

Конкуренция линейных и нелинейных процессов при генерации импульсного терагерцового излучения в кристалле ZnTe

В.Я.Гайворонский, М.М.Назаров, Д.А.Сапожников,
Е.В.Шепелявый, С.А.Шкельнюк, А.П.Шкуринов, А.В.Шуваев

На примере кристалла ZnTe исследована генерация терагерцовых импульсов с помощью оптического выпрямления фемтосекундных лазерных импульсов. Экспериментально обнаружено существенное уменьшение мощности терагерцового излучения при жёсткой фокусировке лазерного излучения в кристалл. Показано, что учёт сопутствующих оптическому выпрямлению конкурирующих процессов двухфотонного поглощения и генерации второй гармоники не позволяет даже качественно описать данный эффект. Предполагается, что наблюдаемое уменьшение мощности терагерцового излучения обусловлено уменьшением размера источника нелинейной поляризации. Определены условия, при которых в кристалле ZnTe может быть получена наиболее эффективная генерация терагерцового излучения.

Ключевые слова: оптическое выпрямление, терагерцовое импульсное излучение, нелинейно-оптические кристаллы.

1. Введение

Терагерцовые частоты ($10^{11} - 10^{13}$ Гц) находятся в малодоступном в настоящее время дальнем ИК диапазоне спектра, который соответствует субмиллиметровым длинам волн [1, 2]. Этот диапазон представляет большой интерес для спектроскопии, поскольку в нём расположены частоты вращательных переходов молекул газов и жидкостей, частоты оптических фононов твердых тел, колебаний сложных биологических молекул и др. Спектроскопия и микроскопия терагерцового диапазона широко используется в биологии, медицине [3] и физике полупроводников. Наряду с непрерывным субмиллиметровым излучением лазеров и ламповых источников, в последние годы широкое применение находит излучение в виде терагерцовых импульсов (ТГИ) [4], получаемое с помощью фемтосекундных лазерных импульсов оптического диапазона. Длительность терагерцового импульса составляет 1–1.5 периода колебаний электромагнитного поля, что соответствует фурье-спектру, простирающемуся от нуля до нескольких терагерц. Отметим, что ширина спектра (на полувысоте) в этом случае сравнима с его центральной частотой, примерно равной 0.7 ТГц, или превышает её.

Существует несколько методов генерации импульсного терагерцового излучения [1, 2, 4]. Первыми в качестве генераторов ТГИ начали применяться дипольные антенны, работающие на основе ключа Остона [5, 6], в которых генерация импульсного излучения обуславливает-

ся нестационарной электронно-дырочной фотопроводимостью полупроводника, возникающей под действием коротких импульсов света [7]. На этом же принципе основана работа фотопроводящей дипольной антенны в качестве детектора ТГИ [5–7]. Отличительной особенностью детектирования ТГИ с помощью антенны [5] либо нелинейного кристалла [8] является возможность непосредственного измерения величины и направления электромагнитного поля ТГИ, что позволяет получить информацию об их амплитуде и фазе и затем вычислить коэффициенты преломления и поглощения исследуемой среды [2].

В средах с оптической нелинейной восприимчивостью второго порядка $\chi^{(2)}$ генерация ТГИ может быть получена при генерации разностной частоты, а в частотно-вырожденном случае – при оптическом выпрямлении [8–10], когда под действием оптического импульсного излучения с большой шириной спектра $\Delta\omega$ в среде на частоте $\Omega \approx \omega_2 - \omega_1 \approx \Delta\omega \ll \omega_{\text{opt}}$ наводится поляризация

$$P_i^{(2)}(\Omega) = \chi_{ijk}^{(2)} \left(\Omega; \omega + \frac{\Delta\omega}{2}, -\omega + \frac{\Delta\omega}{2} \right) \times E_j \left(\omega + \frac{\Delta\omega}{2} \right) E_k \left(\omega - \frac{\Delta\omega}{2} \right). \quad (1)$$

Например, при длительности фемтосекундного лазерного импульса 60 фс и ширине спектра $\Delta\lambda \approx 15 - 30$ нм значения разностной частоты Ω лежат в диапазоне от долей до десятков терагерц. Эффективность генерации ТГИ по мощности в этом случае определяется параметрами фазового синхронизма, нелинейной восприимчивостью и длиной кристалла и составляет $\sim 10^{-6}$ [2, 11, 12].

Настоящая работа посвящена исследованию и оптимизации процесса генерации ТГИ в кристалле ZnTe с ориентацией $\langle 110 \rangle$, который считается сейчас одним из наиболее эффективных материалов для генерации ТГИ при возбуждении последним излучением титан-сапфирового лазера ($\lambda \sim 800$ нм). В отличие от других кристаллов, обладающих большей нелинейной восприимчиво-

С.А.Шкельнюк, А.П.Шкуринов, А.В.Шуваев. Московский государственный университет им. М.В.Ломоносова, физический факультет, Россия, 119992 Москва, Воробьевы горы; e-mail: alex@lasmed.phys.msu.ru

М.М.Назаров, Д.А.Сапожников. Международный учебно-научный лазерный центр МГУ им. М.В.Ломоносова, Россия, 119992 Москва, Воробьевы горы; e-mail: maxim@lasmed.phys.msu.ru

В.Я.Гайворонский, Е.В.Шепелявый. Институт физики НАНУ, Украина, 03028 Киев, просп. Науки, 46

Поступила в редакцию 30 апреля 2004 г., после доработки – 19 ноября 2004 г.

стью, кристалл ZnTe практически прозрачен в области частот 0.1–3 ТГц и в нём хорошо выполняются условия синхронизма для генерации ТГИ [13]: $n_{gr} = n_{ter}$, где $n_{gr} = n_{ph} - \lambda(dn_{ph}/d\lambda)$; $n_{ter} \approx \varepsilon_0^{1/2}$; ε_0 – статическая диэлектрическая восприимчивость; n_{gr} и n_{ph} – показатели преломления для групповой и фазовой скоростей оптического импульса; n_{ter} – показатель преломления в терагерцовом диапазоне. Интерес к линейным и нелинейно-оптическим свойствам ZnTe связан ещё и с тем, что этот кристалл, являясь хорошим электрооптическим материалом, может использоваться не только для генерации, но и для электрооптической регистрации ТГИ [13].

