На правах рукописи

БОРОДИН АЛЕКСАНДР ВАЛЕРЬЕВИЧ

ГЕНЕРАЦИЯ ТЕРАГЕРЦОВОГО ИЗЛУЧЕНИЯ ДВУМЯ ФЕМТОСЕКУНДНЫМИ ЛАЗЕРНЫМИ ИМПУЛЬСАМИ С РАЗЛИЧНЫМИ ЧАСТОТАМИ В УСЛОВИЯХ ОПТИЧЕСКОГО ПРОБОЯ ГАЗОВЫХ СРЕД

01.04.05 – оптика

АВТОРЕФЕРАТ

на соискание ученой степени кандидата

физико-математических наук

Москва – 2013

Работа выполнена на физическом факультете Федерального государственного бюджетного образовательного учреждения высшего профессионального образования «Московский государственный университет имени М.В.Ломоносова».

Научный руководитель:

доктор физико-математических наук, доцент Федерального государственного бюджетного образовательного учреждения высшего профессионального образования «Московский государственный университет имени М.В.Ломоносова»

Шкуринов Александр Павлович

Официальные оппоненты:

доктор физико-математических наук, заведующий отделом субмиллиметровой спектроскопии в Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Институте общей физики им. А.М. Прохорова Российской академии наук

Волков Александр Александрович

кандидат физико-математических наук, научный сотрудник в Федеральном государственном бюджетном образовательном учреждении высшего профессионального образования «Нижегородский государственный университет имени Н.И.Лобачевского» **Царев Максим Владимирович**

Ведущая организация:

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Объединенный институт высоких температур Российской академии наук.

Защита диссертации состоится «_19_»__декабря__ 2013 г. в 17^{30} часов на заседании диссертационного совета Д 501.001.67 в Федеральном государственном бюджетном образовательном учреждении высшего профессионального образования «Московский государственный университет имени М.В.Ломоносова» по адресу: 119991, г. Москва, Ленинские горы, д. 1, стр. 2, Физический факультет, физическая аудитория имени академика Р.В.Хохлова.

С диссертацией можно ознакомиться в фундаментальной научной библиотеке Федерального государственного бюджетного образовательного учреждения высшего профессионального образования «Московский государственный университет имени М.В.Ломоносова» .

Автореферат разослан «___» _____ 2013г.

Ученый секретарь
диссертационного совета Королев А. Ф.

1. Общая характеристика работы

Диссертационная работа посвящена изучению импульсного низкочастотного излучения в терагерцовом диапазоне частот (0,1-10 ТГц), возникающего при когерентном взаимодействии фемтосекундных лазерных импульсов на различных частотах с газовыми средами в условиях оптического пробоя и формирования филамента [1-4]. Обсуждаются основные физические механизмы и вклады в процесс генерации излучения, учет которых позволяет описать его свойства. Рассматривается частный случай многочастотного взаимодействия – «вырожденное» по частоте, когда взаимодействуют излучения на основной частоте и на частоте второй гармоники.

1.1. Актуальность темы. Несмотря на малые [5], по сравнению с твердыми телами, значения эффективности нелинейно-оптических процессов в газовых средах их использование позволяет получать импульсное терагерцовое излучение (ТГИ) с уникальными свойствами. Во-первых, это предельно широкий спектр, ограниченный исключительно обратной длительностью фемтосекундного лазерного импульса. Во-вторых, для преобразования оптического излучения в терагерцовый диапазон частот в целях достижения больших напряженностей полей ТГц импульсов, в газовых средах можно применять лазерные импульсы с интенсивностями выше порогов пробоя нелинейно-оптических кристаллов и полупроводниковых антенн (10^{13}-10^{14} Вт/см^2). При этом, появление оптического пробоя приводит к генерации лазерной плазмы и фемтосекундного филамента, что в свою очередь способствует усилению ТГц поля. Когерентный характер нескольких процессов, аддитивно складывающихся при взаимодействии одного или нескольких фемтосекундных импульсов с газовой средой в условиях оптического пробоя, приводит к существенному возрастанию эффективности преобразования оптического излучения в ТГц диапазон и формированию терагерцовых импульсов, амплитуда напряженности поля которых может достигать сотен кВ/см [6].

Хотя первые работы по преобразованию оптического излучения в терагерцовый диапазон частот относятся еще к 60-м годам 20 века [7, 8], систематического исследования основных механизмов и предельных возможностей этого метода преобразования до настоящего времени проведено не было. В особенности это относится к процессу генерации ТГИ оптическими импульсами с предельно-короткими длительностями (10-200 фс). В связи с этим актуальными являются нижеследующие вопросы, которые и предстояло исследовать в рамках выполнения настоящей диссертационной работы.

Во-первых, важным является исследование основных физических механизмов, которые определяют свойства низкочастотного излучения терагерцового диапазона

частот. Предварительные исследования и ранние публикации показывают, что при создании общей модели процесса генерации ТГИ необходимо учитывать, по крайней мере, нелинейно-оптические свойства нейтральных атомов и молекул среды в основном и возбужденном электронном состояниях, а также процессы многофотонной и туннельной фотоионизации [9]. Систематическое исследование роли различных механизмов генерации как в отдельности, так и в их взаимодействии ранее не проводилось.

Во-вторых, одновременно с задачей генерации широкополосного ТГИ возникает задача его адекватной регистрации. Для этого требуется детектор, чьи характеристики, такие как аппаратная функция, динамический диапазон и др. будут, по крайней мере, эквивалентны соответствующим характеристикам генератора ТГИ на основе газовых сред. До начала выполнения настоящей работы были хорошо изучены методы детектирования импульсного ТГИ в нелинейно-оптических кристаллах, чья спектральная чувствительность принципиально ограничена фононными линиями поглощения, расположенными в районе 5 ТГц [10]. Отсутствие фононного поглощения в газовых средах позволяет предполагать, что они потенциально обладают более широкой спектральной шириной регистрации. При этом, наличие различных механизмов взаимодействия ТГц импульса с газовой средой в присутствии фемтосекундного лазерного импульса и статического электрического поля, которые влияют на достоверность регистрации, динамический диапазон и т.п. ранее рассмотрены не были.

В-третьих, развитие техники генерации и регистрации излучения, в том числе и в терагерцовом диапазоне частот, как правило, предполагает, но не всегда гарантирует, возможность создания на их основе спектроскопических методик и спектроскопической аппаратуры. Поэтому, несомненно, актуальным является исследование применимости новых методов генерации и детектирования для задач спектроскопии.

Исходя из актуальности постановки задачи, в работе были поставлены следующие цели:

1.2. Цели работы

1. Реализация метода генерации низкочастотного излучения в терагерцовом диапазоне частот, возникающего при когерентном многочастотном взаимодействии нескольких фемтосекундных лазерных импульсов с различными частотами и поляризациями с газовыми средами в условиях оптического пробоя. Определение оптимальных параметров для достижения наибольшей эффективности преобразования.

