванадия, напрямую связанная с изменением их проводимости. Чем выше однородность плёнки и степени её окисления, тем выше наблюдаемый контраст проводимости между её “холодным” и “горячим” состоянием.

В частотном диапазоне, доступном для использованного спектрометра в геометрии на пропускание (0.1-2.5 ТГц), все плёнки не имели каких-либо резонансных особенностей в спектре пропускания (см. Рис. 5.3 а, б), поскольку в обоих фазовых состояниях частоты фононов превышают 4.4 ТГц ([172]). В результате фазового перехода коэффициент пропускания равномерно падает во всем доступном для измерения диапазоне. Вращение образца вокруг оси распространения ТГц пучка не приводит к изменению коэффициента пропускания, что говорит об отсутствии анизотропии поглощения как в проводящей, так и в изолирующей фазе  $\text{VO}_2$  для всех образцов вне зависимости от метода роста и типа подложки. Следует заметить, что вследствие двулучепреломления в подложке r-сапфира как для оптического, так и для ТГц диапазона частот, при вращении образца относительно азимутального угла при фиксированной поляризации ТГц излучения прошедший импульс “разваливается” на два, соответствующие обыкновенной и необыкновенной волне в кристалле подложки 5.3 (с). Тем не менее, амплитуда прошедшей сквозь образец обыкновенной и необыкновенной волны одинакова как для изолирующего, так и для проводящего состояния диоксида ванадия. Это требует особого внимания при использовании плёнок  $\text{VO}_2$  на подложках r-сапфира в поляризационно-чувствительных областях применений. В контексте данной работы двулучепреломление сапфира помогает определить ориентацию плёнки  $\text{VO}_2$ : направление “необыкновенной” оси сапфира, которой соответствует больший показатель преломления, совпадает с направлением  $[100]\text{VO}_2(\text{R})$  в проводящей фазе диоксида ванадия и  $[010]\text{VO}_2(\text{M})$  в непроводящей фазе соответственно (см. рис. 5.2).

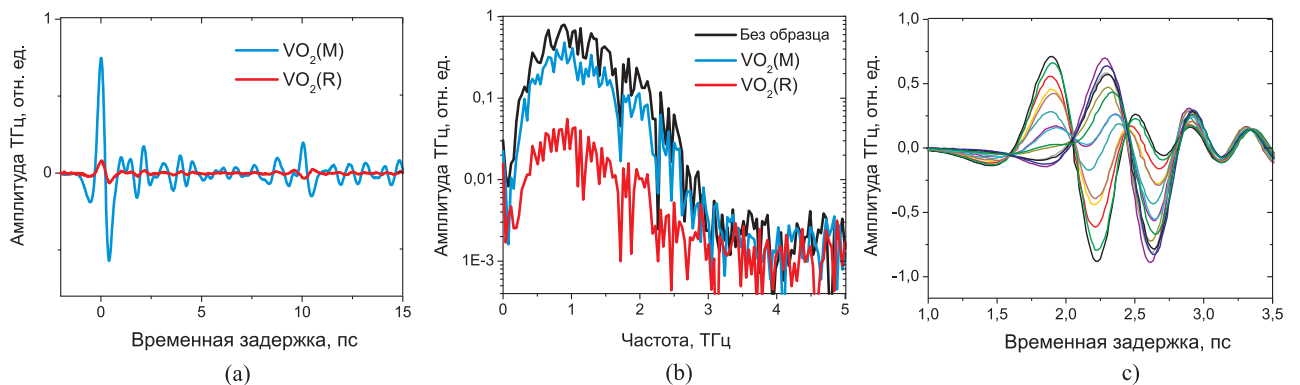


Рис. 5.3. Типичный временной профиль (а) и спектр (б) ТГц импульса, прошедшего через плёнку диоксида ванадия. (с) - временные профили ТГц импульса, прошедшего сквозь образец диоксида ванадия на подложке r-сапфира для различных азимутальных углов ориентации образца

Изменение коэффициента пропускания ТГц излучения не имело монотонной зависимости от толщины плёнки  $\text{VO}_2$ . Наибольший контраст (1 порядок уменьшения коэффи-

циента пропускания по амплитуде) был достигнут для плёнки толщиной 300 нм, выращенной на подложке r-сапфира при помощи метода MOCVD. Для плёнок, полученных методом лазерного осаждения, наилучшее наблюдаемое изменение коэффициента поглощения составило 75% для у образца с толщиной 100 нм. Это согласуется с результатами рентгеновского анализа, свидетельствующего о включениях нескольких фаз оксида ванадия, что приводит к уменьшению среднего размера кристаллитов и уменьшению контраста проводимости. Для образца, выращенного на подложке c-сапфира наблюдаемый контраст поглощения был еще меньше и составил лишь изменение на 39% при фазовом переходе. Результаты измерений отражены в Таблице 5.1 совместно с результатами исследования генерации ТГц излучения в этих образцах.

Таблица 5.1. Сравнение поглощения ТГц излучения и генерации ТГц излучения в двух фазовых состояниях плёнок диоксида ванадия

Номер образца	Тип подложки	Толщина, нм	Контраст в пропускании, металл/изолятор	Контраст в амплитуде генерированного ТГц излучения, изолятор/металл
1	R-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	110	0.19	0.26
2	R-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	100	0.25	0.03
3	C-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	34	0.61	-
4	R-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	173	0.42	0.3
5	R-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	300	0.11	0.49

Для генерации ТГц излучения на образцы возбуждались излучением с энергией 0.5 мДж, длительностью 50 фс и длиной волны 800 нм. При этом во всех исследованных плёнках наблюдалась генерация ТГц импульсов, но для некоторых образцов его амплитуда была мала и не позволяла провести исследование состояния поляризации. Для тех плёнок, где интенсивность ТГц излучения была достаточно велика, ширина излучаемого спектра превышала доступную для эффективного детектирования при помощи выбранного 4 мм кристалла ZnTe (0.1-2.5 ТГц), и в исследованном интервале частот не имела каких-либо существенных спектральных особенностей (см. рис. 5.4). Временной профиль и спектр импульсов, генерируемых в различных образцах, идентичны между собой. Максимальная наблюдаемая амплитуда была получена для плёнки толщиной 100 нм на подложке

г-сапфира и составила примерно 1% от амплитуды, излучаемой с поверхности низкотемпературного арсенида галлия при возбуждении аналогичными лазерными импульсами.

В результате фазового перехода в металлическое состояние амплитуда излучаемого импульса значительно возрастает равномерно по всему наблюдаемому спектру. В количественном отношении изменение амплитуды ТГц импульса не имело корреляции ни с толщиной плёнки  $\text{VO}_2$ , ни с соответствующим изменением коэффициента пропускания ТГц излучения через плёнку. ТГц излучение из плёнки диоксида ванадия, выращенного на подложке с-сапфира, было с трудом различимо на фоне шумов как для проводящей, так и для изолирующего фазового состояния (см. Таблицу 5.1).

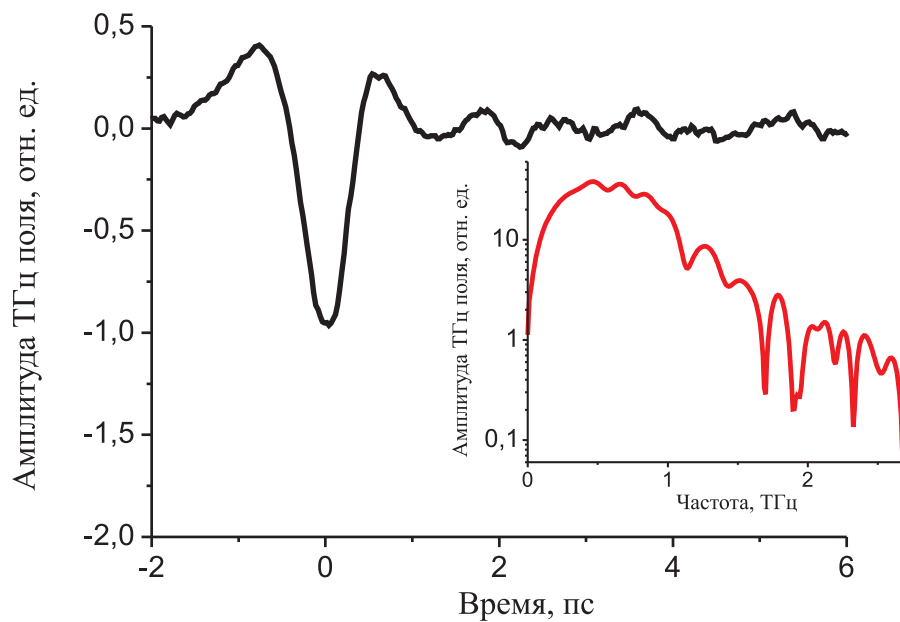


Рис. 5.4. Типичный временной профиль и спектр ТГц импульса, излучаемого плёнкой диоксида ванадия

Кроме того, были проведены исследования зависимости амплитуды ТГц поля от энергии возбуждающего излучения. Полученная зависимость для низкотемпературной и высокотемпературной фазы диоксида ванадия показана на рисунке 5.5. Выше температуры фазового перехода, зависимость была линейной во всем исследованном диапазоне от 0 до  $7.5 \text{ мДж/см}^2$ . Для низкотемпературной фазы  $\text{VO}_2$  зависимость имела линейный характер возрастания до  $5 \text{ мДж/см}^2$ , после чего скорость изменения амплитуды возросла. Это связано с тем, что интенсивность возбуждающего излучения достигала порога оптического возбуждения фазового перехода, который в различных работах упоминается равным  $6.5 \text{ мДж/см}^2$  [171]. При этом резко возрастает концентрация свободных носите-

лей заряда в плёнке, и увеличивается интенсивность генерации ТГц излучения. Как видно из рисунка 5.5, в широком диапазоне интенсивности амплитуда ТГц излучения следует феноменологическому закону трехволнового смешения, или оптического выпрямления:  $E_{THz} \propto \chi^{(2)} \cdot E_{\omega} \cdot E_{\omega} \propto I_{\omega}$ .