При воздействии мощного лазерного импульса в кристалле ZnTe кроме оптического выпрямления имеют место конкурирующие нелинейно-оптические процессы, такие как генерация второй гармоники (ГВГ) и двухфотонное поглощение (ДФП) [14]. В настоящей работе обнаружено существенное уменьшение мощности ТГИ при точной фокусировке оптического излучения в нелинейно-оптический кристалл и обсуждаются механизмы, описывающие это явление. С помощью метода z-сканирования с открытой апертурой получена оценка коэффициента двухфотонного поглощения и показано, что ДФП и ГВГ не дают существенного вклада в уменьшение эффективности генерации ТГИ при используемой интенсивности лазерного излучения. Исследованы зависимости эффективности генерации ТГИ от мощности, интенсивности и сечения сфокусированного пучка лазерного излучения.

2. Эксперимент

Схема экспериментальной установки представлена на рис.1,а. Источником оптического излучения является фемтосекундный титан-сапфировый лазер с длительностью импульсов 100 фс, частотой их следования 100 МГц, длиной волны, перестраиваемой в диапазоне 730–830 нм, шириной спектра 12 нм и энергией в импульсе 1 нДж. Лазерное излучение фокусируется в кристалл ZnTe, где и генерируются импульсы терагерцового излучения с длительностью около 2 пс (рис.1,б) и шириной спектра до 2.5 ТГц (рис.2). Если не принимать во внимание дисперсию в нелинейном кристалле, то временной профиль ТГИ должен иметь форму второй производной от огибающей оптического импульса [2].

Для регистрации терагерцового излучения использовалась дипольная фотопроводящая антенна [7]. Пробный лазерный импульс фокусировался на антенну в промежуток между двумя проводниками, нанесенными на подложку из арсенида галлия. Измеряемый ТГИ фокусировался кремниевой линзой в область между проводниками с другой стороны антенны (рис.1,а). В эксперименте измерялся возникающий в антенне ток в зависимости от временной задержки Δt между терагерцовым и пробным оптическим импульсами. В дальнейших обсуждениях в качестве амплитуды поля ТГИ принималось максимальное значение временного профиля ТГИ (рис.1,б). С помощью преобразования Фурье из временного профиля ТГИ $E_{ter}(\Delta t)$ вычисляется комплексный спектр ТГИ, содержащий информацию о преломлении и поглощении среды, через которую прошёл ТГИ [15]. Экспериментальная установка позволяла регистрировать сигнал с временным разрешением 100 фс и спектральным разрешением 0.008 ТГц. В качестве альтернативного

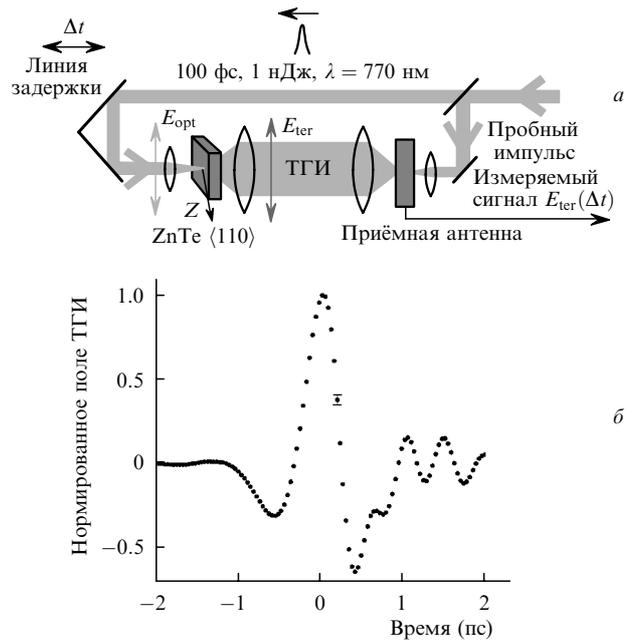


Рис.1. Схема генерации ТГИ и детектирования с помощью дипольной антенны (Z – направление кристаллографической оси; двойные стрелки – направления поляризации оптического и терагерцового полей; коллимирование и фокусировка пучка ТГИ в эксперименте проводятся параболическими зеркалами) (а) и измеренный временной профиль поля терагерцового импульса (генератор – кристалл ZnTe толщиной $d = 2$ мм, длина волны лазера $\lambda = 770$ нм) (б).

детектора ТГИ использовался охлаждаемый гелием болометр (QSiB/2, QMC Instruments Ltd.), измерявший интегральную по спектру мощность ТГИ.

Лазерное излучение, падающее на генератор ТГИ, модулировалось с частотой 1 кГц, и ток антенны (либо болометра) регистрировался синхронным детектором (Lock-in Amplifier SR-810, Stanford Research Systems) на частоте модуляции. Измерялся сигнал, усреднённый за 300 мс.

Образец кристалла ZnTe с ориентацией $\langle 110 \rangle$ имел форму плоскопараллельной квадратной пластины. В работе исследовались два квадратных образца толщиной $d = 2$ и 0.28 мм со стороной квадрата 1 см. Согласно литературным данным для ZnTe ширина запрещенной зоны составляет 2.26 эВ [16], электрооптический коэффициент $r_{14} = 4 \times 10^{-12}$ м/В [17], а типичная концентрация носителей равна $\sim 10^{16}$ см $^{-3}$. Измеренные оптические параметры используемого нами образца кристалла ZnTe приведены в табл.1, где также даны типичные оптические характеристики кристалла, взятые из литературы [1, 13, 17–20]. На рис.2 представлены характерные спектры поглощения, двухфотонной люминесценции, излучения второй гармоники, ТГИ и лазерного излучения на основной частоте ($h\nu = 1.614$ эВ, $\lambda = 770$ нм).

Из-за большого показателя преломления ZnTe ($n = 2.8–3.2$) отражение от каждой грани кристалла составляет $\sim 30\%$ как для оптических, так и для терагерцовых частот, что приводит к уменьшению коэффициента преобразования оптического излучения в ТГИ на 60%. Заметим, что потери из-за отражения можно значительно уменьшить, если нанести просветляющие покрытия для лазерного излучения (на переднюю грань кристалла) и для терагерцового излучения [21] (на заднюю грань кристалла) либо вырезать кристалл под углом Брюстера (72°) к оси $\langle 110 \rangle$.

Табл.1. Параметры кристалла ZnTe ($d = 2$ мм) в оптическом и терагерцовом диапазонах.