2. Реализация метода когерентной регистрации импульсного излучения в терагерцовом диапазоне частот при его нелинейно-оптическом преобразовании в видимый диапазон частот. Оценка достоверности и информативности метода.

3. Применение техники широкополосной генерации и регистрации терагерцового излучения и построение на их базе полностью газово-плазменных спектрометров для исследования молекул и кристаллов.

Для достижения целей были решены следующие задачи:

1. Создание экспериментальной техники, использующей высокоинтенсивные (10^{13} - 10^{14} Вт/см^2) фемтосекундные лазерные импульсы с высокой частотой повторения (1 кГц) для исследования процессов генерации и регистрации импульсного ТГц излучения в условиях оптического пробоя.

2. Проведение комплексного исследования частотных и пространственных характеристик низкочастотного излучения, формирующегося при взаимодействии фемтосекундных лазерных импульсов на различных частотах в газовых средах в условиях оптического пробоя и формирования фемтосекундного филамента, с целью изучения основных механизмов генерации ТГИ.

3. Предложение, исходя из экспериментальных данных, и апробация теоретической модели процесса генерации ТГИ, которая учитывает различные аддитивные вклады в импульсный низкочастотный сигнал. Исследование влияния ионизации газовой среды на процесс генерации и свойства низкочастотного излучения терагерцового диапазона частот.

4. Определение практических параметров (чувствительность, линейность, достоверность и др.) детектора ТГИ, использующего для регистрации процесс преобразования импульсного ТГц сигнала в видимый диапазон путем его нелинейно-оптического смешения с импульсом фемтосекундной длительности на основной частоте.

1.3. Научная новизна работы

1. Проведено систематическое исследование свойств низкочастотного излучения в терагерцовом диапазоне частот, генерируемого в фемтосекундном филаменте. Разработаны теоретические подходы к описанию его свойств на основании которых предложены методы оптимизации параметров излучения и управления ими. К этим параметрам относятся напряженность поля ТГц импульса, его поляризация, диаграмма направленности и спектр излучения.

2. Проведено теоретическое описание и экспериментальное исследование процесса преобразования терагерцового излучения в видимый диапазон путем его нелинейно-оптического смешения в газовой среде (генерация второй оптической гармоники) с фемтосекундным импульсным излучением. Предложена и реализована

методика регистрации импульсного терагерцового излучения путем измерения амплитуды второй оптической гармоники, оценена достоверность и информативность применения этой методики.

3. Разработаны методики и практические подходы для исследования пространственного распределения и оценки напряженности поля низкочастотного излучения в терагерцовом диапазоне частот, генерируемого в фемтосекундном филаменте.

4. На основе разработанной техники генерации и детектирования терагерцового излучения в газах создан широкополосный терагерцовый спектрометр, который использован для исследования сложных биологических молекул.

1.4. Практическая значимость работы.

Результаты диссертационной работы открывают новое направление в технике генерации импульсного терагерцового излучения с предельно широким спектром, ограниченным только обратной длительностью фемтосекундного импульса. Показана принципиальная возможность управления параметрами этого излучения, такими как его спектральный состав, амплитуда поля и поляризация. Предложен метод оценки значения напряжённости поля терагерцового импульса. Показана возможность создания спектроскопической техники, которая применяет разработанные методики генерации и регистрации ТГц излучения для исследования сложных биологических молекул.

1.5. Положения, выносимые на защиту.

1. При использовании для генерации терагерцового излучения в газовых средах комбинации двух импульсов на основной частоте и частоте второй гармоники, эффективность генерации увеличивается, что обусловлено возрастанием скорости многофотонной ионизации и увеличением начального импульса электронов при ионизации атомов. Показано, что скорость ионизации максимальна при разности фаз ψ между лазерными импульсами накачки на основной частоте и частоте второй гармоники кратной π. Показано также, что начальный импульс электронов достигает максимального значения при $\psi=\pi/2$. Вклад связанных электронов в ТГц сигнал максимален при $\psi=2\pi$.

2. Импульсное терагерцовое излучение, которое является результатом взаимодействия двух фемтосекундных лазерных импульсов на основной частоте и частоте второй гармоники с плазмой оптического пробоя, обусловлено суперпозицией нескольких независимых, но равноправных вкладов, доминирующими из которых являются нестационарный фототок электронов и нелинейная поляризация нейтральных атомов среды. Спектр излучения, определяемый нелинейным откликом нейтральных атомов газа, имеет максимум спектральной плотности мощности

излучения на частоте ν_{max}, которая обратно пропорциональна первой степени длительности лазерного импульса. При этом спектральный вклад излучения, вызванный нестационарным фототоком, имеет максимум спектральной плотности мощности излучения на частоте ν_{max}, которая обратно пропорциональна корню квадратному из длительности лазерного импульса.

3. Временной профиль ТГц импульса может быть восстановлен по временному профилю энергии второй гармоники (ВГ) лазерного импульсного излучения, генерируемой при нелинейном взаимодействии лазерного и терагерцового импульсов в присутствии постоянного поля в плазме оптического пробоя газовых сред фемтосекундыми лазерными импульсами. Свойства ВГ определяются суперпозицией нескольких независимых, но равноправных вкладов, доминирующими из которых являются нестационарный фототок электронов и нелинейная поляризация нейтральных атомов среды. Нелинейно-оптический вклад нейтральных атомов среды во временной профиль энергии ВГ определяется полем ТГц импульса, а в случае нестационарного фототока - интегралом по времени от временного профиля электрического поля терагерцового импульса.

1.6. Апробация работы. Основные положения диссертационной работы докладывались и обсуждались на следующих конференциях: Первый международный симпозиум «Терагерцовое излучение: генерация и применение», Новосибирск, 26 июля-1 августа 2010 г.; Восьмой Международный семинар «Strong Microwaves and Terahertz Waves: Sources and Applications», Нижний Новгород, 9-16 июля 2011 г.; Международный семинар «International Workshop on Physics and Mathematics», Hangzhou (P.R. China), 26-28 июля 2011 г.; 19-ая Международная конференция «Advanced Laser Technologies», Golden Sands (Bulgaria), 3-8 сентября 2011 г.; Первая Российско-китайская школа-семинар по лазерной физике, Суздаль, 23-28 сентября 2011 г.; Второй международный симпозиум «Терагерцовое излучение: генерация и применение», Москва, 20-22 июня 2012 г.; 20-ая Международная конференция «Advanced Laser Technologies», Thun (Switzerland), 2-6 сентября 2012 г.; 37-ая Международная конференция «International Conference on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves», Wollongong (Australia), 23-28 сентября 2012 г.