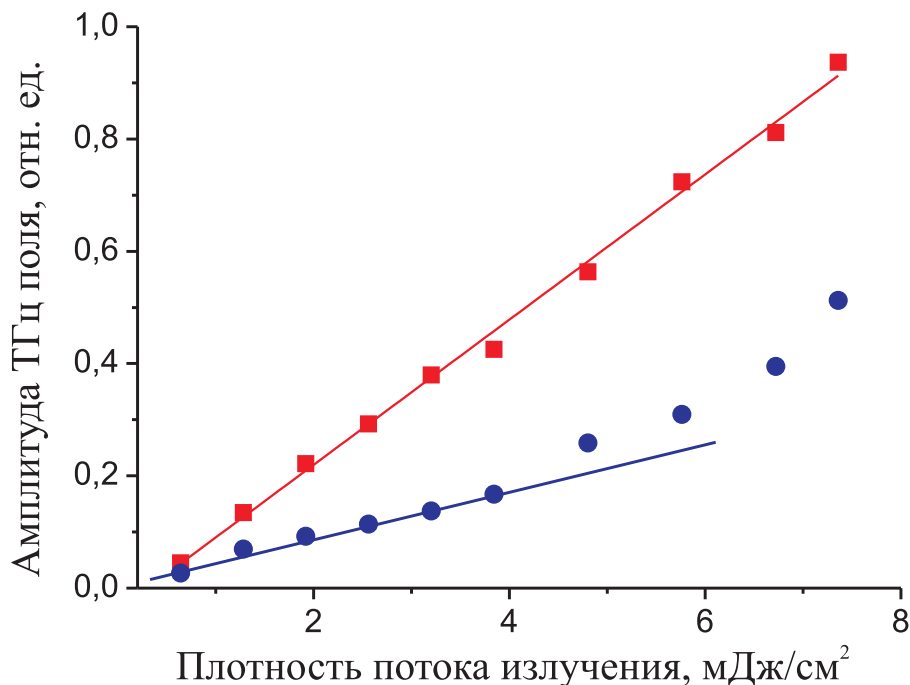


Рис. 5.5. Зависимость наблюдаемой интенсивности ТГц поля от флюенса излучения, падающего на диоксид ванадия в изолирующем (синий) и проводящем (красный) состоянии.

Поляризация излученного ТГц импульса для всех исследованных плёнок в *проводящем* фазовом состоянии была линейной с хорошей точностью, что подтверждалось идентичной формой зарегистрированных ТГц импульсов вне зависимости от взаимной ориентации плёнки и ТГц анализатора. Зависимость квадрата амплитуды ТГц импульса от угла поворота анализатора относительно плёнки  $VO_2$  показана на рисунке 5.6, (b) для различных углов между выделенной осью плёнки  $VO_2$  (направлением  $[100]VO_2(R)$ ) и направлением поляризации возбуждающего оптического излучения. Видно, что поляризация ТГц излучения и его амплитуда мало зависят от поляризации возбуждающего излучения в широких пределах изменения поляризации последнего (вплоть до поворота на  $100^\circ$ ), а поляризация ТГц излучения тесно связана с ориентацией плёнки диоксида ванадия.

В *изолирующем* состоянии отклонения состояния поляризации генерируемого излучения от линейной наблюдались, но были в целом незначительными, и амплитуда прошед-

шего сквозь скрещенный анализатор ТГц сигнала ненамного превышала уровень шума (см. Рис. 5.6 (а)). Тем не менее, в отличие от плёнок в проводящем состоянии, направление вектора поляризации ТГц излучения и его амплитуда существенным образом зависят от угла между поляризацией возбуждающего излучения и ориентацией плёнки. Направление поляризации излучаемого ТГц импульса для некоторых поляризаций накачки повернуто на 15-18° относительно выделенной оси плёнки  $\text{VO}_2$  (точнее, направления  $[010] \text{VO}_2$  (M)), а его интенсивность изменяется на 80% при вращении поляризации возбуждающего излучения.

Таким образом, возможно управление поляризацией генерируемого в плёнках излучения при переходе плёнки диоксида ванадия на г-срезе сапфира в проводящую фазу и обратно путем изменения температуры.

Что касается плёнок диоксида ванадия, выращенных на подложках с-среза сапфира, даже в проводящей фазе амплитуда генерируемого излучения была очень мала, и изучение состояния его поляризации представлялось невозможным.

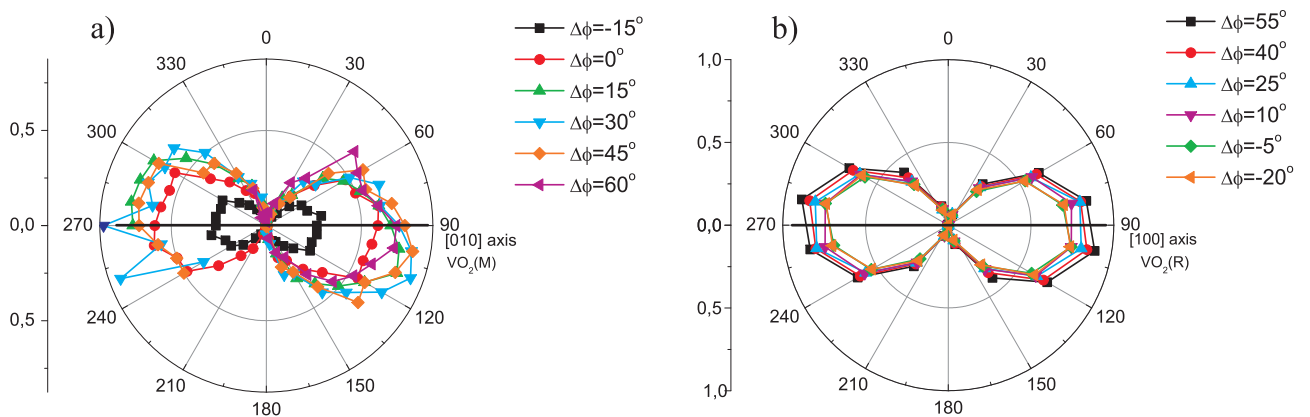


Рис. 5.6. Поляризация ТГц излучения, генерируемого в плёнках  $\text{VO}_2$  в изолирующем (а) и проводящем (б) состоянии для различных поляризаций возбуждающего оптического излучения.

Среди полупроводниковых источников импульсного ТГц излучения существует класс генераторов, поляризация которых тесно связана с ориентацией генератора и мало зависит от поляризации возбуждающего лазерного излучения. Наиболее распространенный вариант таких генераторов основан на эффекте Дембера на поверхности полупроводников при их фотовозбуждении фемтосекундными лазерными импульсами. При этом терагерцовое излучение обусловлено импульсом фототока, перпендикулярного поверхности, и принципиальным моментом для практического наблюдения такой генерации является необходи-



мость падения возбуждающего лазерного излучения под углом к поверхности. Для того, чтобы установить, мог ли подобный механизм быть причиной наблюдаемого терагерцового излучения из плёнок диоксида ванадия, были проведены исследования эффективности генерации при изменении угла падения возбуждающего излучения на образец. Как для изолирующей, так и для проводящей фазы диоксида ванадия было обнаружено уменьшение эффективности генерации ТГц излучения при удалении угла падения от нормального, что говорит о том, что излучение ТГц импульса обусловлено в первую очередь токами в плоскости плёнки, а не вдоль нормали к ней.

Поскольку плёнки диоксида ванадия как в полупроводящей, так и в металлической фазе принадлежат центросимметричным пространственным группам, для них нелинейно-оптические эффекты четных порядков запрещены в объеме среды и отсутствует оптическая гиротропия. Тем не менее, нелинейные процессы второго порядка не запрещены на границах между плёнкой диоксида ванадия и непроводящими средами, такими как воздух и сапфир (т.е. материал подложки) [180]. При взаимодействии с оптическим излучением (энергия кванта 1.55 эВ превышает ширину запрещенной зоны, равную в низкотемпературной фазе 0.7 эВ) в пленке возникают фотоиндуцированные электроны, и на поверхности проводящего слоя возбуждается ток смещения. Этот ток обуславливает излучение электромагнитных волн на комбинационных частотах, в частности второй гармоники и терагерцового излучения при использовании фемтосекундных лазерных импульсов. Этот механизм имеет место при отличии от нуля компоненты электрического поля возбуждающего импульса, направленной по нормали к поверхности раздела. Это происходит при оптическом возбуждении с наклонным падением возбуждающего импульса, либо при возбуждении пучком ограниченного размера (что имеет место в настоящей работе). Симметрия поверхности среды в общем случае отличается от симметрии объема материала, и именно она определяет поляризацию генерируемых компонент электромагнитного излучения, в том числе терагерцового.

Диоксид ванадия в проводящей фазе имеет высокую симметрию ( $4/mmm$ ), а его поверхность, обращенная в сторону воздуха - симметрию  $rlg1$ . Граница раздела диоксида ванадия и кристалла сапфира ( $r$ -среза), так же имеет симметрию, которая соответствует прямоугольному классу и для которой два взаимно ортогональных направления в плоскости не являются эквивалентными. Эта неэквивалентность направлений обуславливает появление поляризации излучения на комбинационной (в данном случае - терагер-

цовой) частоте, привязанной не к поляризации возбуждающего излучения, а к ориентации сапфировой подложки и плёнки  $\text{VO}_2$ . Для С-среза сапфира, поверхность имеет более высокую симметрию (3m, гексагональный класс), и не имеет одного четко выделенного направления в плоскости, как в случае R-среза. Для таких подложек ТГц излучение имело низкую интенсивность и не было возможности аккуратно проанализировать состояние его поляризации. Сапфировые подложки в отсутствие напыленных плёнок диоксида ванадия не генерировали ТГц излучения при тех же параметрах возбуждающих импульсов. Таким образом, наблюдаемое терагерцовое излучения плёнок диоксида ванадия обусловлено нелинейно-оптическими процессами, возникающими в области границы  $\text{VO}_2$  и  $\text{Al}_2\text{O}_3$ .