Данные	Оптический диапазон ($\lambda = 770$ нм)							
	n_{ph}	n_{gr}	α (см $^{-1}$)	β (см/ГВт)	R_{tot}	T_{tot}	θ (°)	θ_B (°)
Экспериментальные	2.8 ± 0.1	3.27 ± 0.1	2 ± 0.5	20 ± 5	0.37 ± 0.03	0.58 ± 0.05	20	71
Справочные	2.87	3.36	8; 3	4.7				
Данные	Терагерцовый диапазон ($\lambda = 1$ мм – 120 мкм, $\Omega = 0.3 - 2.5$ ТГц)							
	n_{ter}	α (см $^{-1}$)	R_{tot}	T_{tot}	θ (°)	θ_B (°)		
Экспериментальные	3.18 ± 0.05	1–5	0.35 ± 0.03	0.55 ± 0.05	18	73		
Справочные	3.17	1–3						

Примечания: α – коэффициент линейного поглощения; R_{tot} – отношение отражённого среднего поля ТГИ к среднему падающему (усреднение проводится по интервалу времени, много большему периоду переотражения); T_{tot} – отношение полного прошедшего поля ТГИ к среднему падающему; θ – угол полного внутреннего отражения; θ_B – угол Брюстера.

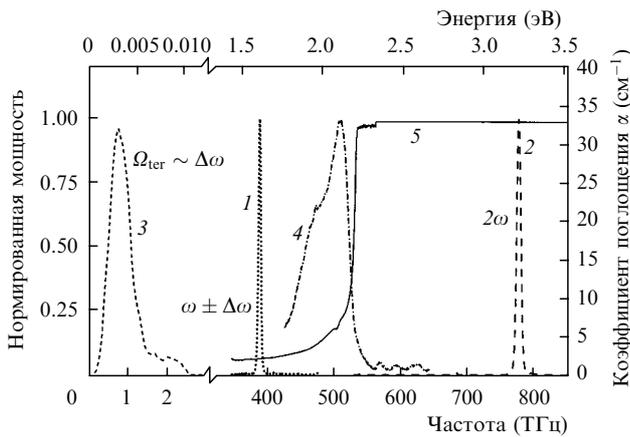


Рис.2. Спектры основного излучения (1), второй гармоники (2), сигнала оптического выпрямления (3) и двухфотонной люминесценции (4), возникающие в кристалле ZnTe под действием излучения с $\lambda = 770$ нм, а также оптический спектр поглощения ZnTe (5).

Максимальная эффективность генерации ТГИ наблюдалась при нормальном падении лазерного пучка на образец, когда угол между осью Z кристалла и направлением поляризации лазерного излучения составлял 54° . При этом направление поляризации ТГИ совпадало с направлением поляризации лазерного излучения (рис.1,а).

В терагерцовой области частот данные о преломлении и поглощении были получены путём обработки комплексных спектров падающего на кристалл и прошедшего через него ТГИ. Измеряя задержку ТГИ при прохождении их через исследуемый образец, можно также определить средний для всего спектра ТГИ показатель преломления. Благодаря малой дисперсии кристалла ZnTe нет существенного различия между групповым и фазовым показателями преломления в этой области частот.

Оценка эффективности процесса нелинейного оптического поглощения была проведена с помощью метода z-сканирования с открытой апертурой [22]. Лазерный пучок фокусировался линзой 1 в образец (рис.3), при этом интенсивность световой волны в образце зависела от расстояния между ним и линзой z и фокусного расстояния линзы f (расстояние между точкой фокусировки и положением перетяжки пучка для используемых линз с $f = 50, 70, 80$ и 180 мм мало и мы им пренебрегаем). Радиус лазерного пучка r_0 (при котором амплитуда поля убывает в e раз) на фокусирующей линзе 1 составил 1 мм, а радиус пучка в перетяжке уменьшался вплоть до $r_{min} = 12$ мкм при $f = 50$ мм. При перемещении исследуемого образца вдоль оптической оси z менялась интенсивность

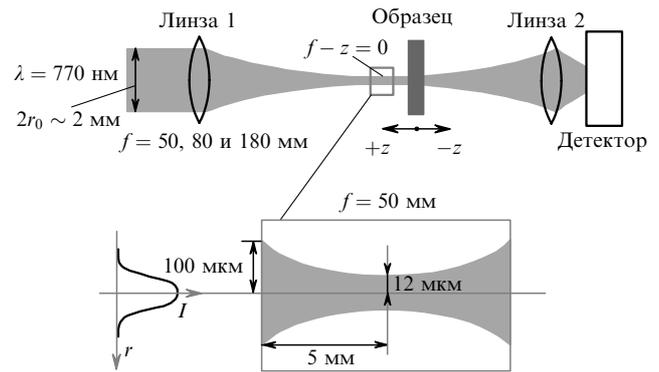


Рис.3. Схема, иллюстрирующая метод z-сканирования.

воздействующего лазерного излучения (она возрастала при уменьшении $|z - f|$). В эксперименте измерялся коэффициент пропускания образца в зависимости от величины $|z - f|$.

Применяя метод z-сканирования в случае генерации ТГИ, мы предполагали, что измерение эффективности генерации ТГИ в зависимости от фокусировки оптического пучка (величина $|z - f|$) позволит исследовать влияние на неё поперечного размера и интенсивности оптического пучка. В отличие от оптического z-сканирования при терагерцовом z-сканировании положения исследуемого кристалла и детектора ТГИ не изменялись, а менялось расстояние между кристаллом и линзой, фокусирующей оптическое излучение, при этом измерялась амплитуда (либо мощность при детектировании болометром) генерируемых ТГИ.

3. Обсуждение результатов

Поскольку эффективность процесса оптического выпрямления (отношение мощностей терагерцового и светового импульсов P_{ter}/P_{opt}) линейно зависит от интенсивности падающего на образец излучения, самый простой, на первый взгляд, способ увеличения мощности ТГИ – это более жёсткая фокусировка лазерного излучения в объём нелинейного кристалла с целью увеличения интенсивности излучения, падающего на генератор ТГИ. Однако данный способ не находит экспериментального подтверждения при сильной фокусировке, когда поперечный размер пучка становится сравнимым с длиной волны терагерцового излучения.

На рис.4 представлена экспериментальная зависимость мощности ТГИ от положения кристалла относительно перетяжки лазерного пучка. Эта зависимость де-

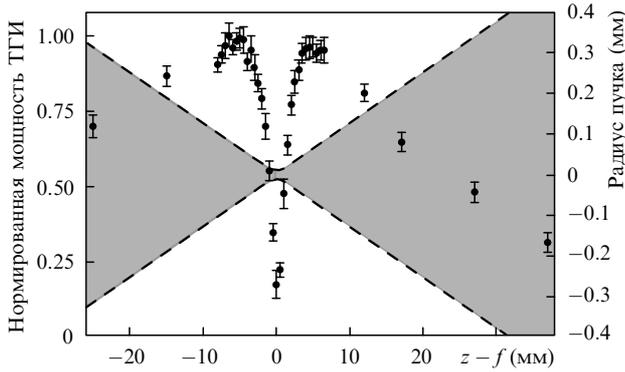


Рис.4. Зависимости мощности терагерцового излучения, измеренной болометром (точки), и радиуса пучка (штриховые линии) от расстояния между центром кристалла и фокусом линзы $z - f$ при толщине кристалла $d = 2$ мм, фокусном расстоянии $f = 80$ мм (длина перетяжки $l_d \sim 1$ мм) и средней мощности лазерного излучения 170 мВт.