Содержание диссертации полностью отражено в 15 опубликованных работах (из них 7 статей в реферируемых журналах, входящих в список ВАК).

1.7. Степень достоверности полученных результатов экспериментальных исследований, проведенных в рамках настоящей диссертационной работы, определяется их согласием с экспериментальными данными, полученными в других научных центрах: в группах профессора Х. Жанга (Институт Оптики университет Рочестер, США), профессора Х. Роскоса (Институт физики, Университет имени И.В.

Гете, Франкфурт на Майне, Германия), профессора Г. Родригеза (Национальная лаборатория, Лос-Аламос, США), профессора А. Линденберга (Университет Стэнфорд, США) и др. Результаты экспериментальных исследований сопровождаются теоретической интерпретацией, созданной в сотрудничестве с теоретическими группами профессора В.П.Кандидова и д.ф.-м.н. О.Г. Косаревой (Физический факультет МГУ имени М.В.Ломоносова), д.ф.-м.н. А.А. Фролова (Объединенный институт высоких температур РАН, Москва, Россия) и профессора И.А. Котельникова (Институт ядерной физики имени Г.И. Будкера СО РАН, Новосибирск, Россия).

1.8. Структура и объем работы. Диссертация состоит из введения, трех оригинальных глав, заключения и списка цитируемой литературы. Объем работы составляет 105 страниц, 35 рисунков, 2 таблиц. Список цитируемой литературы содержит 70 наименований.

1.9.Личный вклад автора. Все экспериментальные результаты, изложенные в диссертационной работе, получены ее автором лично или при его непосредственном участии. Автор диссертационной работы участвовал в постановке теоретических задач, направленных на интерпретацию полученных в работе результатов.

2. Содержание диссертационной работы

Во **Введении** рассматриваются основы генерации и регистрации импульсного терагерцового излучения в газовых-плазменных средах, приводится обзор литературы по генерации ТГИ, формирующегося в условиях оптического пробоя газовых сред фемтосекундными лазерными импульсами. Существенное внимание уделяется описание основных физических механизмов, которые используются в литературе для описания генерации низкочастотного излучения. Приводится сравнение параметров спектрометров созданных на основе газово-плазменных методов и описанных в литературе с ранее созданными оптоэлектронными системами на базе нелинейных кристаллов и полупроводниковых антенн. Во введении определены цели и задачи диссертационной работы, сформулированы научная новизна, ее практическая ценность и защищаемые положения.

Глава 1. Генерация низкочастотного терагерцового излучения в условиях оптического пробоя газовых сред двумя фемтосекундными лазерными импульсами.

В данной главе описан метод генерации низкочастотного излучения в терагерцовом диапазоне частот, возникающего при когерентном многочастотном взаимодействии нескольких фемтосекундных лазерных импульсов с различными частотами и поляризациями с газовыми средами в условиях оптического пробоя и формирования филамента. Определены оптимальные параметры для достижения

наибольшей эффективности оптико-терагерцовой конверсии. Исследуются пространственные и частотные характеристики ТГИ.

В параграфе 1.1 описаны созданные при непосредственном участии автора диссертационной работы четыре экспериментальные установки, в которых в качестве генератора и детектора используется газовая среда. В зависимости от целей и задач, поставленных перед каждой экспериментальной установкой, в них были использованы различные источники фемтосекундных лазерных импульсов, которые отличаются длительностью импульсов, средней мощностями. Частота следования импульсов во всех лазерных системах составляла величину 1 кГц. Таблица 1 содержит основные характеристики используемого лазерного излучения и спектрометров, созданных на их базе.

Таблица 1. Характеристики экспериментальных установок.

Длительность лазерного импульса, фс	Длина волны, нм	Энергия в импульсе, мДж	Рабочий спектральный диапазон, ТГц	Частота, при которой достигается максимум СПМ, ТГц	Динамический диапазон, дБ
32	800	3	0,5-25	3	55
40	800	2,7	0,2-20	2,3	55
85	800	0,75	0,7-12	1,7	50
120	797	2,4	0,2-7	1,2	45

Принципиальная схема установки, которая обеспечивает возможность генерации и регистрации ТГИ в газовых представлена на рис. 1.

На входе в систему основной пучок делится на два. Первый (накачка) пучок направляется в плечо генерации, а второй (пробный) - в плечо детектирования. В плече генерации формируется двухчастотная (суперпозиция лазерного излучения со второй гармоникой) оптическая накачка, которая при фокусировке приводит к оптическому пробою газовой среды и появлению ТГИ. Для генерации второй гармоники (ВГ) в область между линзой (*f1*) и перетяжкой устанавливается кристалл *BBO* толщиной 100 мкм. Пробный пучок используется для записи временной формы ТГц-сигнала.

В качестве среды для генерации широкополосного излучения была использована плазма оптического пробоя воздуха, азота, а также инертных газов неона, аргона, криптона и ксенона. Для того, чтобы заполнить область перетяжки инертным газом и удерживать требуемое давление была разработана и собрана кювета. Диапазон изменения давления - от 10^{-5} до 1,2 атм.

Регистрация ТГИ осуществлялась в газовых средах (азот, воздух). Регистрация ТГИ также осуществлялась посредством ячейки Голея. Для исследования пространственного профиля излучения была применена матрица микроболометров.

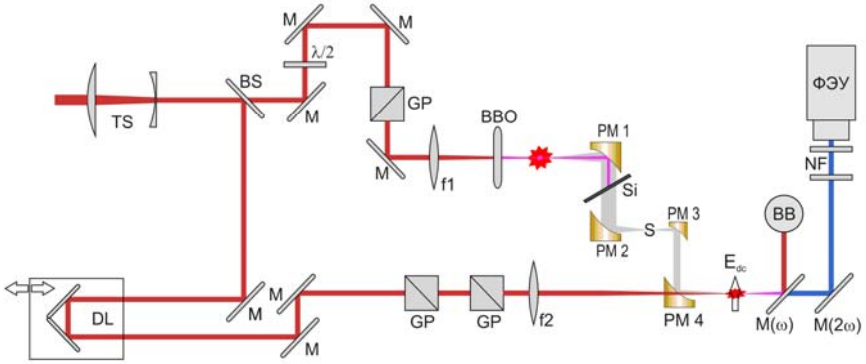

Рисунок 1. Принципиальная схема терагерцового спектрометра с временным разрешением, работающего по методу накачка-зондирование. Обозначения: TS – телескоп, BBO – кристалл второй гармоники, BS – делитель пучка, DL – линия задержки, PM – параболические зеркала f1=150 мм - линза в плече генерации, f2=250 мм - линза в плече детектирования, GP- призмы Глана, ФЭУ (Hamamatsu R106), NF - интерференционные фильтры, пропускающие вторую гармонику, Si- кремниевый фильтр, BB - блокиратор пучка, E_{dc}- область расположения электродов.[A2].