Линейные оптические свойства (поглощение ТГц излучения) в плёнках  $\text{VO}_2$  на всех типах подложек при этом являются изотропными, поскольку они в низкочастотной части ТГц диапазона зависят в-основном от времени свободного пробега носителей заряда, которое не зависит от направления в плоскости плёнки.

Для низкотемпературной моноклинной фазы диоксида ванадия нелинейный отклик обусловлен оптически индуцированной проводимостью и поэтому интенсивность терагерцового излучения в низкотемпературной фазе существенно ниже, чем в проводящей высокотемпературной фазе. Взаимодействие излучения титан-сапфирового фемтосекундного лазера с диоксидом ванадия в низкотемпературной фазе приводит к разделению зарядов путём генерации экситона Френкеля, который спустя короткое время релаксирует до экситона Ванье-Мотта [181], но при этом кристаллическая решетка вещества остается прежней и фазового перехода не происходит. При превышении интенсивности излучения накачки над некоторым пороговым значением происходит преобразование кристаллической решетки и высвобождение новых свободных электронов - формирование проводящей фазы  $\text{VO}_2$ . В настоящей работе используются близкие к пороговым значения интенсивности лазерного излучения, в результате чего возникает некоторое количество короткоживущих фотоиндуцированных носителей заряда (процессы 5 и 6 на схеме, изображенной на рисунке 5.7 из работы [181]). Симметрия поверхности раздела  $\text{VO}_2$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  в низкотемпературной и высокотемпературной фазе диоксида ванадия неодинаковы, что приводит к отличиям в геометрии возбуждаемых на поверхности раздела токов смещения и, как следствие, поляризации генерируемого излучения. Эти свободные носители заряда и определяют импульс фототока, но при этом они движутся в электростатическом поле решетки в исходной, т.е. моноклинной геометрии, поэтому направление фототока не совпадает с таковым в темпера-

турно-индуцированной проводящей фазе  $\text{VO}_2$ . На основе полученных экспериментальных данных, можно ввести в рамках феноменологического подхода эффективный тензором нелинейной восприимчивости второго порядка  $\chi_{eff}^{(2)}(\Omega, \omega, -\omega)$  со следующими коэффициентами:

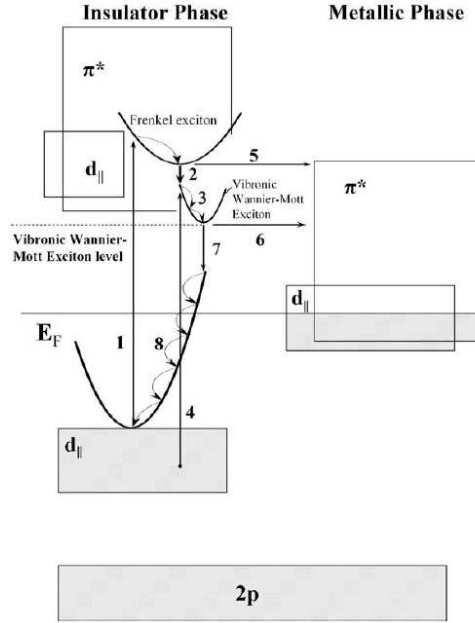


Рис. 5.7. Схематическое изображение фотоиндуцированных процессов в непроводящей фазе  $\text{VO}_2$ , происходящих вблизи порога интенсивности фазового перехода в металлическое состояние, приведенное в статье [181].

$$\begin{aligned}
 \chi_{xxx}^{(2)} &= 1, \chi_{xyy}^{(2)} = 0.02, \\
 \chi_{yux}^{(2)} &= \chi_{yxy}^{(2)} = 0.12, \\
 \chi_{yuy}^{(2)} &= \chi_{yxx}^{(2)} = \chi_{xxy}^{(2)} = \chi_{xyx}^{(2)} = 0,
 \end{aligned}
 \tag{5.1}$$

где в качестве направлений  $x$  и  $y$  приняты оси моноклинной кристаллической решетки  $[010]\text{VO}_2(\text{M})$  и  $[001]\text{VO}_2(\text{M})$  соответственно. Экспериментальная зависимость интенсивности ТГц излучения и его поляризации для двух образцов одновременно с зависимостью, описанной тензором (5.1), показана на рисунке 5.8. Как видно, указанные компоненты тензора обеспечивают удовлетворительное согласие с экспериментальными данными.

Кроме того, в настоящей работе проводились исследования генерации ТГц излучения в плёнке диоксида ванадия по механизму четырехволнового смешения в процессе

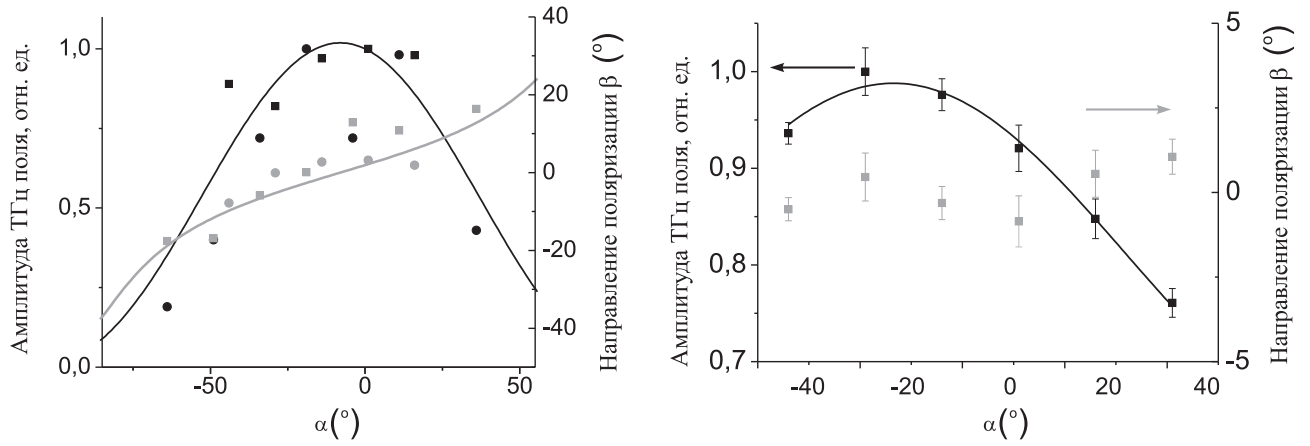


Рис. 5.8. Амплитуда ТГц излучения и угол  $\beta$  между поляризацией ТГц излучения и выделенным направлением в пленке  $\text{VO}_2$  (ось  $x$ , совпадающая с направлением  $[010]\text{VO}_2(\text{M})$  в непроводящем состоянии (а) и  $[100]\text{VO}_2(\text{R})$  в проводящем состоянии (б)) в зависимости от угла  $\alpha$  между осью  $x$  и поляризацией возбуждающего оптического излучения. Вместе с экспериментальными точками показаны зависимости, соответствующие тензору  $\chi^{(2)}$ , описанному выражениями (5.1)

$\Omega(\text{THz}) = \omega + \omega - 2\omega$  при искусственном добавлении второй гармоники в возбуждающий оптический пучок. Для этого в коллимированный пучок первой гармоники на большом удалении от образца (это делалось для уменьшения фона, ТГц излучения, генерируемого в самом кристалле ВВО) помещался кристалл бета-бората бария (ВВО) I типа синхронизма толщиной 0.1 мм. Интенсивность излучения второй гармоники приблизительно на 2 порядка меньше, чем интенсивность фундаментального пучка. Было обнаружено, что добавление в возбуждающий пучок излучения второй гармоники для различных разностей фаз первой и второй гармонки и различных поляризаций последней, интенсивность ТГц излучения не изменялась. Таким образом, можно заключить, что процессы четырехволнового смешения в плёнке  $\text{VO}_2$  в обоих фазовых состояниях не играет существенной роли в наблюдаемой генерации ТГц излучения, в контрасте с тем, как происходит генерация ТГц излучения в газах.

#### 5.4. Выводы по главе 6

Изменение температуры диоксида ванадия в области фазового перехода изолятор-проводник позволяет управлять зависящими от соотношения вкладов проводимости и нелинейной поляризации среды параметрами эллипса поляризации терагерцового излуче-

ния, возникающего при распространении фемтосекундного импульса титан-сапфирового лазера

Эффективность генерации терагерцового излучения, возникающего при взаимодействии фемтосекундного импульса титан-сапфирового лазера с эпитаксиальной пленкой диоксида ванадия, возрастает более чем на порядок при его переходе из изолирующего в проводящее состояние

Направление линейной поляризации терагерцового излучения, генерируемого в эпитаксиальной плёнке диоксида ванадия в проводящем состоянии при её взаимодействии с фемтосекундным импульсом титан-сапфирового лазера, определяется исключительно кристаллографической симметрией пленки и не зависит от поляризации возбуждающего излучения

## Заключение

В ходе выполнения работы установлено, что многообразие процессов, происходящих в плазме оптического пробоя газов и в тонких проводящих плёнках, можно упрощенно описать с использованием аналитических моделей, учитывающих как нелинейную поляризацию среды, обусловленную откликом связанных электронов в молекулах и атомах газов, так свойства проводимости среды, определяемые фотоэлектронами. Анализ состояния эллипса поляризации наблюдаемого терагерцового излучения позволяет определить соотношение вкладов проводимости и нелинейной поляризации в процесс генерации излучения.

Создан многофункциональный спектрометр-поляриметр, позволяющий проводить эксперименты в оптическом и ТГц диапазонах с возможностью управления поляризацией, интенсивностью и временной задержкой пучков первой и второй гармоник.

Обнаружено, что при взаимодействии с газовой средой линейно поляризованного излучения первой и второй гармоник с длительностью порядка 100 фс и энергией порядка 0.5 мДж и 0.02 мДж соответственно и углом между направлениями их поляризации, меньшим  $70^\circ$ , поляризация генерируемого терагерцового излучения близка к линейной. Направление главной оси эллипса поляризации совпадает с направлением поляризации первой гармоники.

