

МОСКОВСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ
имени М.В. ЛОМОНОСОВА
ФИЗИЧЕСКИЙ ФАКУЛЬТЕТ

На правах рукописи

Солянкин Петр Михайлович

**Эффекты генерации и взаимодействия терагерцового
излучения с жидкими, газовыми и кластерными
средами**

Специальность 01.04.21

«Лазерная физика»

Диссертация на соискание учёной степени кандидата
физико-математических наук

Научный руководитель:
доктор физико-математических наук,
член-корреспондент РАН
Шкуринов Александр Павлович

Москва — 2021

Оглавление

Введение	4
Глава 1. Генерация терагерцового излучения в жидкости.	
Нелинейно-оптические эффекты при распространении терагерцового излучения в жидком азоте	21
1.1 Введение	21
1.2 Экспериментальная установка	25
1.3 Экспериментальные результаты и их интерпретация	29
1.4 Особенности взаимодействия ТГц излучения с жидкостями. Поляризационные свойства ТГц излучения при его распространении в жидком азоте	39
1.5 Теоретические модели ТГц генерации	44
1.6 Выводы к главе 1	51
Глава 2. Генерация терагерцового излучения в жидких металлах	53
2.1 Введение	53
2.2 Экспериментальная установка	55
2.3 Экспериментальные результаты оптико-терагерцового преобразования в каплях	60
2.4 Теоретические оценки	69
2.5 Выводы к главе 2	74
Глава 3. Генерация терагерцового излучения в газово-нанокластерных струях	75
3.1 Введение	75
3.2 Экспериментальная установка	77
3.3 Экспериментальные результаты	80

3.4	Теоретические оценки	86
3.5	Выводы к главе 3	88
Глава 4.	Генерация терагерцового излучения в газах	89
4.1	Введение	89
4.2	Исследование зависимости эффективности оптико-ТГц преобразования и свойств ТГц излучения при генерации в плазме оптического пробоя от давления для углекислого газа	94
4.3	Изменение параметров фокусировки лазерного излучения . . .	100
4.4	Выводы к главе 4	117
Заключение		119
	Благодарности	120
Список литературы		122
Список сокращений и условных обозначений		145
Список иллюстраций		146
Список таблиц		150
Приложения		151
А	Экспериментальное оборудование и методы, использованные в работе	151
Б	Функция отклика	157
В	Модель ТГц генерации в микроплазме	159
Г	Моделирование преобразования состояния поляризации ТГц импульса при прохождении нелинейной среды	162

Введение

Разработка методов формирования сверхкоротких лазерных импульсов - модуляции добротности резонатора и синхронизации мод лазерных источников [1] - позволила получать высокую пиковую интенсивность света в лазерном пучке и, вследствие этого, наблюдать широкий спектр нелинейно-оптических явлений. В 1988 г. был продемонстрирован первый преобразователь импульсного оптического излучения в терагерцовое - т.н. ключ Остона (фотопроводящая антенна) [2]. С созданием титан-сапфировых [3] лазерных систем, а затем и усилителей [4] мощность и частотный диапазон оптико-терагерцовых преобразователей существенно выросли.

В настоящее время для генерации широкополосных терагерцовых (ТГц) импульсов часто используется процесс взаимодействия интенсивного фемтосекундного лазерного излучения с различными средами [5]. Получающееся при этом терагерцовое излучение обладает рядом характерных особенностей: генерируются одиночные моноимпульсы, состоящие из 1-2 колебаний поля; ввиду этого, центральная частота таких импульсов (≈ 1 ТГц) сопоставима, а в некоторых случаях и много меньше ширины спектра импульса [6]; ТГц импульсы оказываются жестко привязаны во времени к породившим их оптическим, а длительность оптических субпикосекундных импульсов меньше длительности ТГц. Из-за малой длительности, высокой пиковой мощности и связи между исходными оптическими и возникающими ТГц импульсами такое излучение можно использовать для импульсной ТГц спектроскопии (THz-TDS) [5] и экспериментов по схеме оптическая накачка - ТГц зондирование [7]. Кроме того, высокая пиковая интенсивность позволяет наблюдать нелинейные эффекты в ТГц диапазоне [8].

При этом практические приложения вышеупомянутых методик достаточно обширны - медицина [9; 10]; фармацевтика [11]; биологические исследования [12; 13]; контроль качества материалов [14; 15], покрытий [16; 17] и жидкостей [18] в промышленности; бесконтактная спектроскопия в системах

досмотра [19], идентификации взрывчатки [20] и запрещенных веществ [19; 21]; системы связи [22], и даже ускорение частиц [23; 24].

Для генерации ТГц излучения широко используются твердотельные оптико-терагерцовые преобразователи: фотопроводящие антенны на базе полупроводников [22], и нелинейные кристаллы, в которых происходит выпрямление лазерного излучения [25; 26], в том числе органические [27]. С использованием техники наклонного фронта достигаются рекордные эффективности оптико- терагерцового преобразования до единиц процентов [28]. Однако, твердотельным источникам присущи фундаментальные недостатки: необратимое повреждение (оптический пробой) при увеличении интенсивности лазерного излучения и ограничение ширины спектра излучаемого импульса вследствие наличия фоновых линий поглощения у многих эффективных источников в области выше $3 \div 4$ ТГц [29—31]. Таким образом, для повышения мощности источника приходится увеличивать его апертуру, что отрицательно сказывается на качестве терагерцового пучка и стоимости кристалла, а также накладывает существенные требования на его однородность. Для увеличения спектрального диапазона источника применяется уменьшение толщины кристалла [26], что сказывается на его механической прочности, повышает требования к качеству механической обработки и негативно влияет на эффективность преобразования. Прогресс в развитии современных лазерных систем: уменьшение длительности импульсов, повышение их энергии и частоты повторения [32] обостряет эти проблемы.

Другой часто используемый класс источников, исследуемый в том числе и в данной диссертации, основан на создании плазмы оптического пробоя вещества: при превышении порога ионизации в перетяжке оптического излучения, фокусируемого в веществе, формируется излучающий плазменный канал. Увеличение эффективности преобразования в источниках такого типа возможно за счёт повышения энергии оптической накачки вплоть до проявления эффектов насыщения [33] или же паразитных нелинейных эффектов, возникающих при распространении высокоинтенсивных оптических и терагерцовых импульсов в среде. Кроме того, для устойчивой работы таких преобразователей в импульсно-периодическом режиме требуется возобновляемая

среда, свойства которой восстанавливаются в промежутке между последовательными лазерными импульсами.

Наиболее хорошо изучена генерация терагерцового излучения в газовой среде. Было проведено множество экспериментальных исследований спектрально-угловых и энергетических зависимостей ТГц генерации как для воздуха, так и для других газов [34].

В типичных экспериментальных условиях степень ионизации газа оптическим излучением n_e/n_a , где n_e и n_a - концентрации свободных электронов и атомов вещества, невелика. В таком случае нелинейные свойства среды определяются вкладом неионизированных (нейтральных) атомов и молекул [35]. При повышении интенсивности излучения начинается ионизация и растёт количество свободных электронов и ионов плазмы.

При воздействии интенсивного лазерного излучения на вещество возможна его ионизация. Согласно теории Эйнштейна [36], фотоионизация одиночным фотоном возможна при $\hbar\omega > J_Z$, где $\hbar\omega$ - энергия кванта излучения, а J_Z - потенциал ионизации атомов среды. Для использованных в работе лазерных систем (см. таблицу А.1) $\hbar\omega \approx 1.55$ эВ, в то время как $J_1 \sim 7 \div 14$ эВ для большинства сред. Таким образом, в случае излучения титан-сапфирового лазера фотоионизация определяется многофотонными процессами или же туннелированием электрона во внешнем лазерном поле.

Многофотонная ионизация происходит с одновременным поглощением $k + m$ фотонов, где $k \cdot \hbar\omega > J_Z$ и k - минимальное количество фотонов, необходимое для фотоионизации. В случае $m \neq 0$ такая ионизация называется надпороговой [Above-threshold ionization]. Избыток энергии переходит в кинетическую энергию электрона, $\epsilon_{kin} = (k + m) \cdot \hbar\omega - J_Z$. Вероятность ионизации в n -фотонном процессе зависит от интенсивности как $P_n = I_{laser}^n$, в том случае, когда внешнее поле лазерного излучения много меньше внутриатомного, где $I_{laser} = \frac{4\Delta E}{\tau\pi d_{laser}^2}$ - интенсивность лазерного излучения, τ - длительность лазерного импульса, ΔE и d_{laser} - энергия импульса и характерный диаметр лазерного пятна в области перетяжки.

Ввиду того, что в экспериментах удобнее характеризовать интенсивность излучения, можно оценить интенсивность внутриатомного поля как $I_a =$

$\frac{cE_a^2}{8\pi} = \frac{c(e/a_0^2)^2}{8\pi} \sim 3.5 \cdot 10^{16} \text{ ВТ/см}^2$ (для электрона на первой боровской орбите атома водорода, где e и a_0 - соответственно заряд и масса электрона) и сравнивать её с интенсивностью лазерного излучения. В том случае, когда $I_a \sim I_{laser}$, внутриатомный потенциал существенно искажается и становится вероятной надбарьерная ионизация [Barrier suppression ionization]. Согласно [37–40], минимальная интенсивность, необходимая для надбарьерной ионизации $I_{BSI} = \frac{c}{8\pi} E_{BSI}^2 = \frac{c}{8\pi} (\frac{J_Z^2}{4e^3 Z})^2$; $I_{BSI} [\text{ВТ/см}^2] = 4 \cdot 10^9 \frac{J_Z^4 [\text{эВ}]}{Z^2}$ [41]. Оценка этого выражения для азота даёт $I_{BSI} = 1.8 \cdot 10^{14} \text{ ВТ/см}^2$.

При меньших интенсивностях характер ионизации зависит от параметра адиабатичности Келдыша $\gamma = \omega \frac{\sqrt{2J_Z m_e}}{eE_{laser}}$ [39], где m_e - масса электрона, а E_{laser} - напряженность поля лазерного излучения. При $\gamma < 1$ доминирует туннельная ионизация, в противном случае - многофотонная надпороговая.

- $I < I_{\gamma=1}, \gamma > 1$ - многофотонная надпороговая ионизация;
- $I_{\gamma=1} < I < I_{BSI}, \gamma < 1$ - туннельная ионизация;
- $I > I_{BSI}$ - надбарьерная ионизация;

Для излучения титан-сапфирового лазера $\lambda = 800 \text{ нм}$, $\omega = 2.4 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$ можно получить характерные интенсивности лазерного излучения, приведённые в таблице 0.1. Данные интенсивности - качественные характерные значения, и вблизи них процесс ионизации носит более сложный характер. Применяемые в работе интенсивности лазерного излучения приведены в таблице 0.2. При увеличении плотности плазмы существенным становится вклад ударной ионизации.

Таблица 0.1. Характерные интенсивности ионизации различных веществ

Вещество	$J_1, \text{эВ}$ [42]	$I_{\gamma=1}, \text{ВТ/см}^2$	$I_{BSI}, \text{ВТ/см}^2$
N_2	14.54	$1.22 \cdot 10^{14}$	$1.79 \cdot 10^{14}$
O_2	13.61	$1.14 \cdot 10^{14}$	$1.37 \cdot 10^{14}$
Ar	15.76	$1.32 \cdot 10^{14}$	$2.47 \cdot 10^{14}$
Sn	7.33	$6.14 \cdot 10^{13}$	$1.15 \cdot 10^{13}$
In	5.79	$4.85 \cdot 10^{13}$	$4.5 \cdot 10^{12}$

Свободный электрон в лазерном поле с напряженностью электрического поля E_{laser} на частоте ω получает энергию порядка

$$W = \frac{m_e}{2} \left(\frac{eE_{laser}}{m_e\omega} \right)^2 = 4300 \frac{I}{I_0} [\text{эВ}]. \quad (1)$$

Процесс ударной ионизации электронов занимает гораздо больше времени, чем рассмотренные ранее механизмы. Скорость ионизации $\nu_{impact} = n_e \sigma_{II} v_e$, где $\sigma_{II} = 4\pi a_B \frac{J}{\epsilon} (1 - \frac{J}{\epsilon})$ - формула Томсона для сечения ионизации [43], $v_e = \sqrt{2\epsilon/m_e}$. Здесь ϵ - энергия электрона, J - потенциал ионизации.