В параграфе 1.2 исследуются основные характеристики разработанных экспериментальных установок: динамический диапазон, отношение сигнал/шум, рабочий спектральный диапазон.

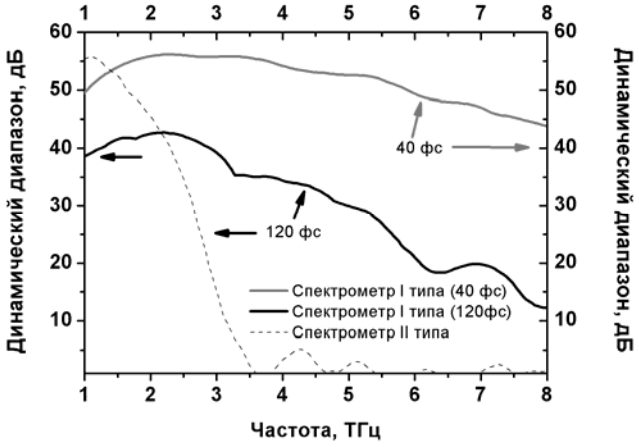

Рисунок 2. Динамический диапазон спектрометра I типа (генерация и детектирование в воздухе) и спектрометра II типа (генерация - GaAs, регистрация – ZnTe).

В диссертации показано, что фононная линия нелинейного кристалла ZnTe, наиболее часто используемого для регистрации ТГИ, приводит к резкому уменьшению спектральной чувствительности электрооптического метода детектирования на частотах свыше 2,7 ТГц. Использование газа для осуществления регистрации ТГИ позволяет зарегистрировать частоты, верхняя граница которых ограничена лишь длительностью лазерного импульса накачки.

В параграфе 1.3 исследуется форма спектра ТГИ, формируемого в условиях оптического пробоя газовых сред

двухчастотными фемтосекундными лазерными импульсами, в зависимости от различных параметров лазерного излучения, прежде всего в зависимости от длительности импульса.

Результаты эксперимента представлены на рисунке 2.

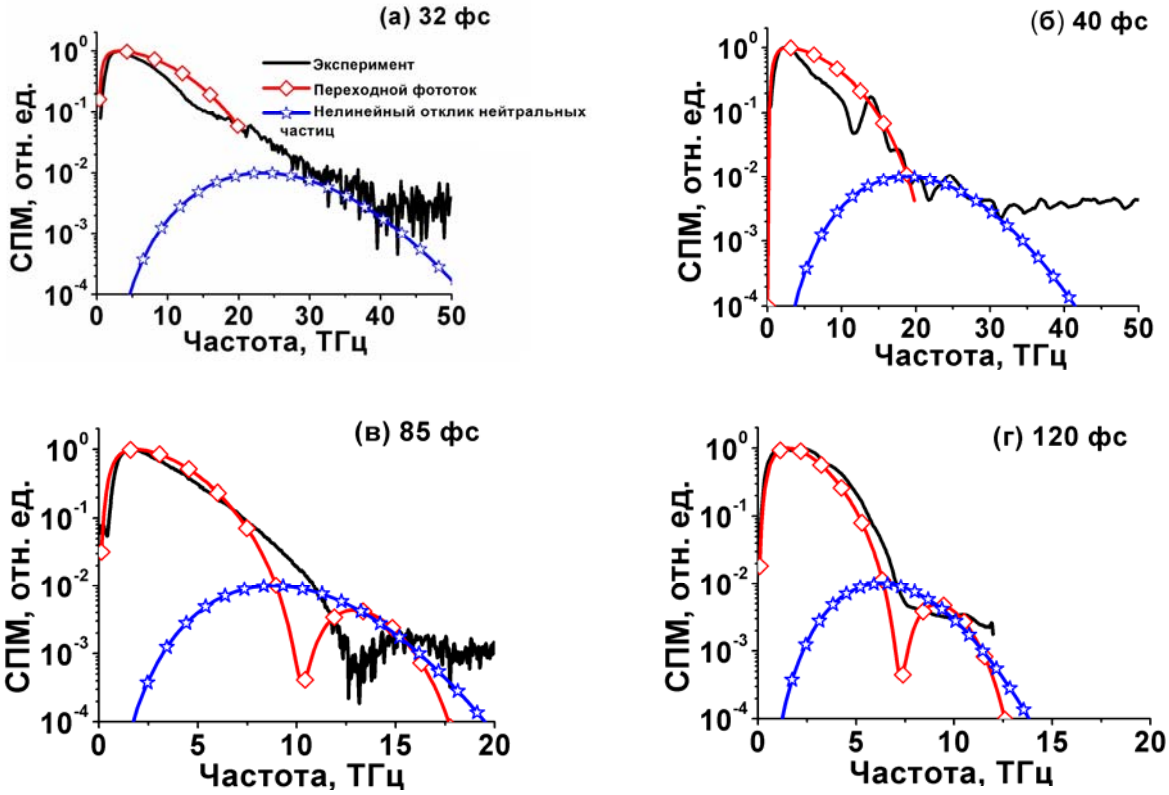

Рисунок 2. СПМ ТГИ, измеренная в эксперименте (сплошная кривая), а также численно рассчитанные СПМ в случае генерации за счет переходного фототока (ромбы) и в случае нелинейного отклика нейтральных частиц среды (звезды) для спектрально-ограниченных лазерных импульсов с длительностями 32 фс (а), 40 фс(б), 85 фс (в) и 120 фс (г) [А1].

Экспериментальные данные показывают, что излучаемый спектр ТГц импульса по ширине близок к предельно возможному для данной длительности оптического импульса. Кроме того, резкий фронт нарастания амплитуды излучаемого поля показывает, что генерация излучения в плазме оптического пробоя обусловлена практически мгновенным нелинейным откликом среды на внешнее электромагнитное поле лазерного импульса. Предварительные исследования и ранние публикации показывают, что в общем случае процесс генерации ТГИ может быть обеспечен практически безынерционным откликом связанных электронов среды, а также откликом свободных электронов, появившихся в результате ионизации среды. Для того чтобы определить какой механизм является доминирующим и, в конечном итоге, определяет свойства излучения, была предложена теоретическая модель генерации

низкочастотного излучения, учитывающая формирование спектра ТГИ как за счет нелинейного отклика нейтральных частиц среды, так и за счет нестационарного (переходного) фототока свободных электронов, появившихся в результате процесса ионизации. Результаты численного моделирования спектра ТГИ в случае его формирования как нестационарным фототоком электронов, так в случае нелинейного отклика связанных электронов представлены на рисунке 2. Согласно модели генерации ТГИ, переходной фототок формирует терагерцовое излучение, максимум спектральной плотности мощности (СПМ), которого расположен в низких частотах (единицы терагерц), тогда как вклад, определяемый нелинейным откликом нейтральных частиц среды, является более высокочастотным (порядка десяти терагерц)