Установлено, что при взаимодействии в газе циркулярно поляризованного импульса первой гармоники и линейно поляризованного импульса второй гармоники титан-сапфирового лазера при их энергиях порядка 0.5 мДж и до 0.02 мДж соответственно, терагерцовое излучение имеет линейную поляризацию с направлением, зависящим от разности фаз  $\phi$  между полями первой и второй гармоник, а его интенсивность не зависит от этой разности фаз.

Показано, что поляризация второй и третьей гармоник, возникающих при коллинеарном взаимодействии фемтосекундных импульсов первой и второй гармоники титан-сапфирового лазера в воздухе при их энергиях до 0.5 мДж и до 0.02 мДж соответственно, хорошо описывается в рамках модели кубической среды без пространственной и частотной дисперсии

Экспериментально показано, что пространственное распределение интенсивности линейно поляризованного терагерцового излучения, возникающего в газе при взаимодей-

ствии фемтосекундных импульсов первой и второй гармоники титан-сапфирового лазера с длительностью порядка 100 фс и энергией до 1 мДж и до 0.05 мДж соответственно, имеет конический характер. Угол раскрытия конуса обратно пропорционален корню из длины образующегося плазменного канала и частоты терагерцового излучения

Обнаружено и исследовано явление генерации ТГц излучения при возбуждении плёнок диоксида ванадия толщиной 35-200 нм на сапфировых подложках мощным (до 0.2 мДж) фемтосекундным излучением титан-сапфирового лазера. Установлено, что фазовый переход из изолирующего в металлическое состояние приводит к увеличению эффективности генерации до 30 раз. Поляризация ТГц излучения, генерируемая плёнкой диоксида ванадия, линейна, и в случае высокотемпературной металлической фазы совпадает с ориентацией оси [100]  $\text{VO}_2(\text{R})$  плёнки, что обусловлено токами смещения на границах раздела плёнки  $\text{VO}_2$  с сапфировой подложкой и с воздухом. Амплитуда излучаемого ТГц импульса линейно зависит от интенсивности возбуждающего лазерного излучения для обоих фазовых состояний  $\text{VO}_2$ .

## Благодарности

Я хотел бы поблагодарить Владимира Анатольевича Макарова и Александра Павловича Шкуринова за продуктивное научное руководство на протяжении всего времени работы в лаборатории, за интересную постановку научных задач, поддержку и содействие при их выполнении, за организацию совместной работы со специалистами и научными группами других институтов, включая зарубежные.

Кроме того, выражаю благодарность Владиславу Яковлевичу Панченко за организацию работ по тематике терагерцового излучения в Институте проблем лазерных и информационных технологий РАН, в которых мне удалось принять участие, а также Олегу Михайловичу Саркисову, при поддержке которого в 2008 году я попал в лабораторию терагерцовой фотоники и спектроскопии МГУ, будучи студентом кафедры химической физики МФТИ.

Я благодарен всем сотрудникам, студентам и аспирантам Лаборатории терагерцовых и информационных технологий ИПЛИТ РАН и Лаборатории терагерцовой фотоники и спектроскопии физического факультета МГУ: Илье Александровичу Ожередову, Алексею Вячеславовичу Балакину, Андрею Александровичу Ангелуцу, Дмитрию Александровичу Сапожникову, Александру Валерьевичу Бородину, Николаю Анатольевичу Кузечкину, Илье Игоревичу Курицыну, Петру Михайловичу Солянкину, Антону Сергеевичу Синько, Ирине Николаевне Смирновой, Виолетте Амировне Еникеевой - людям, бок о бок с которыми я работал в течение многих лет и от которых многому научился. Теплая дружественная атмосфера в этих лабораториях всегда была залогом приятной и плодотворной научной работы и стимулировала успешное решение интереснейших задач. Особо хочется поблагодарить Максима Михайловича Назарова, под руководством которого я получил самые первые практические навыки работы в лаборатории. Опыт, который я перенял от него, стал фундаментом тех знаний и навыков, которыми я владею к настоящему моменту.

Выражаю свою благодарность авторам всех статей, соавторами которых я являюсь. Эти статьи отражают результат интересной и плодотворной совместной работы, дискуссий и творческого поиска. Особую благодарность хочется выразить сотрудникам, студентам и аспирантам лаборатории численного эксперимента физического факультета МГУ имени М.В. Ломоносова - Николаю Андреевичу Панову, Ольге Григорьевне Косаревой, Вере Александровне Андреевой, Даниле Евгеньевичу Шишило за интересные обсуждения слож-



ных физических задач, в ходе которых рождались новые идеи для численных и натуральных экспериментов и формировался нынешний взгляд на природу процессов, которые нами совместно изучались и изучаются.

Моя работа была бы невозможна без поддержки друзей, близких и моей семьи.

## Список литературы

1. Eisele H., Rydberg A., Haddad G. I. Recent advances in the performance of InP Gunn devices and GaAs TUNNETT diodes for the 100-300-GHz frequency range and above // *Microwave Theory and Techniques, IEEE Transactions on*. 2000. Vol. 48, no. 4. P. 626–631.
2. Зайцев, Н.И., Петелин, М.И. Гиротроны диапазона миллиметровых и субмиллиметровых волн // *Радиотехника и электроника*. 1974. Т. 19, № 5-8. С. 1056.
3. Bratman V., Glyavin M., Idehara T., Kalynov Y., Luchinin A., Manuilov V., Mitsudo S., Ogawa I., Saito T., Tatematsu Y. et al. Review of Subterahertz and Terahertz Gyrodevices at IAP RAS and FIR FU // *IEEE Transactions on Plasma Science*. 2009. Vol. 37, no. 1. P. 36–43.
4. Девятков, Н.Д., Голант, М.Б. Пути развития электронных приборов миллиметрового и субмиллиметрового диапазонов длин волн // *Радиотехника и электроника*. 1967. Т. 12, № 11. С. 1973–1983.
5. Гершензон, Е.М., Голант, М.Б., Негирев, А.А., Савельев, В.С. Лампы обратной волны. Радио и связь, 1985. С. 136.
6. Booske J. H., Dobbs R. J., Joye C. D., Kory C. L., Neil G. R., Park G.-S., Park J., Temkin R. J. Vacuum electronic high power terahertz sources // *Terahertz Science and Technology, IEEE Transactions on*. 2011. Vol. 1, no. 1. P. 54–75.
7. Motz H. Applications of the radiation from fast electron beams // *Journal of Applied Physics*. 1951. Vol. 22, no. 5. P. 527–535.
8. Кулипанов, Г.Н. Изобретение ВЛ Гинзбургом ондуляторов и их роль в современных источниках синхротронного излучения и лазерах на свободных электронах // *Успехи физических наук*. 2007. Т. 177, № 4. С. 384–393.
9. Weiss C. Optically pumped FIR-laser with variable Fabry-Perot output coupler // *Applied physics*. 1977. Vol. 13, no. 4. P. 383–385.
10. Telles E. M., Odashima H., Zink L. R., Evenson K. Optically pumped FIR laser lines from CH<sub>3</sub>OH: new laser lines, frequency measurements, and assignments // *Journal of molecular spectroscopy*. 1999. Vol. 195, no. 2. P. 360–366.

11. Köhler R., Tredicucci A., Beltram F., Beere H. E., Linfield E. H., Davies A. G., Ritchie D. A., Iotti R. C., Rossi F. Terahertz semiconductor-heterostructure laser // *Nature*. 2002. Vol. 417, no. 6885. P. 156–159.
12. Williams B. S., Kumar S., Callebaut H., Hu Q., Reno J. L. Terahertz quantum-cascade laser operating up to 137 K // *Applied Physics Letters*. 2003. Vol. 83, no. 25. P. 5142–5144.
13. Абдуллин, У.А., Ляхов, Г.А., Руденко, О.В., Чиркин, А.С. Возбуждение разностных частот в нелинейной оптике и условие Черенковского излучения // *ЖЭТФ*. 1974. Т. 66. С. 1295.
14. Багдасарян, Д.А., Макарян, А.Д., Погосян, П.С. Черенковское излучение распространяющейся волны нелинейной поляризации // *Письма ЖЭТФ*. 1983. Т. 37. С. 498–500.
15. Wynne J., Sorokin P., Lankard J. A Tunable Infrared Coherent Source for the 2 to 25 Micron Region and Beyond / edited by R. G. Brewer, A. Mooradian. Springer US, 1974. P. 103–111. ISBN: 978-1-4613-4519-0.
16. Bass M., Franken P. A., Ward J. F., Weinreich G. Optical Rectification // *Phys. Rev. Lett.* 1962. — Dec. Vol. 9. P. 446–448.
17. Auston D. H., Glass A. M., Ballman A. A. Optical Rectification by Impurities in Polar Crystals // *Phys. Rev. Lett.* 1972. — Apr. Vol. 28. P. 897–900.
18. Nahata A., Weling A. S., Heinz T. F. A wideband coherent terahertz spectroscopy system using optical rectification and electro-optic sampling // *Appl. Phys. Lett.* 1996. Vol. 69, no. 16.
19. Bonvalet A., Joffre M., Martin J. L., Migus A. Generation of ultrabroadband femtosecond pulses in the mid infrared by optical rectification of 15 fs light pulses at 100 MHz repetition rate // *Appl. Phys. Lett.* 1995. Vol. 67, no. 20. P. 2907–2909.
20. Kaindl R. A., Eickemeyer F., Woerner M., Elsaesser T. Broadband phase-matched difference frequency mixing of femtosecond pulses in GaSe: Experiment and theory // *Appl. Phys. Lett.* 1999. Vol. 75, no. 8.
21. Xie X., Xu J., Zhang X.-C. Terahertz wave generation and detection from a CdTe crystal characterized by different excitation wavelengths // *Opt. Lett.* 2006. — Apr. Vol. 31, no. 7. P. 978–980.