монстрирует неожиданный, на первый взгляд, результат: при точной фокусировке излучения в кристалл ZnTe наблюдается существенное уменьшение эффективности генерации ТГИ. Глубокий минимум – « z -провал» при $z - f = 0$ – соответствует максимальной интенсивности лазерного излучения в кристалле ZnTe. Ширина « z -провала» $|z - f|$ сравнима с длиной перетяжки сфокусированного лазерного пучка l_d : $|z - f| \leq l_d = ka^2/2 \sim 1$ мм, где k – волновое число; a – поперечный размер перетяжки пучка излучения. Объяснение этого явления потребовало детальных измерений оптических характеристик кристалла ZnTe, применяемого в качестве генератора ТГИ.

Кристалл ZnTe относится к полупроводниковым материалам [16] и является практически прозрачным в области частот излучения используемого лазера. Край фундаментального поглощения ($E_g = 2.26$ эВ, $\lambda = 550$ нм) мы определили с помощью правила Урбаха. При большой интенсивности падающего излучения на поверхности кристалла ZnTe визуально наблюдается зелено-жёлтое ненаправленное свечение, связанное с люминесценцией в результате ДФП, а также направленное излучение ГВГ, сильно поглощаемое в объёме кристалла.

3.1. Влияние ДФП на эффективность генерации ТГИ

Для качественного анализа экспериментальных данных мы использовали модель нелинейного поглощения излучения на основной частоте. Предполагалось, что ослабление прошедшего излучения происходит вследствие ДФП и ГВГ в объёме кристалла ZnTe. Уравнение, описывающее нелинейное поглощение света в образце, имеет следующий вид:

$$\frac{dI}{dz} = -\alpha I - \beta I^2, \quad (2)$$

где α – коэффициент линейного поглощения; β – коэффициент нелинейного поглощения. Вклад процессов каскадного поглощения, который описывается кубическим по интенсивности членом, в (2) не учитывался.

Влияние процессов ДФП и ГВГ на степень истощения падающего лазерного излучения можно разделить с помощью поляризационных зависимостей, поскольку эффективность ГВГ и ДФП определяется тензорами разного ранга. При максимальном ДФП ($z - f = 0$, $f = 50$ мм) изменялся азимутальный угол φ между осью кристал-

ла Z и направлением поляризации лазерного излучения ($\varphi = 0 - \pi/2$), при этом интенсивность ГВГ изменялась на два порядка, а пропускание основного излучения – менее чем на 6%. Таким образом, влияние ГВГ на ослабление прошедшего излучения незначительно. В полупроводниках при интенсивном фотовозбуждении возможна генерация свободных носителей, появление которых должно значительно увеличивать поглощение ТГИ [23], однако в условиях нашего эксперимента это не играет существенной роли. В дальнейшем будем предполагать, что коэффициент нелинейного поглощения β является скалярной величиной и определяется только ДФП.

Для расчёта интенсивности сфокусированного излучения, падающего на кристалл, были использованы формулы параболического приближения теории дифракции для гауссовых пучков [24] и приближение тонкого ($d = 0.28$ мм) образца. Для импульса с гауссовым распределением интенсивности по времени и поперечной координате выражение для коэффициента пропускания можно получить из уравнения (2) в следующем виде:

$$T = \frac{e^{-\alpha z}}{\sqrt{\pi q}} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\ln(qe^{-t'^2} + 1)}{e^{-t'^2}} dt', \quad (3)$$

где $q = I_0 L_{\text{eff}} \beta$; $t' = t/\tau$ – длительность импульса; $L_{\text{eff}} = (1 - e^{-\alpha d})/\alpha$ – эффективная длина кристалла; $I_0(z) = W_p \times [\pi^{3/2} \tau r^2(z)]^{-1}$ – пиковая интенсивность на оси пучка, которая определялась взаимным расположением линзы и образца; $r^2(z) = r_0^2[(1 - z/f)^2 + (z/l_d)^2]$; $r_0 = 1$ мм – поперечный размер пучка перед линзой; W_p – энергия в импульсе. Учёт длительности импульса в модели приводит к увеличению вычисляемого в эксперименте значения β в несколько раз.

Напомним, что в основе метода z -сканирования лежит анализ зависимости коэффициента пропускания T от координаты линзы z при постоянной мощности P_{opt} . На рис.5,а приведены зависимости коэффициента пропускания при $P_{\text{opt}} \propto W_p = \text{const}$ от расстояния между кристаллом и фокусом линзы, а на рис.5,б – зависимости интенсивности прошедшего излучения от интенсивности падающего при $z = \text{const}$. Сравнение модельной и экспериментальной зависимостей (рис.5,а) позволяет вычислить параметр β .

Влияние интенсивности лазерного излучения на нелинейное поглощение продемонстрировано на рис.5,б. Отличие от линейной зависимости заметно только для толстого образца. Поскольку толстый образец ($d = 2$ мм $> l_d$) не удовлетворяет требованиям модели ДФП и не было учтено каскадное поглощение лазерного излучения, модельная кривая согласуется с экспериментальной только при $\beta = 5.6$ см/ГВт, что в четыре раза меньше корректного значения 20 см/ГВт.

Пространственное распределение интенсивности пучка излучения титан-спирового лазера имеет небольшие отличия от гауссова профиля, что вносит ошибку не более 30% в измерение абсолютных значений β . Вычисленный в данных приближениях коэффициент нелинейного поглощения β используемых кристаллов составляет 20 ± 5 см/ГВт.