В рамках используемой модели показано, что частота ν_{max}, при которой достигается максимальное значение СПМ ТГИ, в случае формирование низкочастотного излучения за счет нестационарного фототока, следующим образом зависит от длительности лазерного импульса:

$$\nu_{\max} \propto \tau_0^{-1/2}. \quad (1)$$

В случае, когда доминирующим является вклад от нейтральных частиц сред, зависимость частоты ν_{max} от длительности импульса накачки будет характерен следующий вид:

$$\nu_{\max} \propto \tau_0^{-1}. \quad (2)$$

Таким образом, эти зависимости качественно разные для нестационарного фототока и нелинейной поляризации. Для фототока характерно более медленное смещение частоты максимума в низкие частоты с ростом длительности импульса, по сравнению с вкладом от поляризации. Экспериментальные данные в пределах погрешности аппроксимируются зависимостью (1). Таким образом, может быть сделан вывод, что используемые методы регистрации и детектирования позволяет корректно работать с той частью ТГИ, которая сформирована за счет нестационарного фототока электронов. Отсутствие в экспериментальных результатах высокочастотных компонент может быть объяснено особенностями процесса детектирования, используемого в схеме спектроскопии с временным разрешением. Спектральная чувствительность метода существенно падает на частотах, превышающих обратную длительность импульса накачки.

В параграфе 1.4 рассматривается влияние второй гармоники на процесс генерации терагерцового излучения. В данном параграфе представлена теоретическая модель процесса многофотонной ионизации атомов двухчастотным лазерным импульсом. Результатом модели являются асимптотические формулы для

безразмерных параметров, которые определяют скорость многофотонной ионизации и импульс фотоэлектронов в момент ионизации. В частности, в рамках данной модели показано, что поляризация ТГИ, сформированного нестационарным фототоком электронов в условиях многофотонной ионизации газовой среды, совпадает с поляризацией для полей первой и второй оптических гармоник в случае, если последние параллельны друг другу. Выражение для начального импульса электрона содержит множитель $\cos\psi$, который приводит к модуляции ионизации среды при изменении относительной фазы (ψ) полей накачки. В случае когда $\psi=\pm\pi/2$, эффект усиления ионизации минимален, однако максимума достигает выражение для величины среднего импульса α, т.к. оно содержит множитель $\sin\psi$. Таким образом, эти два эффекта являются конкурирующими, и стоит ожидать, что оптимальный режим для генерации ТГц излучения будет соответствовать промежуточному значению относительной разности фаз ψ.

В случае, когда поляризации излучений на основной частоте и частоте ВГ ортогональны друг другу фотоэлектроны приобретают импульс преимущественно в направлении поляризации второй гармоники. Кроме того в случае ортогональных поляризаций частота осцилляций ионизации вдвое выше частоты изменения начального импульса фотоэлектрона, т.е. в конечном счете частоты изменения поляризации ТГИ вдоль направления ВГ.

Для проверки выводов теории были проведены исследования поляризационных свойств ТГИ в зависимости от относительной разности фаз ψ между излучением на основной частоте и частоте его второй гармоники, а также от мощности лазерного излучения накачки. Теория генерации ТГИ за счет нестационарного фототока, сформированного в условиях многофотонной ионизации газовой среды двухчастотным лазерным импульсом позволяет объяснить зависимость поведения поляризации терагерцового излучения от ψ. Кроме того, на основе вывода теоретической модели, предсказывающего модуляцию ионизации газовой среды в зависимости от разности фаз ψ, произведена экспериментальная оценка концентрации электронов плазмы оптического пробоя. Для линзы с фокусным расстоянием 15 см в условиях возбуждения воздушной среды двухчастотными импульсами с суммарной энергией порядка 1мДж, длительностью 120 фс, соответствующая оценка составляет величину $9\cdot10^{16}$ см$^{-3}$.

В параграфе 1.5 представлено исследование пространственного распределения терагерцового излучения, формирующееся при двухцветной фемтосекундной лазерной накачке воздушной среды. Измерение пространственного профиля терагерцового пучка осуществлялось многоэлементным болометрическим детектором. Угловое распределение терагерцового пучка также исследовано в схеме

спектроскопии с временным разрешением, где как в качестве генератора, так и детектора используется газовая среда. Экспериментально показано, что пространственное распределение импульсного терагерцового излучения представляет собой конус, направленный вдоль оси распространения излучения накачки.

В параграфе 1.6 представлены экспериментально измеренные зависимости амплитуды и формы ТГц сигнала, формируемого при двухчастотной фемтосекундной накачке инертных газов, в зависимости от давления газа.

Экспериментально установлено, что при вариации давления газа происходит периодическое изменение амплитуды и формы ТГц импульса. Для каждого газа была зафиксирована своя величина периода изменения. Для ксенона она оказалась равной 0,3 атм., в случае криптона - 0,5-0,6 атм., а для аргона – 1 атм. В неоне удалось пронаблюдать лишь часть периода. Наиболее эффективными для генерации ТГИ оказались криптон и ксенон при давлении 0.5 атм. Экспериментально установленная зависимость амплитуды и формы временного профиля ТГц сигнала от давления обусловлена дисперсией второй и первой гармоник при распространении в газовой среде.

В ходе экспериментов было обнаружено ограничение эффективности генерации ТГц излучения в исследованных газах при увеличении давления газа, обусловленное проявлением эффектов самовоздействия.

Основные выводы второй главы сформулированы в параграфе 1.7.

Глава 2. Регистрация широкополосного терагерцового излучения в газовых и плазменных средах

В данной главе описан метод регистрации, ТГИ в газовых средах в условиях оптического пробоя, основанный на восстановлении временного профиля терагерцового импульса по энергии второй гармоники (ВГ), формирующейся в результате терагерцово-оптической конверсии в присутствии постоянного поля. Экспериментально определяются условия, обеспечивающие когерентное линейное детектирование широкополосного излучения. Описывается способ оценки амплитуды напряженности ТГц-поля при использовании рассматриваемого метода регистрации.

В параграфе 2.1 экспериментально определяются условия, при которых детектирование обеспечивает линейную когерентную регистрацию ТГИ. Исследуются временная форма терагерцового сигнала, его амплитуда и спектр в зависимости от интенсивности лазерного и терагерцового излучений, участвующих в детектировании. Определяется оптимальное значение величины постоянного поля.