22. Hebling J., Yeh K.-L., Hoffmann M. C., Bartal B., Nelson K. A. Generation of high-power terahertz pulses by tilted-pulse-front excitation and their application possibilities // *J. Opt. Soc. Am. B.* 2008. — Jul. Vol. 25, no. 7. P. B6–B19.
23. Auston D., Cheung K. P., Smith P. Picosecond photoconducting Hertzian dipoles // *Appl. Phys. Lett.* 1984. Vol. 45. P. 284–286.
24. Pedersen J. E., Lyssenko V. G., Hvam J. M., Jepsen P. U., Keiding S. R., Sørensen C. B., Lindelof P. E. Ultrafast local field dynamics in photoconductive THz antennas // *Appl. Phys. Lett.* 1993. Vol. 62, no. 11.
25. Weiss C., Wallenstein R., Beigang R. Magnetic-field-enhanced generation of terahertz radiation in semiconductor surfaces // *Appl. Phys. Lett.* 2000. Vol. 77, no. 25.
26. Zhang X.-C., Auston D. H. Optoelectronic measurement of semiconductor surfaces and interfaces with femtosecond optics // *Journal of Applied Physics.* 1992. Vol. 71, no. 1. P. 326–338.
27. Dekorsy T., Pfeifer T., Kütt W., Kurz H. Subpicosecond carrier transport in GaAs surface-space-charge fields // *Phys. Rev. B.* 1993. — Feb. Vol. 47. P. 3842–3849.
28. Dekorsy T., Auer H., Bakker H. J., Roskos H. G., Kurz H. THz electromagnetic emission by coherent infrared-active phonons // *Phys. Rev. B.* 1996. — Feb. Vol. 53. P. 4005–4014.
29. Bodrov S. B., Stepanov A. N., Bakunov M. I., Shishkin B. V., Ilyakov I. E., Akhmedzhanov R. A. Highly efficient optical-to-terahertz conversion in a sandwich structure with LiNbO<sub>3</sub> core // *Opt. Express.* 2009. — Feb. Vol. 17, no. 3. P. 1871–1879.
30. Bodrov S. B., Murzanev A. A., Sergeev Y. A., Malkov Y. A., Stepanov A. N. Terahertz generation by tilted-front laser pulses in weakly and strongly nonlinear regimes // *Applied Physics Letters.* 2013. Vol. 103, no. 25. P. 251103.
31. Гинзбург, В.Л., Франк, И.М. Излучение равномерно движущегося электрона, возникающее при его переходе из одной среды в другую // *ЖЭТФ.* 1946. Т. 16. С. 15–28.
32. Аскарьян, Г.А. Черенковское и переходное излучения от электромагнитных волн // *ЖЭТФ.* 1962. Т. 42, № 5. С. 1360.

33. Аскарьян, Г.А. Самофокусировка луча света при возбуждении атомов и молекул среды в луче // Письма ЖЭТФ. 1966. Т. 4. С. 400.
34. Красюк, И.К., Пашинин, П.П., Прохоров, А.М. Исследование пробоя в N<sub>2</sub> под действием пикосекундного импульса излучения лазера на рубине // Письма ЖЭТФ. 1969. Т. 9. С. 581–584.
35. Bloembergen N., Chang R. K., Jha S. S., Lee C. H. Optical Second-Harmonic Generation in Reflection from Media with Inversion Symmetry // Phys. Rev. 1968. — Oct. Vol. 174. P. 813–822.
36. Bloembergen N., Shen Y. Optical nonlinearities of a plasma // Physical Review. 1966. Vol. 141, no. 1. P. 298.
37. Hamster H., Sullivan A., Gordon S., White W., Falcone R. W. Subpicosecond, electromagnetic pulses from intense laser-plasma interaction // Phys. Rev. Lett. 1993. — Oct. Vol. 71. P. 2725–2728.
38. Hamster H., Sullivan A., Gordon S., Falcone R. W. Short-pulse terahertz radiation from high-intensity-laser-produced plasmas // Phys. Rev. E. 1994. — Jan. Vol. 49. P. 671–677.
39. Cheng C.-C., Wright E. M., Moloney J. V. Generation of Electromagnetic Pulses from Plasma Channels Induced by Femtosecond Light Strings // Phys. Rev. Lett. 2001. — Nov. Vol. 87. P. 213001.
40. D'Amico C., Houard A., S. A., Y. L., Le Bloas J., Franco M., Prade B., Couairon A., V.T. T., A. M. Forward THz radiation emission by femtosecond filamentation in gases: theory and experiment // New Journal of Physics. 2008. Vol. 10, no. 1. P. 013015.
41. D'Amico C., Houard A., Franco M., Prade B., Mysyrowicz A., Couairon A., Tikhonchuk V. T. Conical Forward THz Emission from Femtosecond-Laser-Beam Filamentation in Air // Phys. Rev. Lett. 2007. — Jun. Vol. 98. P. 235002.
42. Sprangle P., Penano J., Hafizi B., Kapetanacos C. Ultrashort laser pulses and electromagnetic pulse generation in air and on dielectric surfaces // Phys. Rev. E. 2004. Vol. 69, no. 6. P. 066415.

43. Loeffler T., Jacob F., Roskos H. G. Generation of terahertz pulses by photoionization of electrically biased air // *Appl.Phys. Lett.* 2000. Vol. 77, no. 3.
44. Loeffler T., Roskos H. G. Gas-pressure dependence of terahertz-pulse generation in a laser-generated nitrogen plasma // *Journal of Applied Physics.* 2002. Vol. 91, no. 5.
45. Cook D. J., Hochstrasser R. M. Intense terahertz pulses by four-wave rectification in air // *Opt. Lett.* 2000. — August. Vol. 25, no. 16. P. 1210–1212.
46. Kim K.-Y., Glowina J. H., Taylor A., Rodriguez G. Terahertz emission from ultrafast ionizing air in symmetry-broken laser fields // *Opt. Express.* 2007. — Apr. Vol. 15, no. 8. P. 4577–4584.
47. Dai J., Karpowicz N., Zhang X.-C. Coherent Polarization Control of Terahertz Waves Generated from Two-Color Laser-Induced Gas Plasma // *Phys. Rev. Lett.* 2009. — Jul. Vol. 103. P. 023001.
48. Roskos H., Thomson M., Kress M., Loeffler T. Broadband THz emission from gas plasmas induced by femtosecond optical pulses: From fundamentals to applications // *Laser and Photonics Reviews.* 2007. Vol. 1, no. 4. P. 349–368.
49. Wen H., Lindenberg A. M. Coherent Terahertz Polarization Control through Manipulation of Electron Trajectories // *Phys. Rev. Lett.* 2009. — Jul. Vol. 103. P. 023902.
50. Hilton D. J., Averitt R., Meserole C., Fisher G. L., Funk D. J., Thompson J. D., Taylor A. J. Terahertz emission via ultrashort-pulse excitation of magnetic metal films // *Optics letters.* 2004. Vol. 29, no. 15. P. 1805–1807.
51. Kadlec F., Kužel P., Coutaz J.-L. Optical rectification at metal surfaces // *Optics letters.* 2004. Vol. 29, no. 22. P. 2674–2676.
52. Kadlec F., Kuzel P., Coutaz J.-L. Study of terahertz radiation generated by optical rectification on thin gold films // *Optics letters.* 2005. Vol. 30, no. 11. P. 1402–1404.
53. Jin Y., Ma X., Wagoner G., Alexander M., Zhang X.-C. Anomalous optically generated THz beams from metal/GaAs interfaces // *Applied physics letters.* 1994. Vol. 65, no. 6. P. 682–684.

54. Ramakrishnan G., Planken P. Percolation-enhanced generation of terahertz pulses by optical rectification on ultrathin gold films // *Optics letters*. 2011. Vol. 36, no. 13. P. 2572–2574.
55. Wang F. X., Rodríguez F. J., Albers W. M., Ahorinta R., Sipe J., Kauranen M. Surface and bulk contributions to the second-order nonlinear optical response of a gold film // *Physical Review B*. 2009. Vol. 80, no. 23. P. 233402.
56. McGilp J. Second-harmonic generation at semiconductor and metal surfaces // *Surface Review and Letters*. 1999. Vol. 6, no. 03n04. P. 529–558.
57. Bloembergen N., Chang R. K., Lee C. H. Second-Harmonic Generation of Light in Reflection from Media with Inversion Symmetry // *Phys. Rev. Lett.* 1966.— May. Vol. 16. P. 986–989.
58. Andreev A., Stremoukhov S. Y. Terahertz-radiation generation in the ionization-free regime of light-atom interaction // *Physical Review A*. 2013. Vol. 87, no. 5. P. 053416.
59. Stremoukhov S. Y., Andreev A. V. Spatial variations of the intensity of THz radiation emitted by extended media in two-color laser fields // *Laser Physics Letters*. 2014. Vol. 12, no. 1. P. 015402.
60. Xie X., Dai J., Zhang X.-C. Coherent Control of THz Wave Generation in Ambient Air // *Phys. Rev. Lett.* 2006.— Feb. Vol. 96. P. 075005.
61. Houard A., Liu Y., Prade B., Mysyrowicz A. Polarization analysis of terahertz radiation generated by four-wave mixing in air // *Opt. Lett.* 2008.— Jun. Vol. 33, no. 11. P. 1195–1197.
62. Kress M., Löffler T., Eden S., Thomson M., Roskos H. G. Terahertz-pulse generation by photoionization of air with laser pulses composed of both fundamental and second-harmonic waves // *Opt. Lett.* 2004.— May. Vol. 29, no. 10. P. 1120–1122.
63. Manceau J.-M., Massaouti M., Tzortzakis S. Coherent control of THz pulses polarization from femtosecond laser filaments in gases // *Opt. Express*. 2010.— Aug. Vol. 18, no. 18. P. 18894–18899.