Рассмотрим в плосковолновом приближении зависимость мощности ТГИ P_{ter} от расстояния между линзой и кристаллом z с учётом линейного и двухфотонного поглощения. Выражение для мощности ТГИ в случае только линейного поглощения имеет вид

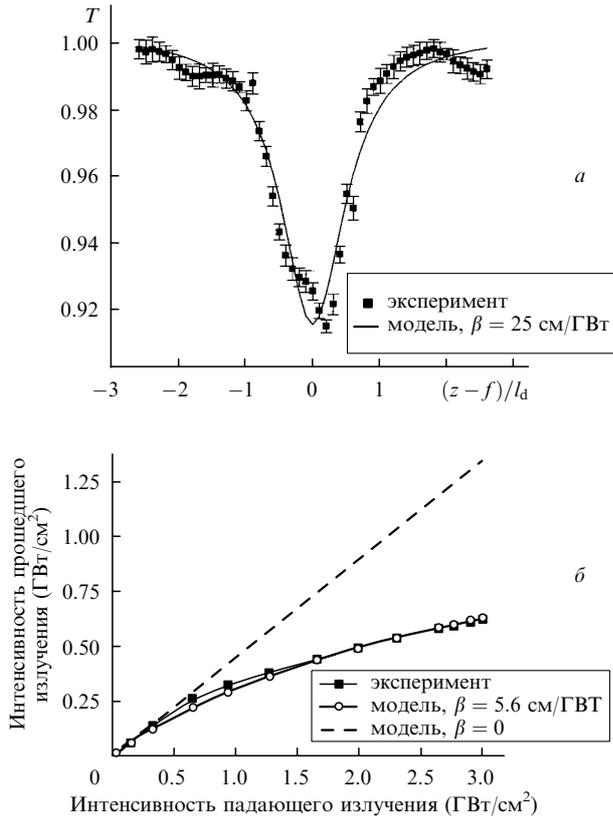


Рис.5. Зависимости коэффициента пропускания T кристалла ZnTe от нормированного расстояния $(z - f)/l_d$ ($f = 180$ мм, $l_d = 4.7$ мм, $\lambda = 770$ нм) для тонкого образца с $d = 0.28$ мм $\ll l_d$ (а) и зависимости интенсивности прошедшего сквозь кристалл, находящийся в перетяжке пучка, лазерного излучения от интенсивности падающего излучения ($f = 70$ мм, $l_d = 1$ мм, $z - f = 0$) для толстого образца с $d = 2$ мм $> l_d$ (б).

$$P_{\text{тер}} \propto d_{14}^2 \frac{1 - e^{-2\alpha d}}{2\alpha\pi^2} \left[\frac{W_p}{\tau r(z)} \right]^2,$$

где $d_{14} \propto \chi^{(2)}$ – нелинейно-оптическая восприимчивость. Зависимость $P_{\text{тер}}(z)$ с учётом линейного и двухфотонного поглощения в виде аналитической формулы может быть получена только для непрерывного лазерного излучения (для импульсного излучения нужно учитывать поправочный коэффициент для $P_{\text{тер}}$):

$$P_{\text{тер}} \propto P_{\text{opt}}^2 \left\{ \left[\frac{I_0(z)\beta + \alpha}{\beta^2} \right] \left[1 - \frac{1}{1 + I_0(z)\beta L_{\text{eff}}} \right] + \frac{\alpha}{\beta^2} \ln \left[\frac{1}{1 + I_0(z)\beta L_{\text{eff}}} \right] \right\} \pi r^2(z). \quad (4)$$

На рис.6,а приведены рассчитанные по формуле (4) зависимости мощности ТГИ от продольной координаты z , в том числе и при $\beta = 0$, когда нелинейное поглощение отсутствует. Вблизи перетяжки лазерного пучка ($|z - f| < l_d$) теоретическая зависимость существенно отличается от экспериментальной. Поэтому уменьшение эффективности генерации ТГИ при росте интенсивности лазерного излучения и одновременном уменьшении поперечного размера пучка не может быть объяснено только влиянием ДФП. Мы предполагаем, что определяющую роль в ослаблении излучения ТГИ играет поперечный размер лазерного пучка (рис.6,б).

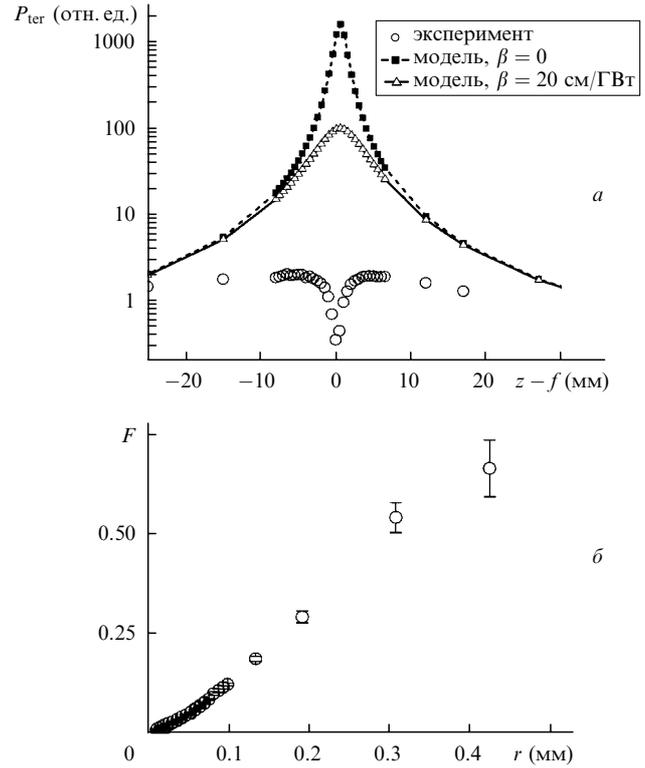


Рис.6. Модельные и экспериментальная зависимости мощности ТГИ от расстояния $z - f$ с учётом линейного и двухфотонного поглощения при $d = 2$ мм (экспериментальные точки соответствуют данным рис.4) (а) и рассчитанная по данным рис.4 зависимость эффективности генерации ТГИ F от поперечного размера лазерного пучка r (б).

3.2. Роль фокусировки основного излучения

Обычно для регистрации ТГИ используют фотопроводящую антенну или схему с электрооптическим детектированием. Оба этих метода позволяют измерять напряжённость поля $E_{\text{тер}}$, в то время как все оптические детекторы и болометр измеряют интенсивность, пропорциональную $E_{\text{тер}}^2$ (или мощность). Это принципиально меняет роль фокусировки лазерного излучения при оптимизации величины измеряемого сигнала ТГИ. Тем не менее при измерении дипольной антенной поля ТГИ так же, как и при измерении болометром мощности ТГИ, наблюдается «z-провал» (рис.7,а).