В параграфе 2.2 представлены теоретические основы метода когерентного детектирования импульсного ТГИ в газовых и плазменных средах. Показано, что в случае, когда длительность лазерного импульса много меньше длительности

терагерцового импульса, временной профиль ТГц-импульса может быть восстановлен по временному профилю энергии второй гармоники лазерного поля, генерируемой при нелинейном взаимодействии лазерного и терагерцового импульсов в присутствии статического поля в фемтосекундной плазме оптического пробоя газовых сред. При увеличении длительности лазерного импульса на основной частоте между терагерцовым импульсом и огибающей второй гармоники лазерного излучения возникают заметные отличия, как в спектральном составе, так и во временном распределении. С ростом длительности оптического импульса максимум в спектре второй гармоники уменьшается по величине и смещается в область более низких частот относительно спектрального максимума терагерцового импульса. Кроме этого, при больших длительностях лазерного импульса амплитуда огибающей второй гармоники заметно уменьшается, а ее временной профиль определяется интегралом от электрического поля терагерцового импульса. В общем случае, сигнал второй гармоники обусловлен суперпозицией нескольких независимых, но равноправных вкладов, доминирующими из которых являются нестационарный фототок электронов и нелинейная поляризация нейтральных атомов среды. В случае отклика нейтральных частиц временной профиль энергии второй гармоники пропорционален амплитуде напряженности ТГц поля, а в случае нестационарного фототока - интегралу по времени от электрического поля терагерцового импульса. Таким образом, при длительности лазерного импульса много меньшей, чем длительность импульса терагерцового излучения, временной профиль и спектр огибающей второй гармоники близки к соответствующим значениям для ТГц импульса.

В параграфе 2.3 предложен метод оценки амплитуды напряженности терагерцового поля на основе метода детектирования ТГИ в газовых и плазменных средах. При условии, что длительность лазерного импульса много меньше длительности терагерцового метод оценки оказывается нечувствительным к физическому механизму, посредством которого осуществляется терагерцово-оптическая конверсия. В случае, когда известно значение амплитуды постоянного поля, может быть получено выражение для амплитуды терагерцового поля в любой точки временного профиля. Для этого достаточно измерить энергию второй гармоники при открытом и при блокированном ТГц пучке. В частности, для амплитуды напряженности терагерцового поля в точке максимума временной формы:

$$E_{THz} = \frac{E_0}{4} \cdot \frac{S_{2\omega}^{+} - S_{2\omega}^{-}}{S_{2\omega}(0)}, \qquad (3)$$

где $S_{2\omega}^{\pm}$– мощность второй гармоники, измеряемой в случае, когда поляризация терагерцового поля и статического поля сонаправлены и противоположно

направлены, соответственно, $S_{2\omega}(0)$ – мощность второй гармоники, формирующейся при блокированном терагерцовом пучке.

Для оценки амплитуды поля импульсного ТГИ была проведена серия измерений энергии ВГ при блокированном и при открытом терагерцовом пучке. При этом измерения производились в точке максимума временной формы терагерцового пучка. Оценка амплитуды напряженности терагерцового поля составила величину 2,5±0,3 кВ/см.

В параграфе 2.4 сформулированы основные выводы третьей главы.

Глава 3. Применение методов генерации и детектирования широкополосного терагерцового излучения в газовых средах создание спектрометров импульсного ТГц излучения и исследования молекул и кристаллов.

Проведена апробация созданной техники генерации и детектирования терагерцового излучения в газовых средах для исследования сложных биологических молекул. Определен диапазон достоверности терагерцового спектрометра, использующего газово-плазменные методы формирования и регистрации ТГИ.

Параграф 3.1 посвящен постановке задачи и выбору объектов для исследования. Фундаментальный и прикладной интерес представляет зависимость функциональной активности белков от их окружения. Для большой части белков естественным окружением является вода, однако использование органических сред может расширять их возможности. Однако в неводных средах белки теряют свою функциональную активность и перестают работать. Таким образом, интересной становится задача исследования структуры белков в различных растворителях и поиска путей регуляции их активности в неводной среде.

Ферментативная активность сериновых протеаз в органических растворителях резко возрастает в присутствии краун-эфиров (КЭ). Одним из механизмов этого эффекта является образование комплекса поверхностных аминогрупп белка с краун-эфиром. Из-за интенсивной полосы поглощения амид I, перекрывающейся с полосами поглощения аминогрупп белка, наиболее часто применяемые методы колебательной спектроскопии биологических объектов не дают возможности прямого исследования аминогрупп белка. Однако эти методы можно применять для изучения взаимодействия аминогрупп с краун-эфирами на примере такой модельной системы, как трис-(гидроксиметил)аминометан (трис) $(HOCH_2)_3C\text{-}NH_2$.

Терагерцовый диапазон изобилует информацией, относящейся к низкочастотным колебаниям молекул. При этом в спектре можно обнаружить линии, относящиеся как к внутримолекулярным колебаниям (то есть колебаниям отдельных частей и связей молекулы относительно ее самой), так и межмолекулярным (то есть

колебаниям молекулы как целого внутри элементарной ячейки относительно других молекул). Положения, формы и интенсивности линий спектра существенно зависят от микроокружения молекулы. Таким образом, по анализу спектра в терагерцовом диапазоне можно косвенно исследовать влияние микроокружения молекулы на ее активность.

В данной работе методами ИК и терагерцовой спектроскопии изучаются химотрипсин, трис, КЭ и новые структуры, возникающие при взаимодействии химотрипсина и триса с КЭ. Изучается взаимодействие непротонированных и протонированных групп с КЭ при различных относительных концентрациях взаимодействующих веществ.

В параграфе 3.2 подробно описывается способ приготовления образцов.

В параграфе 3.3. приводятся экспериментальные установки, используемые для измерения спектров пропускания образцов в ИК диапазоне и в терагерцовом диапазоне частот. Определяется диапазон достоверности работы терагерцового спектрометра, использующего азот как в качестве генератора, так и в качестве детектора импульсного ТГИ.

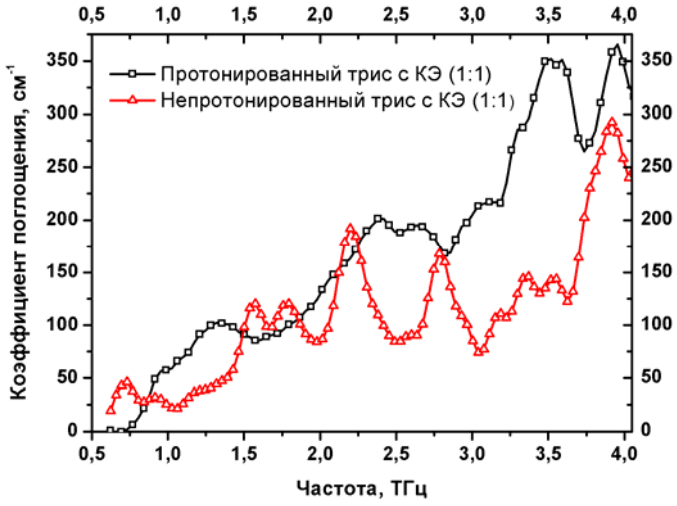

Рисунок3. Спектр поглощения смеси протонированного триса с краун-эфиром (КЭ) и смеси непротонированного триса с КЭ в отношении 1:1.[А6].