64. Дыхне, А.М., Юдин, Г.Л. «Встряхивание» квантовой системы и характер стимулированных им переходов // Успехи физических наук. 1978. Т. 125, № 7. С. 377–407.
65. Muller H. G., van Linden van den Heuvell H. B., Agostini P., Petite G., Antonetti A., Franco M., Migus A. Multiphoton ionization of xenon with 100-fs laser pulses // Phys. Rev. Lett. 1988. — Feb. Vol. 60. P. 565–568.
66. Corkum P. B., Burnett N. H., Brunel F. Above-threshold ionization in the long-wavelength limit // Phys. Rev. Lett. 1989. — Mar. Vol. 62. P. 1259–1262.
67. Muller H. G., Bucksbaum P. H., Schumacher D. W., Zavriyev A. Above-threshold ionisation with a two-colour laser field // J. Phys. B: Atomic, Molecular and Optical Physics. 1990. Vol. 23, no. 16. P. 2761.
68. Schumacher D. W., Bucksbaum P. H. Phase dependence of intense-field ionization // Phys. Rev. A. 1996. — Nov. Vol. 54. P. 4271–4278.
69. Келдыш, Л.В. Ионизация в поле сильной электромагнитной волны // ЖЭТФ. 1964. Т. 47, № 5. С. 1945–1956.
70. Karpowicz N., Dai J., Lu X., Chen Y., Yamaguchi M., Zhao H., Zhang X.-C., Zhang L., Zhang C., Price-Gallagher M., Fletcher C., Mamer O., Lesimple A., Johnson K. Coherent heterodyne time-domain spectrometry covering the entire “terahertz gap” // Appl. Phys. Lett. 2008. Vol. 92, no. 1. P. 011131.
71. Faisal F. H. Multiple absorption of laser photons by atoms // J. Phys. B: Atomic and Molecular Physics. 1973. Vol. 6, no. 4. P. L89.
72. Reiss H. R. Effect of an intense electromagnetic field on a weakly bound system // Phys. Rev. A. 1980. Vol. 22, no. 5. P. 1786.
73. Аммосов, М.В., Делоне, Н.Б., Крайнов, В.П. Туннельная ионизация сложных атомов и атомарных ионов в переменном электромагнитном поле // ЖЭТФ. 1986. Т. 64, № 6. С. 2008–2013.
74. Переломов, А.М., Попов, В.С., Терентьев, М.В. Ионизация атомов в переменном электрическом поле // ЖЭТФ. 1966. Т. 50. С. 1393.



75. Переломов, А.М., Попов, В.С., Терентьев, М.В. Ионизация атомов в переменном электрическом поле. II. // ЖЭТФ. 1966. Т. 51, № 1(7). С. 309–325.
76. Делоне, Н.Б., Федоров, М.В. Многофотонная ионизация атомов: новые эффекты // Успехи физических наук. 1989. Т. 158, № 6. С. 215–253.
77. Делоне, Н.Б., Крайнов, В.П. Туннельная и надбарьерная ионизация атомов и ионов в поле лазерного излучения // Успехи физических наук. 1998. Т. 168, № 5. С. 531–549.
78. Попов, В.С. Туннельная и многофотонная ионизация атомов и ионов в сильном лазерном поле (теория Келдыша) // Успехи физических наук. 2004. Т. 174, № 9. С. 921–951.
79. Багулов, Д.С., Котельников, И.А. Теория многофотонной и туннельной ионизации в бихроматическом поле // ЖЭТФ. 2013. Т. 143, № 1. С. 26–39.
80. Котельников, И.А., Бородин, А.В., Шкуринов, А.П. Многофотонная ионизация атомов двухцветным лазерным импульсом // ЖЭТФ. 2011. Т. 139. С. 1081–1087. 10.1134/S1063776111050049.
81. Balakin A., Borodin A., Kotelnikov I., Shkurinov A. Terahertz emission from a femtosecond laser focus in a two-color scheme // J. Opt. Soc. Am. B. 2010. — Jan. Vol. 27, no. 1. P. 16–26.
82. Peñano J., Sprangle P., Hafizi B., Gordon D., Serafim P. Terahertz generation in plasmas using two-color laser pulses // Phys. Rev. E. 2010. — Feb. Vol. 81. P. 026407.
83. Kasparian J., Sauerbrey R., Chin S. The critical laser intensity of self-guided light filaments in air // Appl. Phys. B. 2000. Vol. 71, no 6. P. 877–879.
84. Kosareva O., Liu W., Panov N., Bernhardt J., Ji Z., Sharifi M., Li R., Xu Z., Liu J., Wang Z., Ju J., Lu X., Jiang Y., Leng Y. et al. Can we reach very high intensity in air with femtosecond PW laser pulses? // Laser Physics. 2009. Vol. 19, no 8. P. 1776–1792.
85. Bodrov S., Bukin V., Tsarev M., Murzanev A., Garnov S., Aleksandrov N., Stepanov A. Plasma filament investigation by transverse optical interferometry and terahertz scattering // Opt. Express. 2011. — Mar. Vol. 19, no. 7. P. 6829–6835.

86. Théberge F., Liu W., Simard P. T., Becker A., Chin S.-L. Plasma density inside a femtosecond laser filament in air: Strong dependence on external focusing // *Phys. Rev. E*. 2006. — Sep. Vol. 74. P. 036406.
87. Ландау, Л.Д., Лифшиц, Е.М. Теоретическая физика. Квантовая механика. Москва: Физматлит, 2002. С. 808.
88. Borodin A. V., Esaulkov M. N., Kuritsyn I. I., Kotelnikov I. A., Shkurinov A. P. On the role of photoionization in generation of terahertz radiation in the plasma of optical breakdown // *J. Opt. Soc. Am. B*. 2012. — Aug. Vol. 29, no. 8. P. 1911–1919.
89. Панов, Н.А., Косарева, О.Г., Савельев-Трофимов, А.Б., Урюпина, Д.С., Пережогин, И.А., В.А. . Особенности филаментации фемтосекундных импульсов гауссовой формы с эллиптической поляризацией, близкой к линейной или циркулярной // *Квантовая электроника*. 2011. Т. 41, № 2. С. 160–162.
90. Gryaznov G. A., Makarov V. A., Perezhogin I. A., Potravkin N. N. Modeling of nonlinear optical activity in propagation of ultrashort elliptically polarized laser pulses // *Phys. Rev. E*. 2014. — Jan. Vol. 89. P. 013306.
91. Borodin A. V., Panov N. A., Kosareva O. G., Andreeva V. A., Esaulkov M. N., Makarov V. A., Shkurinov A. P., Chin S. L., Zhang X.-C. Transformation of terahertz spectra emitted from dual-frequency femtosecond pulse interaction in gases // *Opt. Lett.* 2013. — Jun. Vol. 38, no. 11. P. 1906–1908.
92. Nibbering E. T. J., Grillon G., Franco M. A., Prade B. S., Mysyrowicz A. Determination of the inertial contribution to the nonlinear refractive index of air, N<sub>2</sub>, and O<sub>2</sub> by use of unfocused high-intensity femtosecond laser pulses // *J. Opt. Soc. Am. B*. 1997. — Mar. Vol. 14, no. 3. P. 650–660.
93. Lorient V., Hertz E., Faucher O., Lavorel B. Measurement of high order Kerr refractive index of major air components // *Opt. Express*. 2009. — Aug. Vol. 17, no. 16. P. 13429–13434.
94. Zheltikov A. M. Raman response function of atmospheric air // *Opt. Lett.* 2007. — Jul. Vol. 32, no. 14. P. 2052–2054.

95. Ho I.-C., Guo X., Zhang X.-C. Design and performance of reflective terahertz air-biased-coherent-detection for time-domain spectroscopy // *Opt. Express*. 2010. — Feb. Vol. 18, no. 3. P. 2872–2883.
96. D'Angelo F., Mics Z., Bonn M., Turchinovich D. Ultra-broadband THz time-domain spectroscopy of common polymers using THz air photonics // *Opt. Express*. 2014. — May. Vol. 22, no. 10. P. 12475–12485.
97. Bartel T., Gaal P., Reimann K., Woerner M., Elsaesser T. Generation of single-cycle THz transients with high electric-field amplitudes // *Opt. Lett.* 2005. — Oct. Vol. 30, no. 20. P. 2805–2807.
98. Vieweg N., Fischer B., Reuter M., Kula P., Dabrowski R., Celik M., Frenking G., Koch M., Jepsen P. U. Ultrabroadband terahertz spectroscopy of a liquid crystal // *Opt. Express*. 2012. Vol. 20, no. 27. P. 28249–28256.
99. Dai J., Zhang X. C. Terahertz wave generation from gas plasma using a phase compensator with attosecond phase-control accuracy // *Appl. Phys. Lett.* 2009. Vol. 94, no. 2. P. 021117–021117–3.
100. Oishi Y., Kaku M., Suda A., Kannari F., Midorikawa K. Generation of extreme ultraviolet continuum radiation driven by a sub-10-fs two-color field // *Opt. Express*. 2006. — Aug. Vol. 14, no. 16. P. 7230–7237.
101. Petersen P. B., Tokmakoff A. Source for ultrafast continuum infrared and terahertz radiation // *Opt. Lett.* 2010. — Jun. Vol. 35, no. 12. P. 1962–1964.
102. Wang W.-M., Sheng Z.-M., Wu H.-C., Chen M., Li C., Zhang J., Mima K. Strong terahertz pulse generation by chirped laser pulses in tenuous gases // *Opt. Express*. 2008. — Oct. Vol. 16, no. 21. P. 16999–17006.
103. Théberge F., Châteauneuf M., Roy G., Mathieu P., Dubois J. Generation of tunable and broadband far-infrared laser pulses during two-color filamentation // *Phys. Rev. A*. 2010. — Mar. Vol. 81. P. 033821.
104. Vvedenskii N. V., Korytin A. I., Kostin V. A., Murzanev A. A., Silaev A. A., Stepanov A. N. Two-Color Laser-Plasma Generation of Terahertz Radiation Using a Fre-