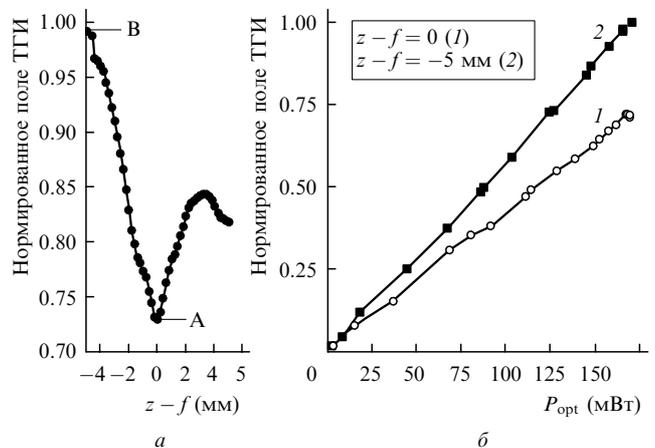


Рис.7. Зависимость от расстояния $z - f$ поля ТГИ, полученная при z-сканировании и измеренная антенной ($d = 2$ мм, $f = 50$ мм) (а), и зависимости поля ТГИ от мощности лазерного излучения для точек А (1) и В (2), указанных на рис.7,а, при $d = 2$ мм, $f = 50$ мм (б).

В оптическом диапазоне в случае нелинейных (квадратичных) процессов, фокусируя основное излучение, можно значительно увеличить измеряемую мощность нелинейного сигнала P_{sig} . Это обусловлено тем, что $I_{sig} \propto (\chi^{(2)} E_{opt}^2)^2$, $E_{opt} \propto (P_{opt}/S)^{1/2}$, $P_{sig} \propto I_{sig} S \propto P_{opt}^2/S$, где P_{opt} – мощность основного излучения; S – площадь поперечного сечения пучка на образце. При фокусировке излучения S уменьшается (на 2–4 порядка) при постоянной мощности P_{opt} , а поскольку $P_{sig} \propto P_{opt}^2/S$, то получается соответствующий выигрыш в измеряемом нелинейном сигнале P_{sig} .

В случае генерации ТГИ с помощью оптического выпрямления ($E_{ter} \propto P_{opt}/S$) и при регистрации поля E_{sig} всего пучка ТГИ дипольной антенной более острая фокусировка лазерного излучения на кристалл-генератор ТГИ (уменьшение S) не должна приводить к возрастанию измеряемого сигнала. Дипольная антенна измеряет поле E_{ter} , а не квадрат поля E_{ter}^2 , поэтому $E_{sig} \propto E_{ter} S \propto P_{opt}$. Возрастание интенсивности I_{opt} компенсируется уменьшением площади пучка S , и измеряемая напряжённость поля ТГИ пропорциональна только мощности падающего оптического излучения P_{opt} и не должна зависеть от фокусировки (от площади S). Только в том случае, когда апертура детектора мала по сравнению с площадью пучка (при измерении локальной напряжённости поля), фокусировка лазерного излучения может привести к незначительному возрастанию измеряемого сигнала.

Чтобы отделить влияние поперечного размера лазерного пучка на эффективность генерации ТГИ от влияния на неё нелинейного поглощения, были измерены энергетические зависимости эффективности генерации ТГИ при постоянных геометрических размерах пучка (рис.7,б). Лазерное излучение ($\lambda = 770$ нм, $P_{opt} = 170$ мВт) фокусировалось линзой с фокусным расстоянием $f = 50$ мм в кристалл ZnTe, и измерялась зависимость максимальной амплитуды поля ТГИ от мощности оптического излучения. Были выполнены два измерения: первое (точка А на рис.7,а) проводилось при $z = z_d$ («z-провал»), когда наблюдался минимум эффективности генерации ТГИ ($z - f = 0$, диаметр перетяжки 24 мкм, $I_{max} = 5$ ГВт/см²), второе (точка В на рис.7,а) – при большой эффективности генерации ТГИ ($z - f = -5$ мм, диаметр перетяжки 200 мкм, $I_{max} = 0.03$ ГВт/см²) вне области «z-провала». При этом регистрировалось интегральное по площади детектора поле (а не мощность) терагерцового излучения как функция мощности падающего лазерного излучения P_{opt} . Напряжённость поля ТГИ линейно зависит от мощности P_{opt} ($E_{ter} \propto E_{opt}^2 \propto P_{opt}$), если роль нелинейного поглощения мала. Оказалось, что обе измеренные кривые на рис.7,б – линейные зависимости от падающей мощности (влияние ДФП даже при нахождении кристалла в перетяжке пучка мало при данных параметрах эксперимента).

Если бы терагерцовый «z-провал» был обусловлен влиянием нелинейных процессов, то экспериментальная кривая 1 на рис.7,б в области больших мощностей должна была бы выходить на насыщение или даже убывать. Насыщение зависимости $E_{ter}(I_{opt})$ должно было бы приводить к сглаживанию максимума зависимости $P_{ter}(z-f)$ (рис.6,а), а локальные минимумы зависимостей $P_{ter}(z-f)$ (рис.6,а) и $E_{ter}(z-f)$ (рис.7,а) в рамках нашего предположения могут проявляться только в случае убывания $E_{ter}(I_{opt})$ при больших мощностях. Поскольку экспериментальные исследования не подтверждают ни насы-

щения, ни убывания $E_{ter}(P_{opt})$ (кривая 1 на рис.7,б) при $z = z_d$, мы делаем вывод, что терагерцовый «z-провал» не является следствием нелинейно-оптических процессов.

3.3. Роль размера источника ТГИ

Рассмотрим роль поперечного размера лазерного пучка (размера источника, области генерации ТГИ). Этот размер должен влиять на расходимость пучка ТГИ и может влиять на эффективность генерации ТГИ. Для определения расходимости терагерцового излучения были измерены диаграммы направленности вблизи кристалла (на расстоянии 32 мм) и вдали от него (на расстоянии 300 мм).

На небольших расстояниях от кристалла диаграмма направленности излучения ТГИ измерялась с помощью диафрагмы с переменным радиусом r_d (рис.8,а). Только центральная часть пучка ТГИ ($r < r_d$) попадала на детектор-антенну. Предполагая, что поперечное распределение поля является гауссовым, и помещая центр диафрагмы на ось пучка ТГИ, можно оценить радиус пучка на диафрагме и угловую расходимость излучения по зависимости амплитуды прошедшего ТГИ от радиуса диафрагмы. Зависимость амплитуды поля E_{ter} от r_d должна иметь вид $E_{ter}(r_d) \propto E_{max} \{1 - \exp[-(r_d/r_0)^2]\}$, при этом мы пренебрегаем дифракцией на диафрагме.