В параграфе 3.4 представлены спектры поглощения чистого триса и краун-эфира, а также их смесей друг с другом в соотношении 1:1 и 1:2. Показано, что протонированный трис сильнее взаимодействует с молекулами КЭ. В спектрах комплексов появляются новые линии, происходит смещение и изменение форм линий чистых веществ. Эти эффекты являются результатом взаимодействия одной молекулы триса и одной молекулы КЭ, в результате чего происходит образование комплекса. Терагерцовый спектр комплекса трис-КЭ заметно отличается от спектров чистых веществ и не может быть представлен в виде суперпозиции спектров компонент. Это подтверждают также и результаты ИК измерений.

Измерения спектров химотрипсина показали, что белок имеет фоновое поглощение в представленном диапазоне, за исключением трех слабых линий на

частотах 131, 154 и 234 $см^{-1}$. Спектры же комплексов химотрипсин-краун имеют большое количество спектральных особенностей в низкочастотном диапазоне. Форма спектра комплекса значительно отличается от спектров компонент. Сравнение спектров чистых веществ с их смесями с краун-эфиром позволило установить, что спектры комплексов химотрипсин-краун 1:100 и 1:250 имеют индивидуальную форму и не являются ни суперпозициями компонент комплекса, ни суперпозицией друг друга. Характер изменений, происходящих в спектрах комплексов белок-КЭ при увеличении концентрации КЭ, соответствует тем изменениям, которые наблюдаются в спектрах комплексов протонированного триса с КЭ. Поэтому можно предположить, что преимущественно взаимодействие протонированных аминогрупп белка с молекулами КЭ приводит к увеличению функциональной активности белка в неводной среде.

Параграф 3.5 посвящен основным выводам третьей главы.

В **Заключении** сформулированы **основные результаты и выводы** диссертационной работы:

1. Создана экспериментальная установка, использующая высокоинтенсивные фемтосекундные лазеры для генерации и регистрации импульсного ТГИ в условиях оптического пробоя воздуха при атмосферном давлении. Определены практические параметры созданной установки (рабочий спектральный диапазон, динамический диапазон, отношение сигнал/шум). Установлены условия, обеспечивающие линейную когерентную регистрацию терагерцового импульса при его нелинейно-оптическом смешении в газовой среде с фемтосекундным импульсным излучением в присутствии статического поля.
2. Осуществлен процесс генерации импульсного терагерцового излучения в условиях оптического пробоя инертных газов двумя фемтосекундными лазерными импульсами на частоте основного излучения и частоте его второй гармоники. Выявлена периодичность изменения амплитуды терагерцового сигнала от давления, которая связана с дисперсией второй и первой гармоник при распространении в газовой среде и зависимостью показателя преломления газа от давления. Периодичность зависит от газа: Xe - 0.3 атм, Kr -0.5 атм, Ar - 1 атм, Ne – более 1 атм. Показано, что наиболее эффективными газами для генерации являются криптон и ксенон при давлении 0.5 атм.
3. Изменение длительности лазерного импульса накачки позволяет осуществлять управление шириной спектра и положением частоты, при которой достигается максимум спектральной плотности мощности ТГИ, формируемого в условиях оптического пробоя газовых сред двумя фемтосекундными лазерными импульсами на основной частоте и частоте второй гармоники.

4. Пространственный профиль ТГИ, генерируемого в плазме оптического пробоя газовых сред двухцветными фемтосекундными лазерными импульсами представляет собой конус, расположенный вдоль оси распространения излучения. Такая форма пространственного распределения может быть связана с процессами поглощения/отражения центральной части пучка в плазме оптического пробоя.

5. Выявлен поворот плоскости поляризации ТГИ, сформированного в условиях двухчастотного возбуждения газовой среды в зависимости от разности фаз между импульсами на основной частоте и частоте второй гармоники. Поворот связан с приобретенной в процессе распространения в кристалле второй гармоники эллиптичностью излучения на основной частоте.

6. Предложена и апробирована теоретическая модель генерации ТГИ, учитывающая основные аддитивные вклады в низкочастотный сигнал. На основе выбранной модели численно рассчитан спектральный отклик каждого из вкладов в терагерцовом диапазоне частот. Показано, что в условиях оптического пробоя газовых сред высокоинтенсивными (10^{13} - 10^{14} Вт/см^2) двухчастотными (суперпозиция лазерного излучения с излучением второй гармоники) фемтосекундными (10-200 фс) импульсами спектр тока электронов, образовавшихся в результате нелинейной ионизации, локализован в области низких (1-10 ТГц) частот, а спектр отклика связанных электронов - в области высоких (10-30 ТГц).

7. Произведена апробация терагерцового спектрометра, использующего разработанные методы генерации и регистрации ТГИ в воздушной среде при атмосферном давлении, для исследования комплексных соединений краун-эфира с трисом и с химотрипсином в диапазоне от 0.5 до 9 ТГц

8. Предложен метод оценки концентрации электронов в перетяжке лазерного излучения по модуляции интенсивности флуоресценции плазмы оптического пробоя. Для линзы с фокусным расстоянием 15 см и двуцветных импульсов с суммарной энергией порядка 1мДж, длительностью 120 фс, соответствующая оценка составляет величину $9 \cdot 10^{16}$ см$^{-3}$

9. Предложен метод оценки амплитуды напряженности терагерцового импульса при осуществлении регистрации импульсного ТГИ в газовых средах. При генерации терагерцового излучения в условиях оптического пробоя двухчастотными лазерными импульсами с длительностью 120 фс, центральной длиной волны 800 нм, частотой повторения 1 кГц и энергией в импульсе 550 мкДж амплитуда напряженности терагерцового импульса, измеренного в точке максимума составляет величину 2,5±0,3 кВ/см.

Основные результаты диссертационной работы отражены в следующих работах:

[A1] 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.- Pp. 1906-1908.

[A2] **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.- Vol. 29.- Pp. 1911-1919.

[A3] Balakin A. V., **Borodin A. V.**, Kotelnikov I. A., Shkurinov A. P. Terahertz emission from a femtosecond laser focus in a two-color scheme // Journal of the Optical Society of America B-Optical Physics, 2010.- Vol. 27.- Pp. 16-26.