- quency-Tunable Half Harmonic of a Femtosecond Pulse // *Phys. Rev. Lett.* 2014. — Feb. Vol. 112. P. 055004.
105. Wu H.-C., ter Vehn J. M., Sheng Z.-M. Phase-sensitive terahertz emission from gas targets irradiated by few-cycle laser pulses // *New Journal of Physics.* 2008. Vol. 10, no. 4. P. 043001.
106. Silaev A. A., Vvedenskii N. V. Residual-Current Excitation in Plasmas Produced by Few-Cycle Laser Pulses // *Phys. Rev. Lett.* 2009. — Mar. Vol. 102. P. 115005.
107. Kreß M., Löffler T., Thomson M. D., Dörner R., Gimpel H., Zrost K., Ergler T., Moshhammer R., Morgner U., Ullrich J. et al. Determination of the carrier-envelope phase of few-cycle laser pulses with terahertz-emission spectroscopy // *Nature Physics.* 2006. Vol. 2, no. 5. P. 327–331.
108. Kress M., Löffler T., Thomson M., Dörner R., Gimpel H., Zrost K., Ergler T., Moshhammer R., Morgner U., Ullrich J. et al. Few-cycle laser pulses: The carrier-envelope phase, its role in the THz emission from laser-generated plasmas and a new way to measure it // *Acta Physica Polonica Series A.* 2008. Vol. 113, no. 3. P. 769.
109. Wu Q., Zhang X. C. Free-space electro-optic sampling of terahertz beams // *Appl. Phys. Lett.* 1995. Vol. 67, no. 24. P. 3523–3525.
110. Nazarov M. M., Makarova S. A., Shkurinov A. P., Okhotnikov O. G. The use of combination of nonlinear optical materials to control terahertz pulse generation and detection // *Appl. Phys. Lett.* 2008. Vol. 92, no. 2. P. 021114.
111. Cowan M., Ogilvie J., Miller R. Two-dimensional spectroscopy using diffractive optics based phased-locked photon echoes // *Chem. Phys. Lett.* 2004. Vol. 386, no. 1–3. P. 184 – 189.
112. Scherer N. F., Carlson R. J., Matro A., Du M., Ruggiero A. J., Romero-Rochin V., Cina J. A., Fleming G. R., Rice S. A. Fluorescence-detected wave packet interferometry: Time resolved molecular spectroscopy with sequences of femtosecond phase-locked pulses // *The Journal of Chemical Physics.* 1991. Vol. 95, no. 3. P. 1487–1511.

113. Balčiūnas T., Mücke O. D., Mišeikis P., Andriukaitis G., Pugžlys A., Giniūnas L., Danielius R., Holzwarth R., Baltuška A. Carrier envelope phase stabilization of a Yb:KGW laser amplifier // *Opt. Lett.* 2011. — Aug. Vol. 36, no. 16. P. 3242–3244.
114. Shay T. M. Theory of electronically phased coherent beam combination without a reference beam // *Opt. Express.* 2006. — Dec. Vol. 14, no. 25. P. 12188–12195.
115. Денисенко, В.В. ПИД-регуляторы: принципы построения и модификации. Часть 2 // *Современные технологии автоматизации.* 2007. Vol. 1. P. 78 – 89.
116. Денисенко, В.В. ПИД-регуляторы: принципы построения и модификации // *Современные технологии автоматизации.* 2006. Vol. 4. P. 66 – 75.
117. Borodin A. V., Esaulkov M. N., Frolov A. A., Shkurinov A. P., Panchenko V. Y. Possibility of direct estimation of terahertz pulse electric field // *Opt. Lett.* 2014. — Jul. Vol. 39, no. 14. P. 4092–4095.
118. Фролов, А.А., Есаулков, М.Н., Бородин, А., Курицын, А., Шкуринов, А. Теория лазерно-плазменного метода детектирования терагерцового излучения // *ЖЭТФ.* 2012. Vol. 141, no. 6. P. 1027–1040.
119. Karpowicz N., Zhang X.-C. Coherent Terahertz Echo of Tunnel Ionization in Gases // *Phys. Rev. Lett.* 2009. — Mar. Vol. 102. P. 093001.
120. Babushkin I., Skupin S., Husakou A., Köhler C., Cabrera-Granado E., Bergé L., Herrmann J. Tailoring terahertz radiation by controlling tunnel photoionization events in gases // *New Journal of Physics.* 2011. Vol. 13, no. 12. P. 123029.
121. Гладков, С.М., Коротеев, Н.И. Квазирезонансные нелинейные оптические процессы с участием возбужденных и ионизированных атомов // *Успехи физических наук.* 1990. Т. 160, № 7. С. 105–145.
122. Гладков, С.М., Коротеев, Н.И. Квазирезонансные нелинейные оптические процессы с участием возбужденных и ионизированных атомов // *Успехи физических наук.* 1990. Т. 160, № 7. С. 105–145.
123. Stagira S., Priori E., Sansone G., Nisoli M., De Silvestri S., Gadermaier C. Nonlinear guided propagation of few-optical-cycle laser pulses with arbitrary polarization states // *Phys. Rev. A.* 2002. — Sep. Vol. 66. P. 033810.

124. Shan J., Dadap J. I., Heinz T. F. Circularly polarized light in the single-cycle limit: The nature of highly polychromatic radiation of defined polarization // *Opt. Express*. 2009. — Apr. Vol. 17, no. 9. P. 7431–7439.
125. Amer N., Hurlbut W., Norton B. J., Lee Y.-S., Norris T. Generation of terahertz pulses with arbitrary elliptical polarization // *Applied Physics Letters*. 2005. Vol. 87, no. 22. P. 221111–221111–3.
126. Makabe H., Hirota Y., Tani M., Hangyo M. Polarization state measurement of terahertz electromagnetic radiation by three-contact photoconductive antenna // *Opt. Express*. 2007. — Sep. Vol. 15, no. 18. P. 11650–11657.
127. Lu X., Zhang X.-C. Generation of Elliptically Polarized Terahertz Waves from Laser-Induced Plasma with Double Helix Electrodes // *Phys. Rev. Lett.* 2012. — Mar. Vol. 108. P. 123903.
128. Seideman T., Hamilton E. Nonadiabatic Alignment by Intense Pulses. Concepts, Theory, and Directions. 2005. Vol. 52. P. 289 – 329.
129. Blank V., Thomson M. D., Roskos H. G. Spatio-spectral characteristics of ultra-broadband THz emission from two-colour photoexcited gas plasmas and their impact for nonlinear spectroscopy // *New Journal of Physics*. 2013. Vol. 15, no. 7. P. 075023.
130. Weber M. J. Handbook of optical materials. CRC press, 2002. Vol. 19.
131. Fedotov A., Koroteev N., Zheltikov A. Phase-Matching Effects in the Generation of the Third and Fifth Harmonics of Nd: YAG-Laser Radiation in a Low-Temperature Laser-Produced Plasma // *Laser Physics*. 1995. Vol. 5, no. 4. P. 835–840.
132. Zuo P., Fuji T., Suzuki T. Spectral phase transfer to ultrashort UV pulses through four-wave mixing // *Opt. Express*. 2010. — Jul. Vol. 18, no. 15. P. 16183–16192.
133. Kosareva O., Panov N., Volkov R., Andreeva V., Borodin A., Esaulkov M., Chen Y., Marceau C., Makarov V., Shkurinov A., Savel'ev A., Chin S.-L. Analysis of Dual Frequency Interaction in the Filament with the Purpose of Efficiency Control of THz Pulse Generation // *Journal of Infrared, Millimeter and Terahertz Waves*. 2011. Vol. 32. P. 1157–1167.

134. Yuan S., Wang T.-J., Kosareva O., Panov N., Makarov V., Zeng H., Chin S. L. Measurement of birefringence inside a filament // *Phys. Rev. A*. 2011. — Jul. Vol. 84. P. 013838.
135. Fleischer S., Averbukh I. S., Prior Y. Isotope-selective laser molecular alignment // *Phys. Rev. A*. 2006. — Oct. Vol. 74. P. 041403.
136. Lin C. H., Heritage J. P., Gustafson T. K. Susceptibility Echos in Linear Molecular Gases // *Appl. Phys. Lett.* 1971. Vol. 19, no. 10. P. 397–400.
137. Wu J., Cai H., Peng Y., Tong Y., Couairon A., Zeng H. Control of femtosecond filamentation by field-free revivals of molecular alignment // *Laser Physics*. 2009. Vol. 19, no 8. P. 1759–1768.
138. Fleischer S., Zhou Y., Field R. W., Nelson K. A. Molecular Orientation and Alignment by Intense Single-Cycle THz Pulses // *Phys. Rev. Lett.* 2011. — Oct. Vol. 107. P. 163603.
139. Fleischer S., Field R. W., Nelson K. A. Commensurate Two-Quantum Coherences Induced by Time-Delayed THz Fields // *Phys. Rev. Lett.* 2012. — Sep. Vol. 109. P. 123603.
140. You Y. S., Oh T. I., Fallahkhair A. B., Kim K. Y. Alignment-dependent terahertz radiation in two-color photoionization of molecules // *Phys. Rev. A*. 2013. — Mar. Vol. 87. P. 035401.
141. Reiten M. T., Harmon S. A., Cheville R. A. Terahertz beam propagation measured through three-dimensional amplitude profile determination // *J. Opt. Soc. Am. B*. 2003. — Oct. Vol. 20, no. 10. P. 2215–2225.
142. Zhong H., Karpowicz N., Zhang X.-C. Terahertz emission profile from laser-induced air plasma // *Appl. Phys. Lett.* 2006. Vol. 88, no. 26. P. 261103.
143. Горбунов, Л.М., Фролов, А.А. Низкочастотное переходное излучение короткого лазерного импульса на границе плазмы. 2006. Т. 129, № 6. С. 1018–1025.
144. Dem'yanenko M. A., Esaev D. G., Ovsyuk V. N., Fomin B. I., Aseev A. L., Knyazev B. A., Kulipanov G. N., Vinokurov N. A. Microbolometer detector arrays for the infrared and terahertz ranges // *J. Opt. Technol.* 2009. — Dec. Vol. 76, no. 12. P. 739–743.
145. Klarskov P., Strikwerda A. C., Iwaszczuk K., Jepsen P. U. Experimental three-dimensional beam profiling and modeling of a terahertz beam generated from a two-color air plasma // *New Journal of Physics*. 2013. Vol. 15, no. 7. P. 075012.