Динамику плотности электронов для ударной ионизации можно записать как $\frac{dn_e}{dt} = n_e n_a k_{ioniz} - n_e^2 n_i k_{recomb} = n_a \nu_{impact} - n_i \nu_{recomb}$. Таким образом, повышение плотности среды увеличивает эффективность ударной ионизации.

Таблица 0.2. Максимальная интенсивность лазерного излучения

№ главы	Название	Лазерная система, вещество	Пиковая интенсивность, Вт/см ²
1	Жидкий азот	4, N ₂	$< 6 \cdot 10^{13}$
1	Жидкий азот	3, N ₂	$< 3,5 \cdot 10^{15}$
2	Капли-предымпульт	1, Sn+In	$9 \cdot 10^{13} \div 1,8 \cdot 10^{15}$
2	Капли-второй импульс	1, Sn+In	$1,8 \cdot 10^{15} \div 3,5 \cdot 10^{15}$
3	Кластеры	3, Ar	$< 1,3 \cdot 10^{17}$
4	микроплазма	1, N ₂ + O ₂	$< 8 \cdot 10^{13}$

Для изучения нелинейных явлений, вызванных субпикосекундными импульсами, крайне важна скорость ионизации и динамика фотоиндуцированной плазмы. Процессы взаимодействия субпикосекундных лазерных импульсов с веществом рассмотрены во множестве работ [39; 44–46].

Во-первых, для взаимодействия сверхкоротких лазерных импульсов с плазмой необходимо, чтобы время формирования плазмы было сопоставимо с их длительностью. Как показано в главах 1 и 3, варьирование длительности импульса может изменить свойства плазмы и повысить эффективность оптико-ТГц конверсии. Во-вторых, в эксперименте часто возникает ситуация с последовательным воздействием на среду двух лазерных импульсов с задержкой между ними. Это может быть как паразитный предимпульс ввиду

малого контраста лазерной системы [47], так и специально сформированная последовательность импульсов накачки (см. главы 1;2). В этом случае становится важной эволюция лазерной плазмы на временах, много больших длительности импульса.

В данной работе термин “филамент” используется в более широкой трактовке, чем классическое определение. Согласно последнему [48], филаментация - распространение лазерного излучения в среде, при котором самофокусировка компенсирует расходимость, с образованием протяженного плазменного канала. Далее в тексте под филаментом будет подразумеваться протяженная перетяжка лазерного излучения, протяженность которой много больше её диаметра, в которой наблюдается частичная ионизация среды. При этом протяженность таких “филаментов” не превышает одного сантиметра для использованных диаметра и мощности лазерного пучка, а также оптических фокусирующих систем.

Также необходимо обратить внимание, что не всякая частично фотовозбуждённая среда является идеальной плазмой в классическом понимании. Если ввести характерную длину экранировки - радиус Дебая - как $r_D = \sqrt{\frac{T}{4\pi n_e e^2}}$ [49] и плазменную частоту $\omega_{pl} = \sqrt{\frac{4\pi n_e e^2}{m_e}}$, плазма должна удовлетворять следующим условиям:

- $r_D^3 n_e \gg 1$ - достаточная плотность для возникновения коллективных эффектов (условие идеальности),
- $r_D/L \ll 1$ - приоритет внутренних взаимодействий (L - размер плазменной области),
- $\tau \omega_{pl} \gg 1$ - частота столкновений $1/\tau$ много меньше плазменной частоты, где можно сделать оценку $\tau \approx \frac{T^{1.5}}{20n_e}$.

Третий критерий особенно важен в случае роста плотности исходной среды.

Источники с газовой средой могут выдавать ТГц излучение достаточно большой интенсивности и ширины спектра при фемтосекундной лазерной

накачке. Наиболее широко распространены источники, использующие атмосферный воздух [50], что обуславливается их простотой. Ввиду симметрии, нелинейные процессы второго порядка в газах запрещены, и наиболее существенным становится вклад нелинейности третьего порядка. В ТГц газовой фотонике широко применяются две схемы: одночастотная, когда для оптико-ТГц преобразования используются только лазерные импульсы на фундаментальной частоте ω , и двухчастотная, когда наряду с фундаментальной частотой ω в среду фокусируется и излучение второй гармоники 2ω [50]. При этом эффективность источника, использующего только фундаментальную частоту лазерного излучения, невелика. В то же время, было показано, что при наличии внешнего постоянного электрического поля [51] эффективность преобразования даже в одночастотной схеме можно существенно увеличить.

Даже для случая газа генерация ТГц излучения при оптическом возбуждении является чрезвычайно сложным процессом. При фокусировке сверхкоротких импульсов лазерного излучения в среде возникает “световая пуля”, продольный размер которой определяется длительностью импульса и имеет порядок десятка мкм. При достижении определённой интенсивности начинается ионизация газа и образуется фотоиндуцированная плазма, время жизни которой много больше длительности исходного импульса. В зависимости от исходной энергии импульсов и геометрии фокусировки, возможно как формирование протяженного филамента, так и формирование плазмы только в районе перетяжки фокусирующей системы. При этом, за исключением фокусирующих систем с большой числовой апертурой, продольный размер плазменного облака много больше размера “пули”, и разные участки плазменного облака последовательно излучают ТГц импульсы. Таким образом, регистрируемый ТГц сигнал является интегралом по всей длине перетяжки/филамента. В случае ТГц генерации в газовых средах доля ионизированных частиц в плазме обычно много меньше единицы. Поэтому ТГц сигнал имеет вклады как от нейтральных, так и от заряженных частиц плазмы. Наконец, плотность плазмы может достигать критических значений, что приводит к поглощению ТГц излучения в данных областях - вблизи центра филамента.

Всё это приводит к сложной пространственно-частотной структуре ТГц излучения с сильной зависимостью как от параметров среды, так и от параметров лазерного импульса и фокусирующей системы. В качестве примера можно привести коническую диаграмму направленности ТГц излучения с углом раскрытия конуса, зависящим от ТГц частоты [52]. Более подробно экспериментальные исследования плазмы оптического пробоя газов приведены во введении к главе 4. Для газовых сред было разработано несколько широко применяемых теоретических моделей - четырёхволнового смешения и нестационарного фототока - которые описываются в разделе 1.5.

Однако, плотность газов и их нелинейные коэффициенты малы. Поэтому поиск новых сред для оптико-ТГц преобразования при оптическом пробое вещества представляется крайне актуальной задачей. Как известно [35], нелинейные коэффициенты веществ существенно увеличиваются при росте их плотности. Таким образом, для повышения эффективности оптико-ТГц преобразования и модификации пространственно-частотных свойств источников возможны различные стратегии: использование фокусирующих систем с большой числовой апертурой [53—56], повышение средней плотности среды при переходе к жидким средам [57; 58] или же локальной плотности при использовании кластеризованных газовых пучков [59], а также твердотельных мишеней [60; 61]. При этом необходимо сохранять возобновляемость среды после воздействия оптического импульса.

При переходе от газообразной среды к жидкости существенное увеличение плотности и вязкости среды изменяет не только нелинейные коэффициенты, но и гидродинамику плазмы. Кроме того, более существенно проявляются эффекты распространения как ТГц, так и оптических импульсов в среде - дисперсия и поглощение. В отличие от газовых сред, где эти эффекты существенны лишь в самой плазме оптического пробоя, в случае жидкости даже неионизированная среда существенно влияет на распространение импульсов. Однако, в первых работах группы проф. Жанга [57; 58] была показана возможность ТГц генерации даже в очень сильно поглощающей жидкости - воде - при максимальном уменьшении толщины исследуемой среды, чтобы исходный оптический импульс и рождённый ТГц испытывали минимальное влия-

ние среды вне области плазмы. Также, широкополосное ТГц излучение было получено и в прозрачных неполярных жидкостях в протяженных кюветах [62; 63]. В то же время, эти работы носят единичный характер и были опубликованы во время выполнения настоящей диссертационной работы. Более подробно исследования ТГц генерации в жидкости приведены во введении к главе 1.

Для твердотельных мишеней в случае оптического пробоя среды существенной становится деградация вещества под воздействием оптических импульсов. Основным интерес экспериментаторов привлекали металлические поверхности. Для ТГц генерации использовались как гладкие [60], так и шероховатые поверхности металла [64], а также фольги [65] и проволоки [61]. Основную сложность представляла непрозрачность материала для ТГц излучения, а также необходимость его механического перемещения ввиду быстрой деградации свойств. В данной работе впервые используются микрокапли жидкого металла, возобновляемость среды в этом случае достигается формированием последовательности одинаковых капель-мишеней, синхронизированных с лазерными импульсами.

Наконец, в качестве среды можно использовать разреженный ансамбль наночастиц твердотельной плотности - кластеризованный газ. Ввиду особенностей экспериментальной реализации, возможно создание только смеси газовых кластеров и кластеризованного газа - т.н. газо-кластерный пучок. Поскольку средняя плотность мала, эффекты, связанные с распространением излучения столь же незначительны, как и в газовой среде. В то же время, первые работы по генерации ТГц излучения в такой среде [66—72] показали высокий коэффициент преобразования оптической энергии в ТГц и отсутствие насыщения ТГц сигнала при увеличении энергии накачки. Поскольку данная среда представляет собой множество наночастиц, рассредоточенных в пространстве, не возникает проблем с пространственным совмещением лазерного излучения и среды, как, например, в случае микрокапельных мишеней. Ввиду того, что механизм генерации ТГц излучения в газовых кластерах до сих пор является предметом интенсивных обсуждений, одна из глав настоящей работы посвящена экспериментальному исследованию влияния пара-

метров лазерной накачки на свойства генерируемого ТГц излучения. Более подробно свойства ТГц генерации в газо-кластерных пучках приведены во введении к главе 1.

Таким образом, исследования, направленные на оптимизацию среды и методов оптико-ТГц преобразования для повышения его эффективности, **актуальны**.

Таблица 0.3. Различные среды ТГц генерации

№	Среда, номер главы	Характерные продольные × поперечные размеры источника, мм	Плотность среды, г/см ³
1	газ, 4	$\sim 3 \times 0,2$	10^{-3}
2	жидкость, 1	$\sim 1 \times 0,1$	0,8
3	кластеризованный газ, 3	$1,5 \times 0,04$	10^{-4} , локально $\sim 10^{-1}$
4	металл, 2	$\sim 0,05$	7

Применённые в этой работе среды для оптико-ТГц преобразования сведены в табл. 0.3. Среда упорядочены по агрегатному состоянию (средней плотности) и геометрическим параметрам излучающей области взаимодействия оптического излучения с веществом. В работе исследовался широкий класс сред для оптико-ТГц преобразования, начиная от разреженных газов (гл. 4) с переходом к сверхкритической (гл. 4) и обычной жидкостям (гл. 1), ограниченным в объёме микрокапли жидкости (гл. 2), и, наконец, к агрегатам твердотельной плотности - кластеризованному газу (гл. 3).

Целью данной работы является расширение диапазона сред, и условий их применения при разработке импульсно-периодических источников ТГц излучения на основе преобразования фемтосекундного излучения ближнего ИК диапазона в терагерцовое излучение.

Для достижения поставленной цели необходимо было решить следующие **задачи**:

1. Поиск и апробация новых сред для оптико-ТГц преобразования: жидкостей, металлов и газов в различных условиях

2. Оптимизация ТГц источников на основе предложенных сред, оценка вкладов различных физических механизмов в эффективность и параметры ТГц генерации
3. Исследование возможности наблюдения нелинейно-оптических эффектов в предложенных в этой работе средах в ТГц диапазоне частот

Научная новизна:

1. Для генерации терагерцового излучения предложена жидкая среда. В криожидкости - жидком азоте - впервые экспериментально получена генерация терагерцового излучения. Предложена экспериментально подтверждённая физическая модель этого явления.
2. Впервые предсказан эффект изменения состояния поляризации эллиптически поляризованного терагерцового излучения в изотропной центросимметричной среде. Предложена многочастотная экспериментальная схема для исследования этого явления.
3. Предсказано и впервые экспериментально обнаружено явление генерации импульсного терагерцового излучения в жидких металлах. Создан источник терагерцового излучения на основе микрокапель жидких металлов. Предложена двухимпульсная схема оптимизации энергии и выходной поляризации терагерцового излучения.
4. Впервые предложена и экспериментально продемонстрирована возможность увеличения эффективности генерации импульсного терагерцового излучения при оптическом возбуждении газовой-нанокластерной среды путём внесения фазовой модуляции лазерного импульса накачки.
5. Впервые экспериментально исследована зависимость от давления энергии терагерцового излучения, генерируемого в плазме оптического пробоя углекислого газа.
6. Впервые экспериментально исследована диаграмма направленности терагерцового излучения, генерируемого в плазме оптического пробоя

воздуха в зависимости от параметров фокусировки лазерного излучения в области больших числовых апертур фокусирующей системы.