Сравним угловую расходимость излучения для двух положений фокусирующей линзы, соответствующих точ-

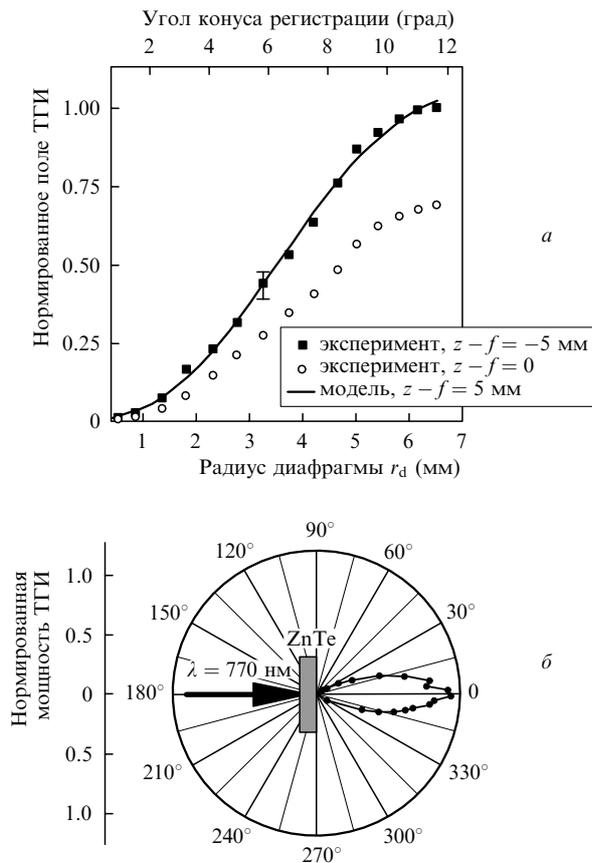


Рис.8. Зависимости амплитуды измеренного антенной поля ТГИ от радиуса диафрагмы r_d для двух положений фокусирующей линзы, $f = 50$ мм и $d = 2$ мм при расположении диафрагмы в пучке ТГИ на расстоянии 32 мм от кристалла ZnTe (а) и диаграмма направленности излучения ТГИ при $z - f = 8$ мм, $f = 80$ мм, $d = 2$ мм, измеренная болометром на расстоянии 300 мм от кристалла ZnTe с угловым разрешением 2° (б).

кам А и В на рис.7,*a*. Модельная кривая для $z - f = 5$ мм представлена на рис.8,*a*. Из сравнения модельных данных с экспериментальными следует, что радиус пучка ТГИ на диафрагме составляет ~ 4.3 мм, что соответствует угловой расходимости $\sim 7.6^\circ$. При фокусировке оптического пучка точно в кристалл, т. е. при $z - f = 0$ (амплитуда прошедшего поля ТГИ уменьшилась на 40%), измеренный радиус пучка составил ~ 4.7 мм, а угловая расходимость возросла до 8.3° (на 9%). Следовательно, увеличение расходимости излучения ТГИ при фокусировке оптического пучка является не единственной причиной значительного ослабления измеряемого сигнала ТГИ.

Более строгое измерение диаграммы направленности излучения ТГИ (рис.8,*b*) проводилось на расстоянии 300 мм от кристалла с помощью болометра, который перемещался вокруг кристалла ZnTe. При этом ($z - f = 8$ мм, $f = 80$ мм) угловая расходимость излучения ТГИ составила 15° .

Отметим, что при фокусировке лазерного излучения в кристалл размер источника излучения ТГИ становится сравнимым с длиной волны терагерцового излучения, расходимость которого при этом должна стремиться к 4π. В нашем случае генерация ТГИ происходит на всей ($d = 2$ мм) толщине кристалла. В ZnTe групповые скорости оптического и терагерцового импульсов практически совпадают ($\Delta n \approx 0.09$) [13] (см. табл.1), длина когерентности при генерации ТГИ составляет ~ 3 мм. Терагерцовое излучение, возникающее в каждой точке z кристалла (излучение от каждой отдельной точки имеет большую расходимость) конструктивно интерферирует только в направлении распространения оптического импульса. Эта интерференция и определяет результирующую направленность терагерцового излучения, возникающего в объёме кристалла ZnTe. Таким образом, волновой фронт терагерцового излучения на выходе из кристалла при наших параметрах эксперимента сравним с волновым фронтом основного (сфокусированного лазерного) излучения. Однако при распространении в свободном пространстве согласно законам дифракции пучок ТГИ расходится сильнее оптического, поскольку $\lambda_{\text{тер}} \gg \lambda_{\text{опт}}$. Дифракционная расходимость пучка ТГИ является одним из факторов, ограничивающих целесообразность фокусировки основного излучения.

3.4. Зависимость мощности ТГИ от поперечного размера пучка

Мы полагаем, что в том случае, когда поперечный размер источника ТГИ (диаметр перетяжки 20–100 мкм) становится меньше длины излучаемой волны $\lambda_{\text{тер}} = 300$ мкм, эффективность генерации ТГИ уменьшается при уменьшении размера источника из-за большего влияния дифракции. Подобное уменьшение эффективности генерации ТГИ наблюдали авторы [25]. В этой работе экспериментальное ослабление эффективности при уменьшении размера источника хорошо описывается известной теорией дифракции Бете [26] для прохождения волн через апертуру, диаметр которой много меньше длины волны.

Построим приближённую (пренебрегая расходимостью и дисперсией) феноменологическую модель зависимости мощности ТГИ от поперечного размера лазерного пучка. Предположим, что $P_{\text{тер}}(I_{\text{опт}}, r) \sim g(I_{\text{опт}})F(r)$, где $g(I_{\text{опт}})$ – функция, характеризующая распределение ла-

зерной интенсивности в кристалле; $F(r)$ – функция, определяющая зависимость эффективности генерации ТГИ только от поперечного размера пучка в кристалле. Зависимость $g(I_{\text{опт}})$ описывается формулой (4) и учитывает изменение интенсивности лазерного излучения вследствие нелинейного поглощения и фокусировки, зависимость $P_{\text{тер}}(I_{\text{опт}}, r)$ измерена экспериментально. Из этих данных определяется искомая функция $F(r)$. На рис.6,*b* представлена полученная по данным рис.4 функция $F(r)$. Видно, что в рамках принятой модели с уменьшением поперечного размера лазерного пучка в кристалле ZnTe мощность ТГИ уменьшается относительно той их мощности, которая могла бы быть при действующих интенсивностях лазерного излучения.