146. Nomura Y., Shirai H., Ishii K., Tsurumachi N., Voronin A. A., Zheltikov A. M., Fuji T. Phase-stable sub-cycle mid-infrared conical emission from filamentation in gases // Optics express. 2012. Vol. 20, no. 22. P. 24741–24747.
147. Voronin A. A., Nomura Y., Shirai H., Fuji T., Zheltikov A. Half-cycle pulses in the mid-infrared from a two-color laser-induced filament // Applied Physics B. 2014. Vol. 117, no. 2. P. 611–619.
148. Morin F. Oxides which show a metal-to-insulator transition at the Neel temperature // Physical Review Letters. 1959. Vol. 3, no. 1. P. 34–36.
149. Stringer J. The vanadium-oxygen system—a review // Journal of the Less Common Metals. 1965. Vol. 8, no. 1. P. 1–14.
150. Qazilbash M. M., Brehm M., Chae B.-G., Ho P.-C., Andreev G. O., Kim B.-J., Yun S. J., Balatsky A., Maple M., Keilmann F. et al. Mott transition in VO<sub>2</sub> revealed by infrared spectroscopy and nano-imaging // Science. 2007. Vol. 318, no. 5857. P. 1750–1753.
151. Mlyuka N., Kivaisi R. Correlation between optical, electrical and structural properties of vanadium dioxide thin films // Journal of materials science. 2006. Vol. 41, no. 17. P. 5619–5624.
152. Kübler C., Ehrke H., Huber R., Lopez R., Halabica A., Haglund Jr R., Leitenstorfer A. Coherent structural dynamics and electronic correlations during an ultrafast insulator-to-metal phase transition in VO<sub>2</sub> // Physical Review Letters. 2007. Vol. 99, no. 11. P. 116401.
153. Ильинский, А.В., Шадрин, Е.Б. Фазовый переход и корреляционные эффекты в диоксиде ванадия // Физика и техника полупроводников. 2012. Т. 46, № 4.
154. Dumas-Bouchiat F., Champeaux C., Catherinot A., Crunteanu A., Blondy P. rf-microwave switches based on reversible semiconductor-metal transition of VO<sub>2</sub> thin films synthesized by pulsed-laser deposition // Applied Physics Letters. 2007. Vol. 91, no. 22. P. 223505–223505.
155. Chan W. L., Chen H.-T., Taylor A. J., Brener I., Cich M. J., Mittleman D. M. A spatial light modulator for terahertz beams // Applied Physics Letters. 2009. Vol. 94, no. 21. P. 213511.



156. Choi S., Kyoung J., Kim H., Park H., Park D., Kim B.-J., Ahn Y., Rotermund F., Kim H.-T., Ahn K. et al. Nanopattern enabled terahertz all-optical switching on vanadium dioxide thin film // *Applied Physics Letters*. 2011. Vol. 98, no. 7. P. 071105.
157. Kim B.-J., Lee Y. W., Chae B.-G., Yun S. J., Oh S.-Y., Kim H.-T., Lim Y.-S. Temperature dependence of the first-order metal-insulator transition in VO<sub>2</sub> and programmable critical temperature sensor // *Applied physics letters*. 2007. Vol. 90, no. 2. P. 023515–023515.
158. Becker M. F., Buckman A. B., Walser R. M., Lépine T., Georges P., Brun A. Femtosecond laser excitation of the semiconductor-metal phase transition in VO<sub>2</sub> // *Applied Physics Letters*. 1994. Vol. 65, no. 12. P. 1507–1509.
159. Chen C., Wang R., Shang L., Guo C. Gate-field-induced phase transitions in VO<sub>2</sub>: monoclinic metal phase separation and switchable infrared reflections // *Applied Physics Letters*. 2008. Vol. 93, no. 17. P. 171101–171101.
160. Sohn J. I., Joo H. J., Ahn D., Lee H. H., Porter A. E., Kim K., Kang D. J., Welland M. E. Surface-stress-induced Mott transition and nature of associated spatial phase transition in single crystalline VO<sub>2</sub> nanowires // *Nano letters*. 2009. Vol. 9, no. 10. P. 3392–3397.
161. Petrov G., Yakovlev V., Squier J. Nonlinear optical microscopy analysis of ultrafast phase transformation in vanadium dioxide // *Optics letters*. 2002. Vol. 27, no. 8. P. 655–657.
162. Lopez R., Haglund R. F., Feldman L. C., Boatner L. A., Haynes T. E. Optical nonlinearities in VO<sub>2</sub> nanoparticles and thin films // *Applied physics letters*. 2004. Vol. 85, no. 22. P. 5191–5193.
163. Lysenko S., Rua A., Fernandez F., Liu H. Optical nonlinearity and structural dynamics of VO<sub>2</sub> films // *Journal of Applied Physics*. 2009. Vol. 105, no. 4. P. 043502–043502.
164. Lysenko S., Vikhnin V., Rúa A., Fernández F., Liu H. Critical behavior and size effects in light-induced transition of nanostructured VO<sub>2</sub> films // *Physical Review B*. 2010. Vol. 82, no. 20. P. 205425.
165. Qazilbash M. M., Brehm M., Chae B.-G., Ho P.-C., Andreev G. O., Kim B.-J., Yun S. J., Balatsky A., Maple M., Keilmann F. et al. Mott transition in VO<sub>2</sub> revealed by infrared spectroscopy and nano-imaging // *Science*. 2007. Vol. 318, no. 5857. P. 1750–1753.

166. Walther M., Cooke D., Sherstan C., Hajar M., Freeman M., Hegmann F. Terahertz conductivity of thin gold films at the metal-insulator percolation transition // *Physical Review B*. 2007. Vol. 76, no. 12. P. 125408.
167. Qazilbash M., Burch K., Whisler D., Shrekenhamer D., Chae B., Kim H., Basov D. Correlated metallic state of vanadium dioxide // *Physical Review B*. 2006. Vol. 74, no. 20. P. 205118.
168. Shen Y. Surface nonlinear optics: a historical perspective // *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*. 2000. Vol. 6, no. 6. P. 1375–1379.
169. Corn R. M., Higgins D. A. Optical second harmonic generation as a probe of surface chemistry // *Chemical reviews*. 1994. Vol. 94, no. 1. P. 107–125.
170. Abreu E., Liu M., Lu J., West K. G., Kittiwatanakul S., Yin W., Wolf S. A., Averitt R. D. THz spectroscopy of VO<sub>2</sub> epitaxial films: controlling the anisotropic properties through strain engineering // *New Journal of Physics*. 2012. Vol. 14, no. 8. P. 083026.
171. Wall S., Foglia L., Wegkamp D., Appavoo K., Nag J., Haglund Jr R., Stähler J., Wolf M. Tracking the evolution of electronic and structural properties of VO<sub>2</sub> during the ultrafast photoinduced insulator-metal transition // *Physical Review B*. 2013. Vol. 87, no. 11. P. 115126.
172. Schilbe P. Raman scattering in VO<sub>2</sub> // *Physica B: Condensed Matter*. 2002. Vol. 316. P. 600–602.
173. Jepsen P. U., Fischer B. M., Thoman A., Helm H., Suh J., Lopez R., Haglund Jr R. Metal-insulator phase transition in a VO<sub>2</sub> thin film observed with terahertz spectroscopy // *Physical Review B*. 2006. Vol. 74, no. 20. P. 205103.
174. Brassard D., Fourmaux S., Jean-Jacques M., Kieffer J., El Khakani M. Grain size effect on the semiconductor-metal phase transition characteristics of magnetron-sputtered VO<sub>2</sub> thin films // *Applied Physics Letters*. 2005. Vol. 87, no. 5. P. 051910–051910.
175. Zhao Y., Lee J. H., Zhu Y., Nazari M., Chen C., Wang H., Bernussi A., Holtz M., Fan Z. Structural, electrical, and terahertz transmission properties of VO<sub>2</sub> thin films grown on c-, r-, and m-plane sapphire substrates // *Journal of Applied Physics*. 2012. Vol. 111, no. 5. P. 053533.

176. Ningyi Y., Jinhua L., Chan H., Chenglu L. Comparison of VO<sub>2</sub> thin films prepared by inorganic sol-gel and IBED methods // *Applied Physics A*. 2004. Vol. 78, no. 5. P. 777–780.
177. Kim H., You H., Chiarello R., Chang H., Zhang T., Lam D. Finite-size effect on the first-order metal-insulator transition in VO<sub>2</sub> films grown by metal-organic chemical-vapor deposition // *Physical Review B*. 1993. Vol. 47, no. 19. P. 12900.
178. Driscoll T., Palit S., Qazilbash M. M., Brehm M., Keilmann F., Chae B.-G., Yun S.-J., Kim H.-T., Cho S., Jokerst N. M. et al. Dynamic tuning of an infrared hybrid-metamaterial resonance using vanadium dioxide // *Applied Physics Letters*. 2008. Vol. 93, no. 2. P. 024101.
179. Novodvorsky O., Parshina L., Khramova O., Mikhalevskiy V. Properties of the VO<sub>2</sub> films produced by the droplet-free PLD method // *Computational nanotechnology*. 2014. Vol. 1. P. 56–61.
180. Guyot-Sionnest P., Chen W., Shen Y. General considerations on optical second-harmonic generation from surfaces and interfaces // *Physical Review B*. 1986. Vol. 33, no. 12. P. 8254.
181. Vikhnin V., Lysenko S., Rua A., Fernandez F., Liu H. The model of ultrafast light-induced insulator-metal phase transition in VO<sub>2</sub> // *Solid state communications*. 2006. Vol. 137, no. 11. P. 615–620.