Практическая значимость. Результаты данной работы могут быть использованы для создания эффективных источников импульсного терагерцового излучения. Подобные источники широко применяются в задачах время-разрешенной диагностики бесконтактной проводимости образцов, могут использоваться и для импульсной терагерцовой спектроскопии веществ. Кроме того, возможна диагностика газокластерных струй и субволновых металлических мишеней по поляризационным, пространственным и энергетическим характеристикам испускаемого терагерцового излучения. Поскольку газокластерные струи - перспективный источник рентгеновского излучения, а металлические капли - жесткого ультрафиолетового излучения, дополнительный канал бесконтактной диагностики может повысить эффективность и стабильность данных источников.

Методология и методы исследования. Большая часть работы посвящена экспериментальным исследованиям. В качестве источников оптического излучения применялись лазерные системы субпикосекундной длительности на титан-сапфире с энергией в импульсе до 30 мДж и частотой повторения от 10 до 1000 Гц. Регистрация терагерцового излучения производилась как когерентными методами (импульсная терагерцовая спектроскопия), так и болометрическими, пироэлектрическими и оптоакустическими детекторами мощности. Более подробно экспериментальная техника рассмотрена в приложении А диссертации.

Основные положения, выносимые на защиту:

1. При генерации терагерцового излучения в жидкости существенную роль играет возникающее в ней амбиполярное квазистатическое электрическое поле. Для двухцветной схемы возбуждения коэффициент преобразования энергии лазерного излучения в терагерцовое при оптическом пробое жидкого азота до 10 раз превышает аналогичную величину при оптическом пробое воздуха.

2. Жидкие металлы могут быть источником импульсного терагерцового излучения при взаимодействии с фемтосекундными лазерными импульсами. Одиночная микрокапля жидкого металла диаметром 50 мкм является точечным(субволновым) источником терагерцового излучения. Применение двух фемтосекундных импульсов для фотовозбуждения микрокапель позволяет более чем на 2 порядка увеличить энергию генерируемых терагерцовых импульсов и управлять состоянием поляризации терагерцового излучения.
3. При взаимодействии фемтосекундных лазерных импульсов с газовой кластерной струей наблюдается вклад в терагерцовую генерацию от кластеров и от некластеризованного газа. Для кластерной составляющей оптимальная длительность лазерных импульсов, при которой достигается максимум эффективности оптико-терагерцового преобразования, находится в диапазоне $200 \div 250$ фс.
4. Увеличение числовой апертуры фокусирующей системы для формирования плазмы оптического пробоя в газовой среде в диапазоне от 0,035 до 0,37 приводит к увеличению энергии генерируемого терагерцового излучения до 15 раз и позволяет управлять углом раскрытия конической диаграммы направленности терагерцового излучения в диапазоне от 10 до 55 градусов.

Достоверность результатов обеспечивается рецензированием при публикации в высокорейтинговых научных журналах, а также проведением нескольких серий экспериментов с различными исходными параметрами и экспериментальной реализацией.

Личный вклад.

Автор диссертационной работы внес определяющий вклад в формулировку и постановку задач, выбор методов, проведение экспериментальных исследований и получение основных научных результатов, представленных в диссертационной работе, а также в подготовку научных публикаций и докладов на конференциях по результатам экспериментов. Экспериментальные установки, которые описаны в диссертационной работе и использованы для

получения экспериментальных результатов в диссертации, равно как и экспериментальные результаты, получены автором лично или при определяющем его участии. Кроме того, автор осуществлял обработку результатов экспериментов и участвовал в разработке теоретических моделей для полученных экспериментальных результатов. Содержание диссертации и защищаемые положения отражают персональный вклад диссертанта. В работах, где диссертант указан как контактное лицо, его вклад в подготовку публикации был определяющим.

Вклад соавторов:

Экспериментальные результаты в публикациях, обсуждаемых в гл. 4 в части изменения давления газа - получены в соавторстве с сотрудниками МГУ Ангелуцем А.А., Балакиным А.В., в части изменения числовой апертуры фокусировки - в соавторстве с Есауловым М.Н., Бородиным А.В., Синько А.С.; для гл. 1 - в соавторстве с Балакиным А.В., Кузечкиным Н.А.; для гл. 2 - в соавторстве с сотрудниками ИСАН Лакатошем Б.В., Кривокорытовым М.С.; для гл. 3 - в соавторстве с Балакиным А.В., Кузечкиным Н.А., Есауловым М.Н., Жванией И.А., Джиджоевым М.С.

Теоретические результаты для публикаций, относящихся к гл. 4, получены в соавторстве со Шкуриновым А.П., Котельниковым И.А., Стремоуховым С.Ю., а также с сотрудниками лаборатории Косаревой О.Г.: Пановым Н.А., Шипило Д.Е., Николаевой И.А.; для гл. 1 и 2 - в соавторстве со Шкуриновым А.П., Котельниковым И.А., Кутазом Ж.-Л., Макаровым В.А., Цыгвинцевым И.П.; для гл. 3 - в соавторстве со Шкуриновым А.П., Котельниковым И.А., Смирновым М.Б., Гордиенко В.М.

Апробация работы.

Результаты работы докладывались автором на международных и всероссийских конференциях: 19th International Conference Laser Optics ICLO 2020 (ICLO 2020, Санкт-Петербург, Россия), Advanced Laser Technologies 2019 (ALT 2019, Prague, Czech Republic), 44th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-2019, Paris, France), 3rd International Conference Terahertz and Microwave Radiation: Generation, Detection and Applications (TERA-2018, Нижний Новгород, Россия), Advanced

Laser Technologies 2017 (ALT 2017, Busan, Korea), 41st International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-2016, Copenhagen, Denmark), а также на XVI ссероссийской школе-семинаре «Физика и применение микроволн» имени А.П. Сухорукова («Волны-2017», Кросновидово, Россия), на конкурсе научных работ ФНИЦ "Кристаллография и фотоника" РАН 2019 г. и на научном семинаре кафедры общей физики и волновых процессов физического факультета МГУ им. М.В. Ломоносова.

Публикации автора по теме диссертации

Основные результаты диссертационной работы изложены в 17 печатных работах [73—89], в том числе в 7 [73; 74; 76—80] публикациях в рецензируемых журналах, индексируемых Wos и Scopus, и в 9 [75; 82—86; 88—90] опубликованных тезисах докладов.

Ниже представлен список основных публикаций, на которые опираются Защищаемые положения и Новизна данной диссертации, с разбивкой по главам:

Генерация ТГц излучения в жидких средах, гл. 1:

1. Balakin A. V., Coutaz J.-L., Makarov V. A., Kotelnikov I. A., Peng Y., Solyankin P. M., Zhu Y., Shkurinov A. P. Terahertz wave generation from liquid nitrogen.//Photonics Research. – 2019. – Т. 7. – №. 6. – С. 678-686.[76]
2. Balakin A. V., Garnov S. V., Makarov V. A., Kuzechkin N. A., Obraztsov P. A., Solyankin P. M., Shkurinov A.P., Zhu Y. “terhune-like” transformation of the terahertz polarization ellipse “mutually induced” by three-wave joint propagation in liquid.//Optics letters. – 2018. – Т. 43. – №. 18. – С. 4406-4409.[77]

Генерация ТГц излучения в микрокаплях, гл. 2:

3. Solyankin P. M., Lakatosh B. V., Krivokorytov M. S., Tsygvintsev I. P., Sinko A. S., Kotelnikov I. A., Makarov V.A., Coutaz J.-L., Medvedev V.V.,

Shkurinov A.P. Single free-falling droplet of liquid metal as a source of directional terahertz radiation. //Physical Review Applied. – 2020. – Т. 14. – №. 3. – С. 034033.[79]

Генерация ТГц излучения в кластерных струях, гл. 3:

4. Balakin A. V., Dzhidzhoev M. S., Gordienko V. M., Esaulkov M. N., Zhvaniya I. A., Ivanov K. A., Kotelnikov I. A., Kuzechkin N. A., Ozheredov I. A., Panchenko V. Y., Savel'ev A. B., Smirnov M. B., Solyankin P. M., Shkurinov A.P. Interaction of high-intensity femtosecond radiation with gas cluster beam: Effect of pulse duration on joint terahertz and x-ray emission. //IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology. – 2017. – Т. 7. – №. 1. – С. 70-79.[80]

Генерация ТГц излучения в различных условиях в газовой среде, гл. 4:

5. Andreev A. V., Angeluts A. A., Balakin A. V., Kotelnikov I. A., Minaev N. V., Solyankin P. M., Stremoukhov S. Y., Zhu Y., Shkurinov A. P. THz generation in laser-induced breakdown in carbon dioxide at different levels of gas pressure//IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology. – 2020. – Т. 10. – №. 1. – С. 85-92.[73]
6. Solyankin P.M., Nikolaeva I.A., Angeluts A.A., Shipilo D.E., Minaev N.V., Panov N.A., Balakin A.V., Zhu Y., Kosareva O.G., Shkurinov A.P. THz generation from laser-induced breakdown in pressurized molecular gases: on the way to terahertz remote sensing of the atmospheres of mars and venus//New Journal of Physics. – 2020. – Т. 22. – №. 1. – С. 013039.[74]
7. Shkurinov A.P., Sinko A.S., Solyankin P.M., Borodin A.V., Esaulkov M.N., Annenkov V.V., Kotelnikov I.A., Timofeev I.V., Zhang X.-C. Impact of the dipole contribution on the terahertz emission of air-based plasma induced by tightly focused femtosecond laser pulses//Physical Review E. – 2017. – Т. 95. – №. 4. – С. 043209.[78]

Объем и структура работы. Диссертация состоит из введения, четырёх глав, заключения и четырёх приложений. Полный объём диссертации составляет 164 страницы, включая 57 рисунков и 6 таблиц. Список литературы содержит 227 наименований.

Глава 1

Генерация терагерцового излучения в жидкости. Нелинейно-оптические эффекты при распространении терагерцового излучения в жидком азоте

Глава посвящена нелинейно-оптическому преобразованию в жидких средах, в частности - в жидком азоте (ЖА). Получены основные характеристики ТГц излучения (поляризационные, спектральные, эффективность преобразования) в зависимости от свойств лазерного пучка накачки и толщины слоя жидкости. Показано, что жидкий азот имеет больший коэффициент оптико-ТГц преобразования по сравнению с газообразным азотом. Предложены механизмы ТГц генерации, характерные для жидкостных сред и показан их вклад в ТГц сигнал. Кроме того, показано, что в присутствии мощного излучения накачки возможно нелинейное взаимодействие ТГц и оптических пучков, приводящее к изменению состояния поляризации ТГц излучения. Результаты работы изложены в статьях [76; 77].

1.1 Введение

Линейные свойства жидкостей в ТГц диапазоне частот (спектры показателя преломления и поглощения) изучены для многих веществ [91—93]. Большое количество работ посвящено спектроскопии воды [94; 95], спиртов [93; 96] и других растворителей [97—99]. До недавнего времени жидкости были перспективны для эмульсии биологических растворов и спектроскопии растворённых в них веществ. Однако, за последние десять лет множество работ посвящено нелинейным свойствам жидких сред в ТГц диапазоне частот, а

также оптико-ТГц преобразованию в них.

Различия между газами и жидкостями позволяют предположить, что механизмы и условия ТГц генерации и распространения должны существенно отличаться. По сравнению с газовыми средами, плотность жидкостей намного больше (например, для азота при нормальных условиях плотность составляет $1,25 \cdot 10^{-3} \text{ г/см}^3$, а в жидком состоянии при 77° К $0,8 \text{ г/см}^3$). Ввиду этого в жидкостях нелинейные коэффициенты среды, в частности, $\chi^{(3)}$, должны быть существенно выше, чем в газах, и нелинейный вклад в ТГц сигнал должен возрастать [35]. При ионизации жидкости свободные электроны, образующиеся в ней, имеют гораздо меньшую длину свободного пробега, что должно приводить к уменьшению вклада от переходного фототока ([100], см. раздел 1.5.2).