Ещё один фактор, влияющий на величину измеряемого сигнала ТГИ, – это апертура детектора. В наших экспериментах использовалась детектирующая антенна с эффективной входной апертурой радиусом $r_a \approx 2$ мм. Если поперечный размер оптического пучка $r_{\text{опт}}$ и соответственно размер пучка ТГИ в кристалле ZnTe больше этой величины ($r_{\text{опт}} > r_a$), то не всё поле ТГИ участвует в образовании детектируемого сигнала. Поэтому для регистрации максимального сигнала ТГИ необходимо, чтобы поперечный размер оптического пучка в кристалле был меньше эффективной апертуры антенны, но больше длины волны терагерцового излучения: $r_a \gg r_{\text{опт}} \gg \lambda_{\text{тер}}$. Передвигая фокусирующую линзу вдоль оси z , удобно оптимизировать поперечный размер лазерного пучка в кристалле и тем самым настроиться на максимальный сигнал ТГИ.

4. Заключение

Таким образом, в данной работе экспериментально исследован процесс генерации терагерцового импульсного излучения в нелинейно-оптическом кристалле ZnTe за счёт механизма оптического выпрямления. Обнаружено существенное уменьшение мощности ТГИ при точной фокусировке фемтосекундного излучения в кристалл. Показано, что для оптимального использования кристалла ZnTe в качестве генератора ТГИ следует принимать во внимание следующие обстоятельства:

- Фокусировка лазерного излучения в нелинейный кристалл оправдана лишь тогда, когда поперечный размер перетяжки пучка больше длины волны ТГИ, составляющей приблизительно 300 мкм. При более жёсткой фокусировке происходит существенное уменьшение мощности ТГИ. Максимальная эффективность генерации ТГИ достигается, когда расстояние от линзы до кристалла z меньше фокусного расстояния линзы f . Фокусировка лазерного излучения на генератор ТГИ несомненно оправдана в трёх случаях: при измерении мощности, а не напряжённости поля ТГИ, при малом размере апертуры детектора и при малом размере генератора ТГИ.

- Уменьшение мощности терагерцового излучения при точной фокусировке лазерного пучка в кристалл не является результатом нелинейного поглощения и других процессов, эффективность которых пропорциональна интенсивности оптического излучения. При этом сопутствующие генерации ТГИ процессы, такие как ДФП и ГВГ, не оказывают существенного влияния при пиковых интенсивностях основного излучения, меньших $3-5$ ГВт \times см $^{-2}$. Однако, основываясь на коэффициенте ДФП, измеренном в настоящей работе ($\beta = 20 \pm 5$ см/ГВт), можно

полагать, что при большей пиковой интенсивности основного излучения ДФП может ограничивать эффективность преобразования в ТГИ и даже приводить к оптическому пробое кристалла.

Авторы выражают благодарность В.В.Кочаровскому и В.В.Шувалову за плодотворное обсуждение результатов, И.А.Ожередову и А.В.Балакину за помощь в экспериментах. Работа выполнена при частичной финансовой поддержке РФФИ (гранты № 04-02-17354-а и 04-02-16866) и научной программы «Университеты России».

1. Leitenstorfer A., Hunsche S., Shah J., Nuss M.C., Knox W.H. *Appl. Phys. Lett.*, **74**, 1516 (1999).
2. Xu L., Zhang X.-C., Auston D. *Appl. Phys. Lett.*, **61**, 1784 (1992).
3. Ferguson B., Wang S., Gray D., Abbot D., Zhang X.-C. *Opt. Lett.*, **27**, 1312 (2002).
4. Auston D.H., Cheung K.P., Valdmanis J.A., Kleinman D.A. *Phys. Rev. Lett.*, **53**, 1555 (1984).
5. Auston D.H. *Appl. Phys. Lett.*, **26**, 101 (1975).
6. Zhang X.-C., Auston D.H. *J. Electron. Wave Appl.*, **6**, 85 (1992).
7. Van Exter M., Grischkowsky D.R. *IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques*, **38**, 1684 (1990).
8. Grischkowsky D., in *Frontiers in Nonlinear Optics*. Ed. by H. Walther, N. Koroteev, M.O. Scully (Philadelphia, Institute of Physics, 1993, p. 196).
9. Абдулин У.А., Ляхов Г.А., Руденко О.В., Чиркин А.С. *ЖЭТФ*, **66**, 1295 (1974).
10. Аристов В.В., Цырульников Д.А. *Квантовая электроника*, **25**, 1118 (1998).
11. Ding Y., Zotova I. *Opt. Quantum Electron.*, **32**, 531 (2000).
12. Cote D., Sipe J.I., Driel H.M. *J. Opt. Soc. Am. B*, **20**, 1374 (2003).
13. Nahata A., Weiling A.S., Heintz T.F. *Appl. Phys. Lett.*, **69**, 2321 (1996).
14. Nazarov M.M., Sapozhnikov D.A., Shkelnyuk S.A., Shuvaev A.V., Shkurinov A.P. *Proc. Joint XXIX Int. Conf. on Infrared and Millimeter Waves and XII Int. Conf. on Terahertz Electronics* (University of Karlsruhe, Germany, 2004, p. 359).
15. Duvillaret L., Garet F., Coutaz J.-L. *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, **2**, 739 (1996).
16. Schall M., Jepsen P.U. *Appl. Phys. Lett.*, **80**, 4771 (2002).
17. *Физические величины. Справочник*. Под ред. И.С.Григорьева, Е.З.Мейлихова (М.: Энергтоиздат, 1991, с. 864, 883, 893).
18. Bechtel J.H., Smith W.L. *Phys. Rev. B*, **13**, 3515 (1976).
19. Yin M., Li H.P., Tang S.H., Ji W. *Appl. Phys. B*, **70**, 587 (2000).
20. Gallot G., Zang J., McGowan R.W., Jeon T.I., Grishkowsky D. *Appl. Phys. Lett.*, **74**, 3450 (1999).
21. Kröll J., Darro J., Unterrainer K. *Proc. Joint XXIX Int. Conf. on Infrared and Millimeter Waves and XII Int. Conf. on Terahertz Electronics* (University of Karlsruhe, Germany, 2004, p. 465).
22. Eriksson A., Lindgren M., Svensson S., Arntzen P.-O. *J. Opt. Soc. Am. B*, **15**, 810 (1998).
23. Tiedje H.F., Haugen H.K., Preston J.S. *Proc. Joint XXIX Int. Conf. on Infrared and Millimeter Waves and XII Int. Conf. on Terahertz Electronics* (University of Karlsruhe, Germany, 2004, p. 363).
24. Никитин С.Ю., Ахманов С.А. *Физическая оптика* (М.: Изд-во МГУ, 1998).
25. Xu J.Z., Zang X.-C. *Opt. Lett.*, **27**, 1067 (2002).
26. Bethe H.A. *Phys. Rev.*, **66**, 163 (1944).