[A4] Котельников И.А., **Бородин А.В.**, Шкуринов А.П. Многофотонная ионизация атомов двухцветным лазерным импульсом. // ЖЭТФ, 2011.- Т. 139.-Вып. 6.-с. 1081-1087.

[A5] Фролов А.А., **Бородин А.В.**, Есаулков М.Н., Курицын И.И., Шкуринов А.П. Теория лазерно-плазменного метода детектирования терагерцового излучения. // ЖЭТФ, 2012.- Т. 141.-Вып. 6.-с. 1027-1040.

[A6] A.A. Mankova, **A.V. Borodin**, A.V. Kargovsky, N.N. Brandt, I.I. Kuritsyn, Q. Luo, I.K. Sakodynskaya, K.J. Wang, H. Zhao, A.Yu Chikishev, A.P. Shkurinov, and X.C. Zhang //Terahertz time-domain and ftir spectroscopy of tris-crown interaction. Chemical Physics Letters, 2012. - Vol. 554. - Pp.201–207.

[A7] A.A. Mankova, **A.V. Borodin**, A.V. Kargovsky, N.N. Brandt, I.I. Kuritsyn, Q. Luo, I.K. Sakodynskaya, K.J. Wang, H. Zhao, A.Yu Chikishev, A.P. Shkurinov, and X.C. Zhang // Terahertz time-domain and FTIR spectroscopic study of interaction of α-chymotrypsin and protonated tris with 18-crown-6. Chemical Physics Letters, 2013. - Vol. 560. - Pp.50–59.

[A8] Mikhail N. Esaulkov, **Alexander V. Borodin**, Ilya I. Kuritsyn and Alexander P. Shkurinov Spatial pattern of the pulsed THz radiation emission from a two-color optical breakdown plasma // ALT 2012 02 – 06 September 2012, Thun, Switzerland, Book of Abstracts, p. 172-173.

[A9] Ilya I. Kuritsyn, **Alexander V. Borodin**, Mikhail N. Esaulkov and Alexander P. Shkurinov Air-biased coherent detection of broadband THz radiation: capabilities and fine points // ALT 2012 02 – 06 September 2012, Thun, Switzerland, Book of Abstracts, p. 192-193.

[A10] Andreeva V.A., **Borodin A.V.**, Esaulkov M.N., Kosareva O.G., Luo Q., Panov N.A., Shkurinov A.P., Wang K., Zhao H., Zhang X.C. Transformation of Thz spectra emitted

from dual-frequency femtosecond pulse interaction in gases // 37-th IRMMW 23-28 September 2012, Wollongong, Australia, DOI 10.1109/IRMMW-THz.2012.6380429.

[A11] **Borodin A.V.**, Esaulkov M.N., Frolov A.A., Shkurinov A.P. Role of optical breakdown plasma in registration of broadband THz radiation in ABCD detection scheme// IWPM 26-28 July 2011, Hangzhou, P.R. China, DOI 10.1109/ICMT.2011.6002538.

[A12] Esaulkov M.N., **Borodin A.V.**, Kuritsyn I.I., Kotelnikov I.A., Shkurinov A.P. Role of the multiphoton ionization in generation of broadband terahertz radiation // 8-th International Workshop «Strong Microwaves and Terahertz waves: Sources and applications» 9-16 July 2011, Nizhny Novgorod, Russia, Book of Abstracts.

[A13] **Borodin A.V.**, Esaulkov M.N., Kotelnikov I.A., Shkurinov A.P. Analysis of dual frequency interaction in the filament with the purpose of efficiency and polarization control of THz pulse generation// International Symposium «Terahertz Radiation: Generation and Application» 26-28-01 августа 2010, Новосибирск, Россия Тезисы докладов.

[A14] **Borodin A.V.**, Esaulkov M.N., Frolov A.A., Kotelnikov A.A., Kuritsyn I.I, Shkurinov A.P. Generation and detection of broadband THz radiation from the optical breakdown plasma: from basic mechanisms to applications// 19-th International Conference on Advanced Laser Technologies 2011 03-08 September 2011, Golden Sands, Bulgaria, Book of Abstracts, P. 100.

[A15] **Borodin A.V.**, Esaulkov M.N., Kuritsyn I.I., Frolov A.A., Shkurinov A.P The basis of the plasma methods of diagnostics and detection of THz radiation// 36-th International Conference on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves 2011 02-07 October 2011, Houston, USA, DOI 10.1109/irmmw-THz.2011.6105009.

[A16] **A. V. Borodin**, N. N. Brandt, A. Yu. Chikishev, A. V. Kargovsky, Q. Luo, A. A. Mankova, I. K. Sakodynskaya, A. P. Shkurinov, K. Wang, H. Zhao and X.-C. Zhang//Terahertz time-domain and FTIR spectroscopy of tris and its complexes with crown ether// 37-th IRMMW 23-28 September 2012, Wollongong, Australia, DOI 10.1109/IRMMW-THz.2012.6379504.

Список цитируемой литературы:

[1] Аскарьян Г. А. //ЖЭТФ, 1962.- Вып. 42.-С**.** 1567.

[2] Пилипецкий Н. Ф., Рустамов А. Р. Наблюдение самофокусировки света в жидкостях // Письма в ЖЭТФ, 1965.-Вып. 2.- С. 88.

[3] V. I. Bespalov and V. I. Talanov Filamentary Structure of Light Beams in Nonlinear Media // JETP Lett., 1966.- Vol. 3.-Pp 307.

[4] Ахманов С. А., Сухоруков А. П., Хохлов Р. В. Самофокусировка и дифракция света в нелинейной среде// УФН, 1967.-Вып. 93.- С**.** 19.

[5] Boyd R.W. Nonlinear Optics second edition. San Diego: Academic Press, 2003.-Pp. 578.

[6] Bartel T., Gaal P., Reimann K., Woerner M.,Elsaesser T. Generation of single-cycle THz transients with high electric-field amplitudes // Optics Letters, 2005.- Vol. 30.- Pp. 2805-2807.

[7] Аскарьян Г. А. Черенковское и переходное излучения от электромагнитных волн //ЖЭТФ, 1962.-Вып. 5.-С. 1360.

[8] Н.Г. Басов, О.Н. Крохин, Ю.М. Попов Генерация, усиление и индикация инфракрасного и оптического излучений с помощью квантовых систем// УФН, 1960.-Вып. 72.-С. 161.

[9] Kress M., Loffler 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 // Optics Letters, 2004.- Vol. 29.- Pp. 1120.

[10] Y.-S. Lee Principles of Terahertz Science and Technology//Springer Science+Buisness Media, LLC, 233Spring Street, New York, NY 10013, USA, Pp.340.