ТГц генерация в жидкостях за последние 5 лет наблюдалась в ряде работ [57; 58; 62; 63; 101—103]. При этом использовались плёнки и струи [57; 58; 101; 103], а также тонкие трубки с водой [102]. Поскольку вода обладает огромным коэффициентом поглощения для ТГц излучения [104], авторам приходилось существенно ограничивать толщину водной среды, через которую распространялось ТГц излучение, она составляла доли миллиметра. При такой малой толщине среды, авторы были вынуждены применять фокусировку оптическими системами с большой числовой апертурой для создания микроплазмы (метод описан в главе 4). Это позволяло формировать оптический пробой в слое жидкости, и разделять вклады от атмосферного воздуха и воды.

В работе [57] исследовалось излучение одноцветной микроплазмы оптического пробоя в тонкой водяной плёнке. Было показано, что при перемещении области фокусировки оптического излучения относительно водяной плёнки существенно меняется амплитуда и спектральный состав излучения: при фокусировке в плёнку интенсивность излучения растёт (до 1,8 раз по амплитуде электрического поля), а спектр сдвигается в область низких частот. Следует отметить, что при формировании перетяжки перед плёнкой, всё сгенерированное ТГц излучение поглощается в ней. Кроме того, было отмечено влияние фазовой модуляции лазерного импульса (чирпирования): в газовых средах ТГц сигнал максимален в случае спектрально-ограниченного сигнала,

а в водной среде - при длительности импульса ~ 550 фс, при любом знаке линейной модуляции фазы. Это свидетельствует о том, что эффект нельзя объяснить дисперсией в водной плёнке. Поляризация ТГц излучения, близкая к линейной, полученная в данном эксперименте, наряду с импульсным характером профилей электрического поля ТГц излучения (зарегистрированных методом ИТС) свидетельствует о когерентном характере излучения. Наконец, зависимость ТГц мощности от интенсивности оптического излучения была линейной, но наблюдался порог генерации.

В последующей работе той же группы [58] изучался вопрос генерации ТГц излучения в схожей плёнке воды, но в двухцветной схеме возбуждения (раздел 1.5.2). Это позволило увеличить сигнал в случае спектрально-ограниченного импульса (примерно на 1 порядок) и сдвинуть его спектр в область высоких частот, в случае введения фазовой модуляции амплитуда сигнала уменьшалась - скорее всего, ввиду уменьшения коэффициента преобразования в кристалле - удвоителя частоты при падении пиковой интенсивности. Кроме того, было показано, что модуляция разности фаз между импульсами 1 и 2 гармоники позволяет выделить два различных механизма генерации с различной зависимостью ТГц энергии от интенсивности оптического излучения. Модулированная часть сигнала была соотнесена с фототокковой моделью, а немодулированная - с рядом других процессов, например с эффектом нелинейной ponderomotorной силы, которая действует на свободные электроны и индуцирует нелинейный диполь в среде.

Дальнейшие исследования тонких плёнок жидкостей показали влияние угла падения накачки на пространственный профиль ТГц излучения [101], а также возможность дальнейшего увеличения сигнала при изменении жидкости на ацетон или этанол [103].

Авторы работ [62; 63] использовали другой подход - они выбрали жидкости с меньшим поглощением (ацетон, диэтиловый эфир и др. [62], ацетон с наночастицами [63]) и могли использовать протяженные кюветы длиной в десятки мм для формирования плазмы оптического пробоя в жидкости. Используя импульсы малой длительности и высокой интенсивности (50 фс, до 50 мДж)[62] авторам удалось достичь коэффициентов преобразования до 10^{-3} , что суще-

ственно больше, чем достижимо при двухцветной филаментации в воздухе. Однако, был измерен сигнал в крайне широком спектре $0 \div 120$ ТГц, при этом спектр сигнала имел сложную форму, что затрудняет оценку эффективности в более “классическом” ТГц диапазоне.

Происхождение ТГц-излучения от оптического пробоя в жидкостях и механизмы оптико-ТГц преобразования не до конца изучены и требуют дополнительных исследований для объяснения и создания теоретической модели.

Стоит отметить, что в случае жидкостей среда становится оптически более плотной, чем газ, и для двухцветной схемы терагерцовой генерации существенной становится дисперсия. Разница в показателях преломления для первой и второй гармоник приводит к различной скорости распространения импульсов, и через некоторое время они перестают перекрываться пространственно в исследуемой среде. Поэтому, необходимо либо вносить предварительную задержку между импульсами, либо ограничивать длину распространения оптических импульсов в среде.

В настоящей главе исследуется генерация терагерцового излучения из фотоиндуцированной плазмы в жидком азоте (ЖА). Выбор ЖА обусловлен тем, что помимо высокой нелинейности 3-го порядка [105], эта неполярная жидкость имеет умеренное поглощение в видимом и терагерцовом диапазонах частот. Тем не менее, это поглощение, судя по всему, сдвигает терагерцовый спектр, генерируемый в ЖА в область низких частот. Схожий эффект указан в работе [57]. По сравнению с газообразным азотом в аналогичных условиях, форма спектра поглощения ЖА в терагерцовом диапазоне частот шире с большим поглощением на более высоких частотах [106]. Линия поглощения ЖА расположена на частоте 1,5 ТГц, а его коэффициент поглощения составляет около $0,95 \text{ см}^{-1}$.

Для наблюдения нелинейных эффектов необходимо иметь высокую интенсивность излучения. Поскольку в ТГц диапазоне частот длина волны значительно больше, чем в оптическом, минимальная площадь перетяжки пучка при фокусировке в среду возрастает пропорционально квадрату длины волны. Минимальная длительность импульса также увеличивается по сравнению с оптическим диапазоном. Наконец, в настоящее время достижимы

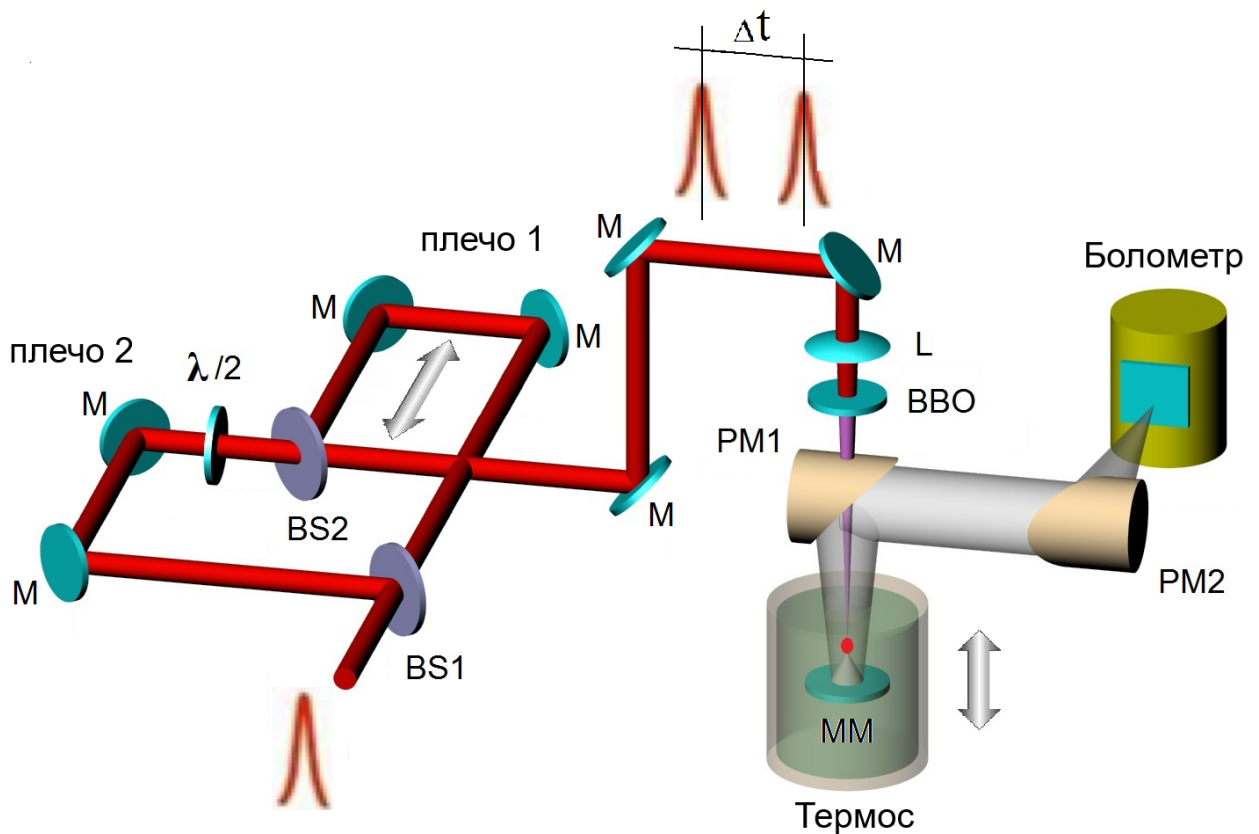
коэффициенты преобразования из оптического в ТГц диапазон на уровне долей процента, что уменьшает и энергию ТГц импульсов. В совокупности, эти факторы приводят к тому, что максимально достижимая пиковая интенсивность для ТГц импульсов на порядки меньше, чем для оптических. Тем не менее, предсказано, что в ТГц диапазоне требуются гораздо меньшие интенсивности для наблюдения нелинейности, чем для более высоких частот [107].

В последние годы множество работ посвящено изучению нелинейных эффектов при распространении ТГц излучения в жидкостях [108—117]. В основном они посвящены эффекту Керра [108; 109; 111; 113—116], эффекты проявляются при напряженностях ТГц поля порядка 0,1 МВ/см. Также, изучалась генерация суммарных и разностных оптических частот в присутствии ТГц излучения [110; 111] и возможности нелинейной ТГц спектроскопии [112].

Нелинейность среды позволяет наблюдать поляризационно - чувствительные эффекты даже в изотропной centrosymmetric среде [118—120], и нелинейная поляризационная оптика стала одной из самых интересных частей нелинейной оптики [121—126]. Существует классический эффект, который хорошо известен для изотропной среды - самовращение эллипса поляризации, которое усиливается с увеличением степени эллиптичности поляризации и интенсивностью падающей волны и полностью исчезает для линейно поляризованного света [118]. Для наблюдения эффекта вращения эллипса поляризации излучения при его распространении в изотропной среде [118] требуются достаточно высокие интенсивности, которые недостижимы в ТГц импульсе. Однако, в присутствии сильных волн видимого излучения, когерентно связанных с ТГц-волной [127], эффект вращения эллипса поляризации слабой волны ТГц излучения может быть значительно увеличен и наблюдаться экспериментально.

1.2 Экспериментальная установка

Экспериментальная установка изображена на рис. 1.1. Источником оптического излучения служил регенеративный усилитель на Ti:Sa . Измерения проводились на нескольких лазерных системах, данные по ним приведены в при-



М - зеркала диэлектрические; ММ - металлизированное зеркало; BS - делители пучка 1:1; $\lambda/2$ - полуволновая пластинка; L - фокусирующая линза; РМ - внеосевые параболические зеркала; ВВО - кристалл β - бората бария.

Рисунок 1.1. Схема экспериментальной установки для исследования ТГц генерации в жидкостях.

ложении А.1 в таблице А.1 (источники 2 и 3).

Энергия лазерных импульсов контролировалось аттенуатором, собранным на основе $\lambda/2$ фазовой пластинки, установленной во вращающемся держателе, в паре с тонкой поляризационной пластиной, установленной под углом Брюстера или же призмой Глана-Тейлора. Лазерное излучение при помощи системы диэлектрических зеркал направлялось по нормали к свободной поверхности жидкого азота в термоизолированном сосуде. Высота сосуда, т.е. уровень поверхности раздела жидкий азот-атмосфера могла регулироваться при помощи линейного транслятора. Для фокусировки излучения применялась плоско-выпуклая линза из кварца КУ-1 с фокусным расстоянием 110 мм, после которой устанавливался нелинейный кристалл β -барий бората (ВВО)

толщиной 300 мкм. Для достижения максимального сигнала положение кристалла (расстояние от линзы до кристалла, азимутальный угол и углы наклона кристалла) юстировались в отсутствие жидкого азота в сосуде в плазме оптического пробоя воздуха. Двухцветное излучение проходило через отверстие в параболическом зеркале РМ и фокусировалось в исследуемую среду: жидкий азот либо атмосферный воздух, в зависимости от высоты подъёма сосуда. Внутри сосуда было смонтировано плоское металлизированное зеркало ММ с отверстием диаметра 1 мм для уменьшения тепловыделения на зеркале при его нагреве оптическим излучением, прошедшим область перетяжки. Расстояние от зеркала до перетяжки фиксировалось в диапазоне $8 \div 10$ мм. ТГц излучение, отраженное от зеркала, коллимировалось внеосевым металлизированным параболическим зеркалом РМ1 с фокусным расстоянием 50 мм и апертурой 25 мм. Далее, ТГц излучение направлялось на детектор – кремниевый болометр, работающий при температуре жидкого гелия (см. табл. А.2). Для отсекающего оптического излучения применялась система фильтров – тефлон, кремний, затемнённый полипропилен и встроенные фильтры болометрического детектора с полосой пропускания $0,1 \div 3$ ТГц или $0,1 \div 20$ ТГц. Спектральные характеристики фильтров приведены на рис. 4.9. В экспериментах верхняя частота спектра сигнала была ограничена 6 ТГц, что связано с поглощением тефлонового фильтра, установленного перед системой детектирования.

В отверстие в ММ проходил не только лазерный луч накачки, но и часть ТГц в приосевой области с телесным углом $5,7^\circ$. Максимальное значение телесного угла светосбора терагерцового излучения, который ограничивался парой РМ1 и РМ2, может быть оценен как $28,1^\circ$. Таким образом, система светосбора ТГц импульсов, использованная в эксперименте, собирает излучение, генерируемое в осевой конус между телесными углами $5,7^\circ \div 28,1^\circ$.

Для фокусировки излучения в детектор использовались либо линза из полипропилена с фокусным расстоянием 100 мм, либо внеосевое металлизированное параболическое зеркало РМ2. Для анализа поляризационных и спектральных свойств излучения применялись соответственно проволочный поляризатор и интерферометр Майкельсона, описанные в приложении

А.1 . Поляризация входного оптического излучения первой гармоники была линейной, плоскость поляризации расположена перпендикулярно плоскости рис. 1.1. После прохождения кристалла ВВО, помимо появления излучения на частоте второй гармоники, исходное излучение меняло свою поляризацию ввиду двулучепреломления в нелинейном кристалле. Для оценки состояния поляризации оптического излучения применялся анализатор на базе призмы Глана-Тейлора, и, в случае второй гармоники, синего стеклянного светофильтра СЗС21.

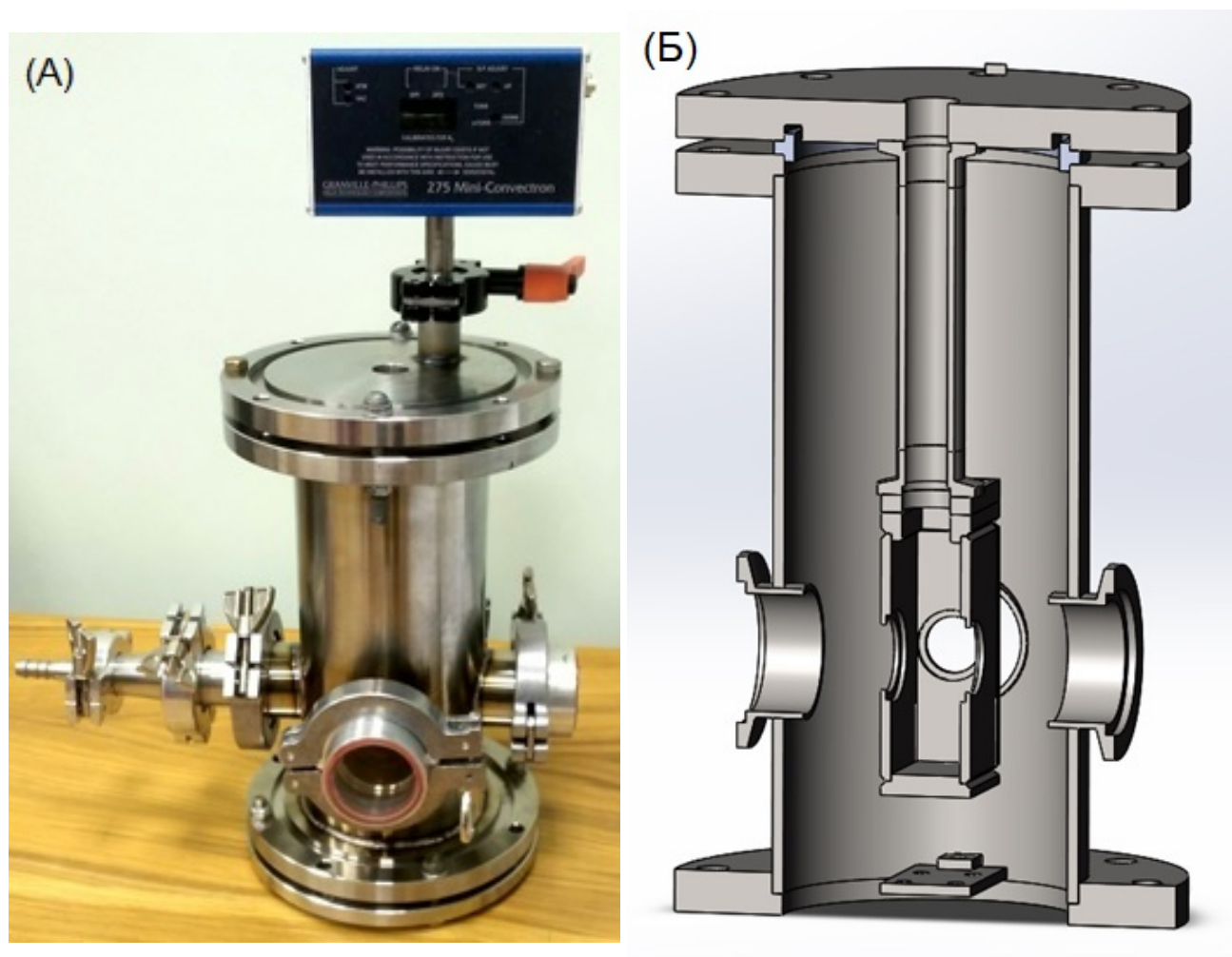
Для исследования изменения терагерцовой поляризации при взаимном распространении трёх пучков ТГц излучение генерировалось в плазме оптического пробоя воздуха над поверхностью жидкого азота, и распространялось совместно с излучением 1-й и 2-й гармоник. Искра оптического пробоя располагалась в 3.5 мм от поверхности криожидкости, таким образом, суммарный путь ТГц излучения сквозь жидкий азот составлял 13 мм.

При исследовании динамики фотонаведённой модификации жидкости использовалась дополнительная оптическая схема. Интерферометр Майкельсона создавал два лазерных импульса и задержка между этими двумя импульсами изменялась путем изменения длины оптического пути одного из плеч интерферометра (обозначено “плечо 1” на рис. 1.1) при помощи моторизованного транслятора. На выходе интерферометра два импульса распространялись соосно, а затем фокусировались в изучаемую среду. Для увеличения точности применялось многократное усреднение измерений сгенерированного терагерцового сигнала, которое помогало в подавлении возможного фазового джиттера между двумя взаимодействующими лазерными импульсами при их распространении через различные плечи интерферометра Майкельсона. Таким образом обеспечивалась хорошая воспроизводимость измеренных данных. В этом эксперименте ТГц импульсы генерировались от фотоиндуцированной плазмы в одноцветной схеме (нелинейное взаимодействие $\omega - \omega + 0$ и двухцветной схеме $\omega + \omega - 2\omega$ взаимодействие, см. раздел 1.5.4).

Жидкий азот, использованный в экспериментах, получался из сжатого атмосферного воздуха при помощи мембранной азотной установки. Чистота криожидкости была порядка 98%.

1.3 Экспериментальные результаты и их интерпретация

1.3.1 ТГц свойства жидкого азота



(а) Фотография кюветы, (б) схема кюветы.

Рисунок 1.2. Кювета для измерения спектральных свойств ЖА.

Для проверки пригодности ЖА к экспериментам с ТГц излучением были проведены измерения его спектральных свойств в ТГц диапазоне частот методом ИТС. Для этого была изготовлена специальная кювета (см рис. 1.2), состоящая из внутренней ёмкости с ЖА и внешней колбы. Пространство между ёмкостями откачивалось форвакуумным насосом до давления в единицы торр. Это позволило избежать выпадения инея на окнах кюветы, и существенно снизить поток тепла и кипение ЖА. Дополнительно, во время измерения стравливающий клапан из внутренней кюветы закрывался, что повышало давление во внутренней колбе и прекращало кипение ЖА. Окна

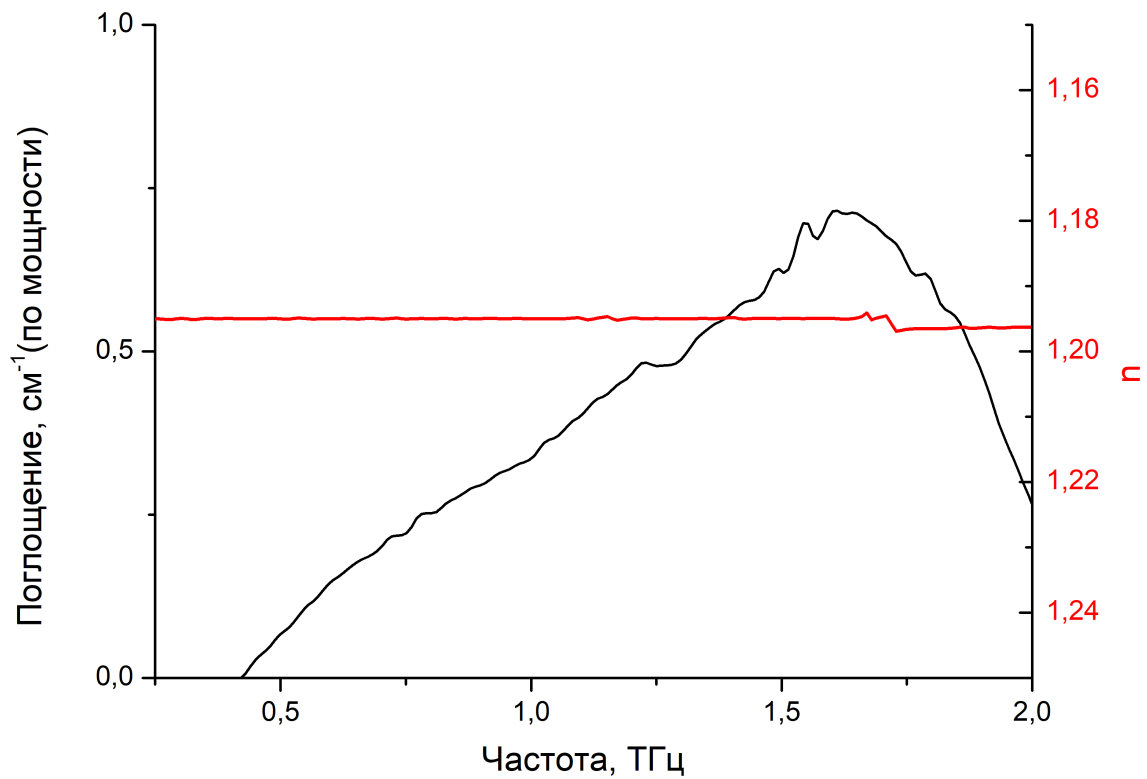


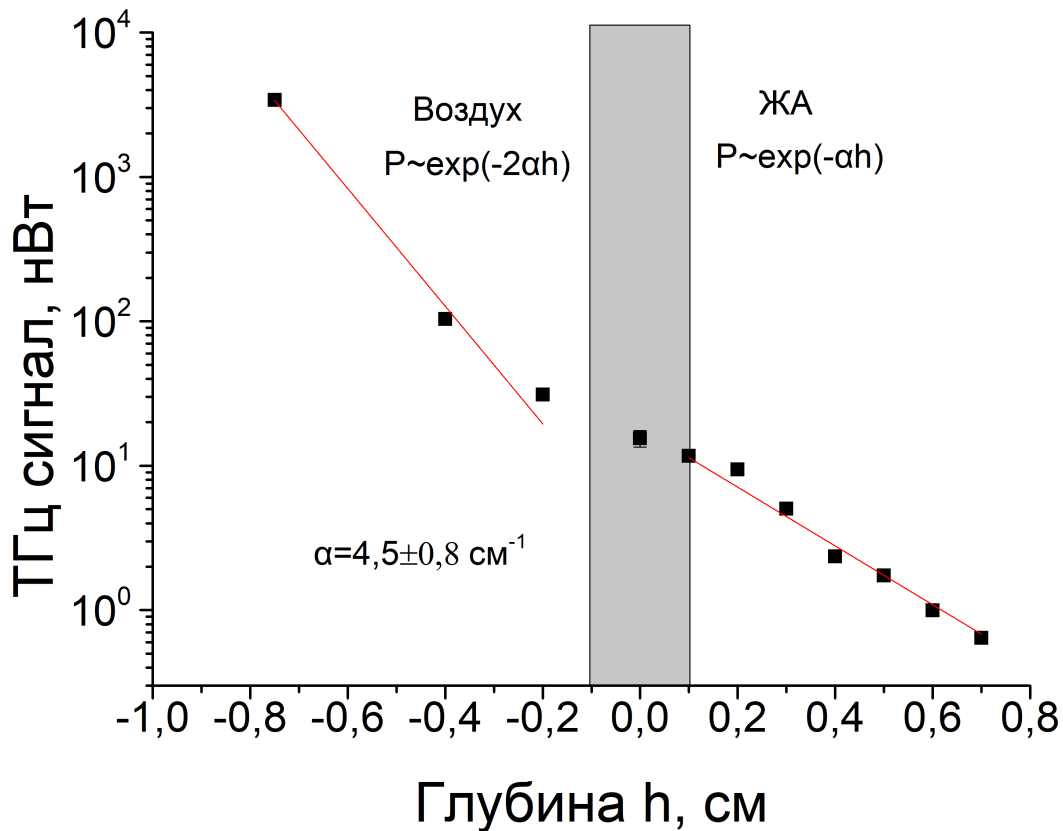
Рисунок 1.3. Спектр показателя преломления и поглощения для ЖА в ТГц диапазоне частот, полученный методом THz-TDS

внутренней и внешней кюветы были изготовлены из кристаллического кварца z-среза, прозрачного для оптического и ТГц излучения и не приводящего к двулучепреломлению.

Расстояние между окнами внутренней колбы (толщина слоя ЖА) составляло 19 мм. Полученные спектры преломления и поглощения приведены на рис. 1.3. Показатель преломления слабо изменяется в диапазоне $0.25 \div 2.0$ ТГц, а для коэффициента поглощения показано наличие широкого пика в районе 1,7 ТГц с максимальной амплитудой $0,75 \text{ см}^{-1}$. Полученные результаты качественно и количественно близки к ранее опубликованным [106].

1.3.2 Эффективность оптико-ТГц преобразования

Положение перетяжки лазерного луча относительно поверхности ЖА при оптико-ТГц преобразовании в нём сильно влияет на энергию терагерцового импульса. В этой работе лазерный луч фокусируется с помощью линзы



Нулевое значение по оси абсцисс соответствует поверхности ЖА.

Энергия терагерцового импульса измерена в двухцветной схеме возбуждения (синие точки на рис.1.8).

Рисунок 1.4. Зависимость энергии терагерцового импульса от положения перетяжки h по отношению к уровню поверхности ЖА.

с фокусным расстоянием $F=11$ см, для которого рэлеевская длина, соответствующая гауссовой перетяжке, может быть оценена как 500 мкм [128]. Это означает, что сфокусированный в воздухе и особенно в ЖА луч хорошо локализован. Кроме того, визуально не наблюдалось формирования протяженного филамента.

На рисунке 1.4 показана энергия терагерцового импульса в зависимости от положения h фокуса относительно поверхности ЖА. Положения перетяжки ниже нуля (где ноль - уровень ЖА) соответствуют генерации терагерцового излучения в воздухе (над поверхностью ЖА), в то время как положительное положение перетяжки соответствует терагерцовой генерации в ЖА (см. экспериментальную установку на рис. 1.1). В обоих случаях наблюдается за-

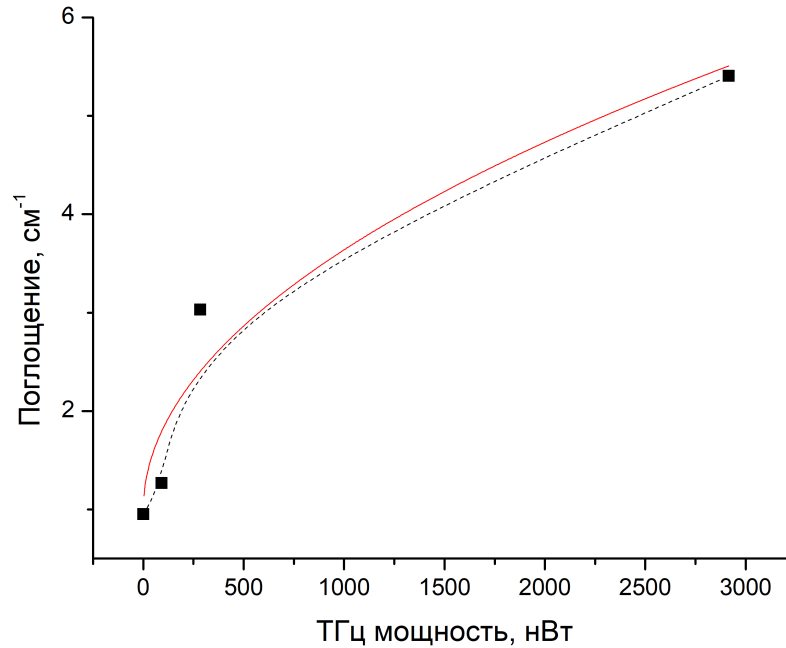
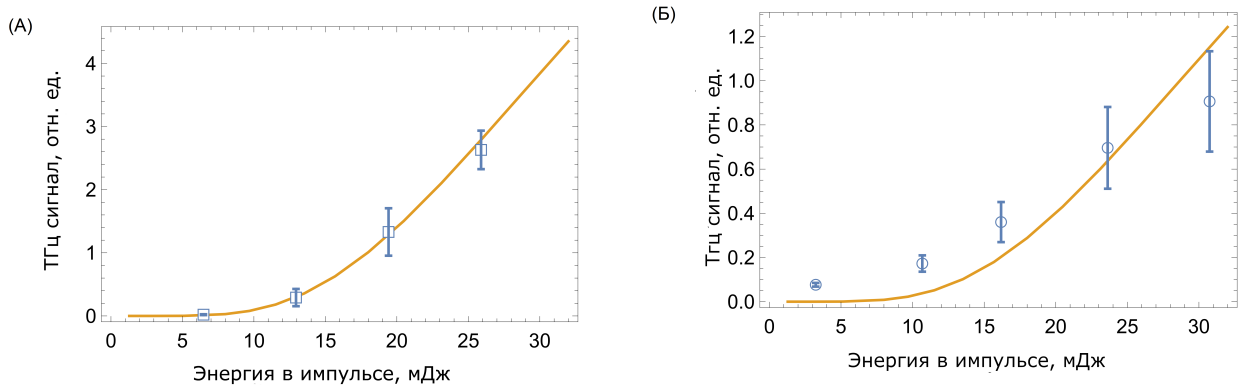


Рисунок 1.5. Зависимость затухания терагерцового сигнала в ЖА от его первоначальной мощности.

тухание генерируемого терагерцового сигнала по мере его распространения в ЖА. Если мы пренебрегаем оптическими потерями в ЖА и примем во внимание затухание терагерцового излучения в нем, экспериментальная зависимость будет выглядеть два экспоненциальных спада со сглаженным сдвигом вблизи поверхности ЖА. Это связано с отношением между положением перегородки h и суммарным терагерцовым путём в ЖА l : для $h < 0$; $l = 2 \cdot (h + 0,8)$, где 0,8 см - расстояние между плоским зеркалом и точкой фокусировки (см. рис. 1.1). Для $h > 0$; $l = h + 1,6$, и аналогичные расчеты приведут к значению экспоненты, которая в два раза меньше, чем при $h < 0$. Зависимость такого рода наблюдалась экспериментально, и приведена на рис. 1.4. Используя эти данные, можно оценить коэффициент поглощения терагерцового излучения в ЖА равным $4,5 \pm 0,8 \text{ см}^{-1}$. Это значение выше, чем $0,95 \text{ см}^{-1}$ в работе [106], и также выше полученного на рис. 1.3. Можно предположить, что это связано с нагревом или каким-то нелинейным процессом из-за больших пиковых мощностей оптического и терагерцовых импульсов. Сдвиг в экспериментальных зависимостях на уровне поверхности ЖА может быть отнесен к различной эффективности оптико-терагерцового преобразования в воздухе



(а) перетяжка расположена в воздухе; (б) точка фокусировки находится в жидком азоте. Точки с ошибками показывают экспериментальные данные, а сплошные линии соответствуют теоретической модели.

Рисунок 1.6. Излучаемая ТГц энергия в зависимости от энергии лазерных импульсов

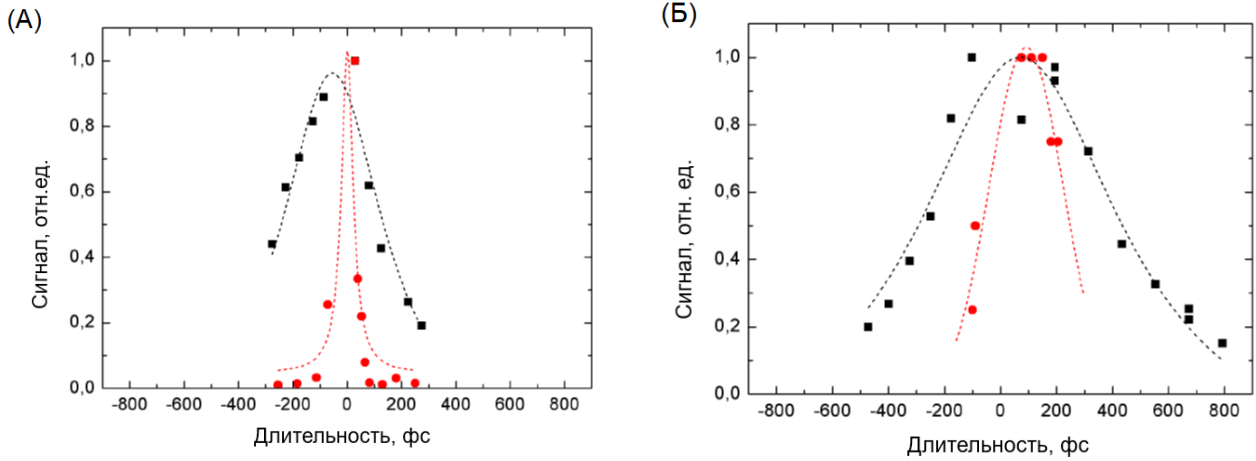
и в ЖА. Учитывая погрешность определения положения поверхности ЖА, можно оценить увеличение эффективности ТГц генерации в ЖА в $4 \div 10$ раз относительно воздушной среды. Кроме того, необходимо также учитывать вклад дополнительной нелинейности поверхности ЖА и потери на отражение (и рассеяние) фемтосекундного лазерного излучения на поверхности ЖА. Наконец, рассмотренное в разделе 1.5.1 разбегание двух импульсов накачки также влияет на результат, особенно в случае двух пучков и двухцветной схемы.

Аналогичные приведённым на рис. 1.4 зависимости были измерены для нескольких типов лазерных систем. Можно отметить, что при генерации ТГц излучения в плазме оптического пробоя воздуха коэффициент затухания излучения зависит от его первоначальной мощности, причём эта зависимость носит нелинейный характер (см. рис. 1.5). В то же время, возможно воздействие более мощного оптического излучения, которое влияет на распространение ТГц импульсов через нелинейность среды, аналогично эффекту, описанному в разделе 1.4.

Для случаев двухцветной схемы возбуждения была измерена зависимость ТГц мощности от энергии лазерных импульсов для лазерной системы 3 (см. табл. А.1). На рис. 1.6 (а) и 1.6 (б) представлены экспериментальные резуль-

таты для воздуха и ЖА. Анализ этих зависимостей приводится в разделе 1.5.

1.3.3 Влияние длительности импульса на эффективность оптико-ТГц преобразования



(а) 2 мДж/импульс, (б) 20 мДж/импульс. Красная кривая соответствует случаю воздушной плазмы, чёрная - ЖА, глубина 3,5 мм.

Рисунок 1.7. Влияние длительности импульса на выход ТГц излучения для двух типов лазерных систем.

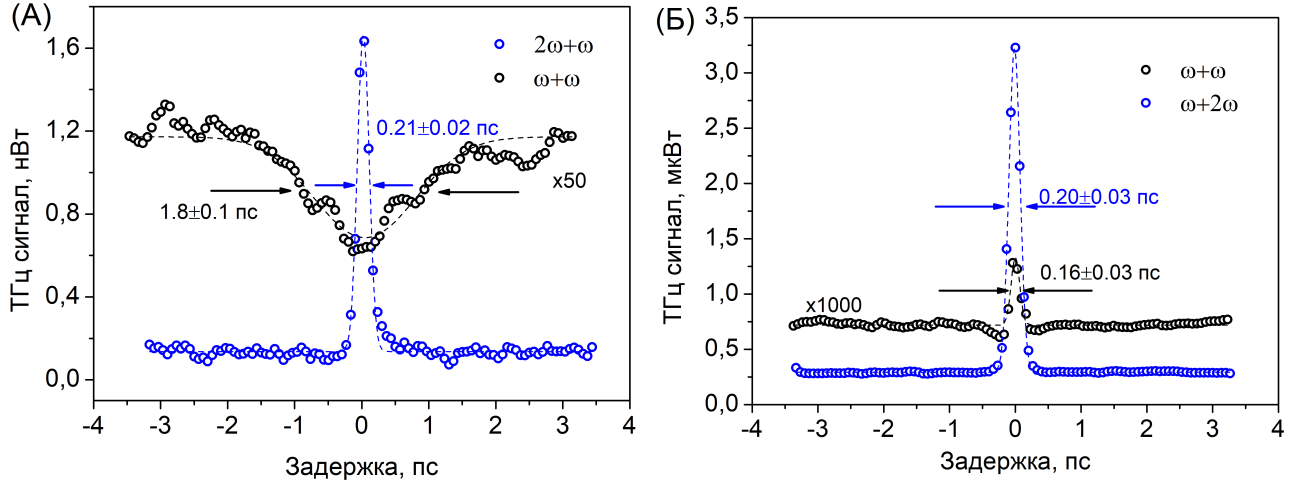
Поскольку в случае полярных жидкостей (например, воды), а также при генерации ТГц излучения в газовой-кластерных пучках максимум эффективности оптико-ТГц преобразования наблюдался не для спектрально ограниченных импульсов (что ожидаемо в случае газообразных сред), а для некоторой оптимальной длительности, вне зависимости от знака линейной фазовой модуляции импульсов, в настоящей работе данный эффект проверялся для ЖА. Измерения проводились для двух различных интенсивностей накачки. Результаты приведены на рис. 1.7. Можно отметить, что зависимость ТГц выхода от длительности импульса в случае ЖА (чёрная кривая) имеет большую ширину по сравнению со случаем воздушной плазмы (красная кривая). В то же время, для ЖА характерен единственный максимум распределения, примерно соответствующий минимальной длительности импульса. Незначительный сдвиг оптимальной длительности от минимальной можно объяснить групповой дисперсией оптического импульса в плотной среде.

1.3.4 Измерения с временным разрешением

В дополнение к измерению зависимости эффективности ТГц генерации от длительности импульса накачки была проведена серия экспериментальных исследований зависимости ТГц сигнала из ЖА от времени задержки Δt между двумя лазерными импульсами при их фокусировке на разных глубинах ниже или выше поверхности ЖА. ТГц сигнал от ЖА сравнивался с генерируемым в воздухе при одинаковых условиях возбуждения. Экспериментальные результаты представлены на рис. 1.8. При нулевом времени задержки Δt два лазерных импульса попадают на образец одновременно, отрицательные значения Δt означают, что лазерный импульс, который проходит через плечо 1 доходит до перетяжки вторым. Поляризации двух лазерных импульсов одинаковы. Энергии лазерных импульсов от плеч 1 и 2 равны 1,25 мДж и 1,20 мДж соответственно. Были проведены серии экспериментов с одноцветным и двухцветным взаимодействием.

Зависимости энергии терагерцового сигнала, генерируемого в ЖА, от задержки между оптическими импульсами показаны на рис. 1.8 (а). Они были измерены, когда перетяжка оптического излучения располагалась на глубине 4,5 мм ниже поверхности ЖА. Следует отметить, что зависимости ТГц энергии от задержки, измеряемые для случаев фокусировки на разных глубинах, имели одинаковый вид, поэтому представлены только результаты только для одной глубины. Аналогичные кривые для генерации в плазме воздушного пробоя воздуха приведены на рис. 1.8 (б).

В случае одноцветной схемы форма зарегистрированных кривых значительно меняется при переходе от ЖА к воздуху: сигнал из воздуха имеет сильный пик в $\Delta t = 0$, в то время как сигнал из ЖА - минимум при $\Delta t = 0$. Кроме того, провал шире пика: полная ширина на половине максимума (FWHM) пика (терагерцовый сигнал, генерируемый в воздухе) составляет около 150 фс, а FWHM провала (сигнал, генерируемый в ЖА) увеличивается до $\approx 1,8$ пс. Как видно на рис. 1.8, терагерцовая мощность из ЖА достигает максимального уровня, когда задержка между лазерными импульсами больше чем $\sim 2 \div 4$ пикосекунд, то есть превышает длительность каждого лазерного импульса в несколько раз.



(а) ЖА: одноцветная (черный) и двухцветная (синий) схемы. (б) Воздух: одноцветная (черный) и двухцветная (синий) схемы. Каждая кривая аппроксимированна гауссовым пиком, чтобы получить значение $FWHM$.

Рисунок 1.8. Зависимость ТГц сигнала от временной задержки между лазерными импульсами.

На основе теории, изложенной в разделе 1.5, можно предложить следующее качественное объяснение полученных результатов: первый импульс создает плазму в ЖА и одновременно генерирует ТГц сигнал при помощи нелинейного процесса 2-го порядка ($\omega - \omega = 0$). После этого появляется амбиполярное поле из-за кулоновского взрыва (диффузия свободных электронов в сторону внешних областей плазмы, в то время как на столь малых временах ионы азота могут рассматриваться как неподвижные). Вторым импульс поступает в среду с временем задержки Δt (см. рис. 1.9(а)).

Если Δt больше времени жизни плазмы, второй импульс возбуждает ЖА, который вернулся в свое основное (исходное) состояние. И первый, и второй импульсы генерируют одинаковые терагерцовые сигналы, которые просто суммируются при регистрации ТГц энергии. Если же Δt меньше времени жизни плазмы, но все же больше, чем время жизни амбиполярного поля, плазма нейтральна. Вторым импульс генерирует ТГц сигнал при помощи нелинейного эффекта 2-го порядка ($\omega - \omega = 0$), но в плазме, а не в невозбужденном ЖА. Можно ожидать, что ТГц сигнал будет больше, чем в ЖА, из-за вкладов как связанных, так и свободных электронов, но разница должна быть не такой большой. При более малых временах задержки

амбиполярное поле все ещё существует в плазме. ТГц генерация происходит за счёт нелинейного процесса 3-го порядка, который сожержит ambiполярное поле через взаимодействие $\omega - \omega + 0 = 0$. Можно отметить, что ТГц генерация за счёт нелинейного процесса 2-го порядка $\omega - \omega = 0$ также даёт свой вклад в суммарный ТГц сигнал. Однако, ввиду того, что плазма практически центральносимметрична, преобладают нелинейные процессы третьего порядка.

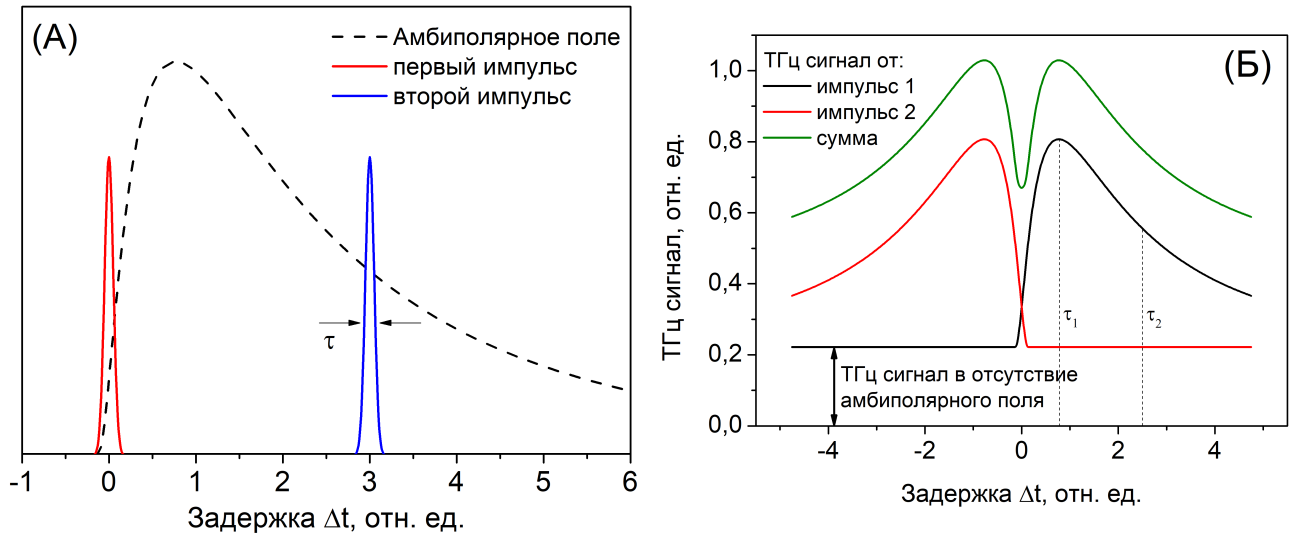
Наконец, в случае малых задержек, сопоставимых с длительностью лазерного импульса, оба импульса взаимодействуют с одинаковой средой в результате нелинейного эффекта 2-го порядка, поскольку ambiполярное поле ещё не успело сформироваться. ТГц сигнал, таким образом, получается слабее, чем при наличии ambiполярного поля. Тем не менее, он больше (в два раза), чем при очень большой задержке, потому что суммарное лазерное поле в ЖА в два раза больше, чем в одиночном лазерном импульсе.

Схематичное представление такой картины взаимодействия двухимпульсного сигнала с ЖА приведено на рис. 1.9. Когда время регистрации меньше времени жизни ambiполярного поля, спада сигнала на больших временах не наблюдается (см рис. 1.8(а)). Таким образом, можно заключить, что время жизни ambiполярного поля больше нескольких пикосекунд. Согласно этому объяснению, ширина провала при временах задержки $\Delta t \sim 0$ соответствует времени установления ambiполярного поля, т.е. времени, когда кулоновская сила, обусловленная именно этим полем, компенсирует кулоновский взрыв. В данном случае ширина в FWHM провала составляет около 2 пс.

На рис. 1.8 (а) приведены кривые ТГц сигнала из ЖА в случае одноцветной (черные кружки) и двухцветной (синие кружки) схем возбуждения. В последнем случае интенсивность ТГц излучения на 1,5 порядка больше, чем в одноцветной, а FWHM пика при $\Delta t \approx 0$ близка к наблюдаемой для генерации ТГц излучения в воздухе (рис. 1.8(б)).

1.3.5 Оптимизация положения нелинейного кристалла

Для двухцветной схемы оптического возбуждения без разделения пучков первой и второй гармоники изменение положения кристалла ВВО влияет на

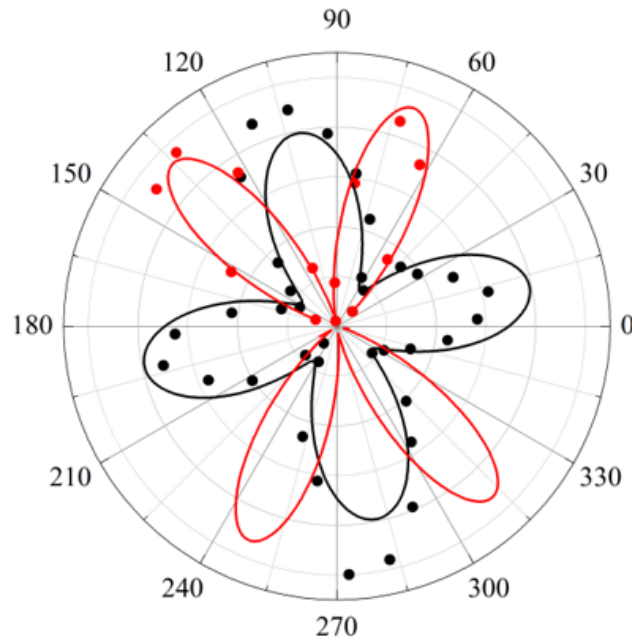


(а) Формирование поля первым импульсом и зондирование вторым; (б) суммарный ТГц сигнал от двух импульсов с переменной задержкой. τ соответствует длительности оптического импульса, а τ_1 и τ_2 соответствуют характерным временам формирования и распада амбиполярного поля.

Рисунок 1.9. Схематическое представление влияния амбиполярного поля на ТГц сигнал.

множество характеристик выходного излучения: эллиптичность и углы поворота главных осей эллипсов поляризации для первой и второй гармоники, а также эффективность преобразования из первой во вторую гармонику и задержку между импульсами. Поскольку зависимость носит комплексный характер, необходимо тщательное теоретическое моделирование процесса генерации второй гармоники с последующей генерацией ТГц излучения для различной мощности накачки и ориентации нелинейного кристалла. В то же время, можно провести сравнение зависимости ТГц сигнала для двух различных сред при вращении нелинейного кристалла. В случае схожести механизмов генерации, зависимости должны качественно совпадать.

Ввиду этого для случаев воздушной плазмы и генерации в ЖА в двухцветной схеме были измерены мощности ТГц сигнала в зависимости от азимутального угла кристалла (рис. 1.10), а также состояния поляризации оптической накачки и ТГц излучения для оптимальных углов кристалла для обеих сред (рис. 1.11. В отличие от воздушной плазмы, где поляризация ТГц



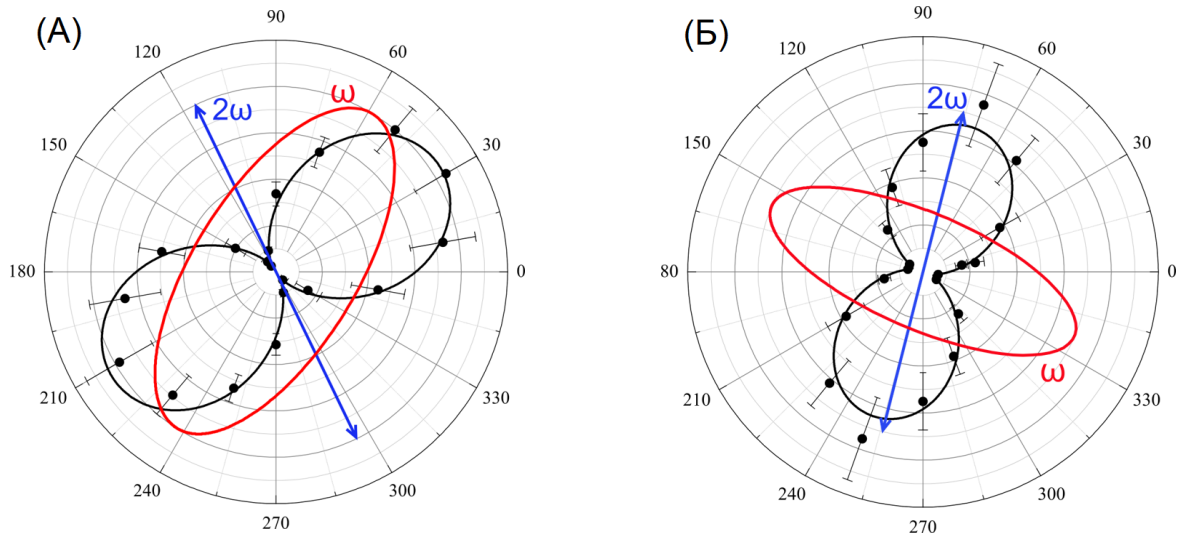
Точки - экспериментальные данные, сплошная кривая - аппроксимация. Чёрные кривые соответствуют случаю воздушной плазмы, красные - ЖА.

Рисунок 1.10. Зависимость эффективности ТГц генерации от угла поворота нелинейного кристалла.

излучения близка к направлению поляризации первой гармоники, для ЖА направление ТГц поляризации хорошо совпадает со второй гармоникой, а поляризации оптических импульсов на входе в среду практически ортогональны.

1.4 Особенности взаимодействия ТГц излучения с жидкостями. Поляризационные свойства ТГц излучения при его распространении в жидком азоте

Для исследования преобразования поляризации ТГц импульсов при совместном распространении с мощными оптическими в нелинейной среде (ЖА) в качестве источника ТГц излучения был использован оптический пробой в воздухе в двухцветной схеме [129]. При этом фемтосекундный лазерный импульс (ω) проходит через кристалл удвоения частоты для генерации импульса второй гармоники (2ω), а затем эти два импульса смешиваются для получения газовой плазмы. После перетяжки лазерные пучки на частотах ω , 2ω



(а) воздух, (б) жидкий азот.

Рисунок 1.11. Состояния поляризации импульсов накачки и ТГц излучения для точек максимальной эффективности преобразования.

и ω_{THz} распространяются коаксиально и синхронизируются во времени. Хотя диаметр филамента намного меньше, чем длина волны ТГц излучения, ТГц импульс может распространяться внутри филамента, а не подвергаться естественной дифракции в воздухе [130]. При этом использовалась описанная в разделе 1.2 экспериментальная установка, однако не формировались два сдвинутых во времени пучка, а источником лазерного излучения служила лазерная система 2 (см. табл. А.1).

Можно предположить, что при дальнейшем распространении оптические и ТГц волны могут влиять друг на друга из-за нелинейного взаимодействия. Для наблюдения этого взаимодействием сразу после перетяжки, генерирующей ТГц излучение, была помещена среда, нелинейность которой значительно превышает нелинейность воздуха - ЖА.

Было проведено два эксперимента по взаимодействию волн ω , 2ω и ω_{THz} . В первом эксперименте генерируемое ТГц излучение распространялось только по воздуху. Во втором эксперименте в термоизолированный сосуд заливался ЖА, в который было погружено плоское зеркало М, а перетяжка располагалась на 3,5 мм выше уровня поверхности ЖА. В этом случае генерируемое ТГц излучение проходило частично через воздух и частично через слой ЖА толщиной 13 мм. Следует, однако, отметить, что (а) после перетяжки опти-

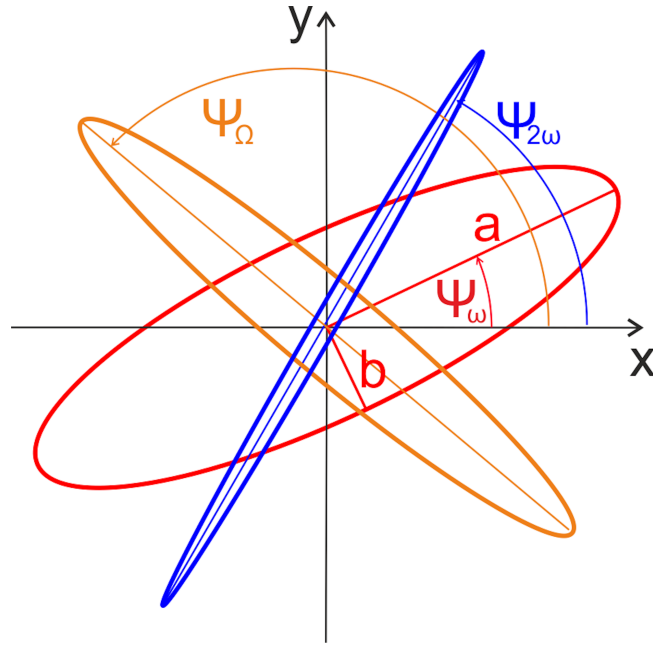
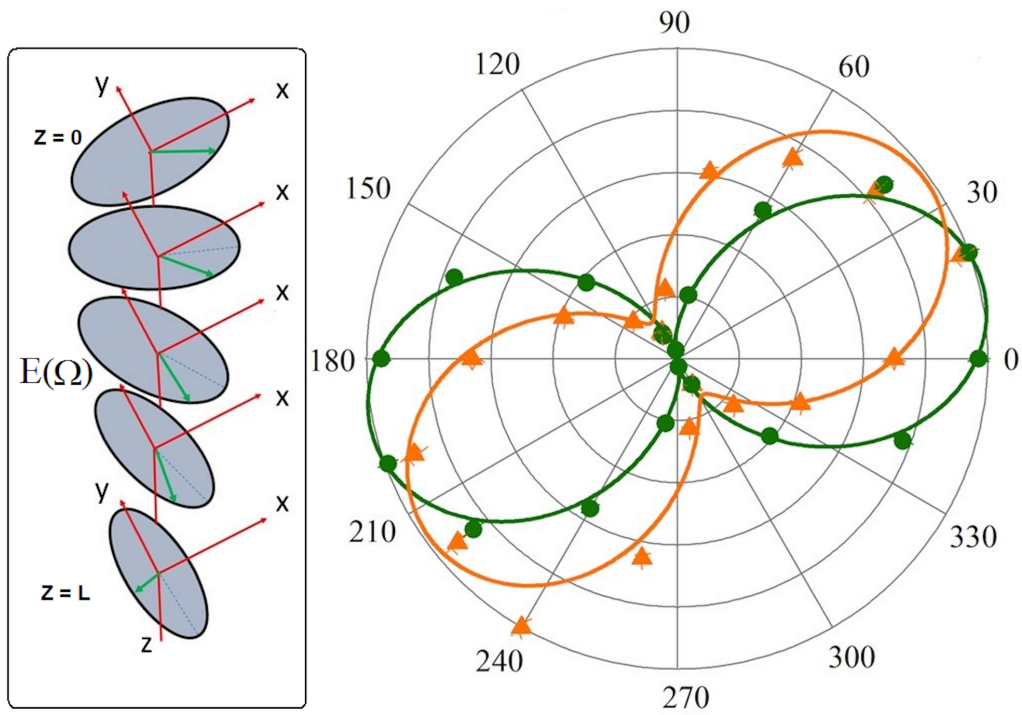


Рисунок 1.12. Система координат для поляризационных измерений. Обозначения углов см. в тексте.

ческие и ТГц пучки начинали расходиться, при этом площадь пучка росла, а пиковая интенсивность падала пропорционально квадрату расстояния от перетяжки и (б) ввиду дисперсии среды и меньшей длительности импульсов, чем рассмотрено в разделе 1.5.1, расстояние, на котором оптические импульсы перекрывались пространственно, составляло порядка 2 мм. В то же время, ввиду близких значений показателя преломления для двух гармоник оптического излучения и ТГц излучения, а также большей длительности ТГц импульса, можно считать, что ТГц импульс совпадал с оптическими на всей длине взаимодействия.

В обоих экспериментах кристалл ВВО был отрегулирован так, чтобы добиться максимальной энергии ТГц излучения из плазмы оптического пробоя воздуха. Однако, при вращении кристалла ВВО происходит изменение состояния поляризации первой гармоники. В проведённых экспериментах после прохождения через кристалл ВВО основное излучение приобретало эллиптическую поляризацию со степенью эллиптичности $M_\omega = \frac{|E_+(\Omega)|^2 - |E_-(\Omega)|^2}{|E_+(\Omega)|^2 + |E_-(\Omega)|^2} = 0,97$ и главной осью угла эллипса $\Psi_\omega = 17,0^\circ$, вторая гармоника была почти линейно поляризованной ($M_{2\omega} \approx 0$) под углом $\Psi_{2\omega} = 132,8^\circ$. Обозначения, используемые для характеристики поляризационных состояний излучений в эксперименте, показаны на рисунке 1.12.



Измерения проведены при энергии импульса 2,5 мДж и длительности импульса 30 фс.

Рисунок 1.13. Вращение эллипса поляризации ТГц излучения после распространения через ЖА.

Полученные результаты показаны на рисунке 1.13. Зеленые точки и кривая показывают состояние поляризации ТГц луча, распространяющегося по воздуху без ЖА. ТГц луч имел эллиптическую поляризацию со степенью эллиптичности $M_{\Omega} = 0,323$, угол поворота главной оси эллипса Ψ_{Ω} отклонён на $14,2^{\circ}$ от горизонтали. Оранжевые треугольники и линия показывают состояние поляризации ТГц-пучка, распространяющегося частично через воздух и частично через слой ЖА. После прохождения через слой ЖА ТГц луч по-прежнему сохраняет эллиптическую поляризацию, но степень эллиптичности M_{Ω} увеличивается до 0,565. Угол ориентации главной оси эллипса Ψ_{Ω} увеличивается до $33,2^{\circ}$, что на 19° больше, чем в случае свободного распространения ТГц пучка в воздушном пространстве. Необходимо отметить, что в специально проведённой предварительной серии экспериментов не было зарегистрировано никаких эффектов накопления, вызванных, в частности, высокой частотой повторения лазерных импульсов. Кроме того, в отсутствие оптического излучения, состояние поляризации ТГц импульсов не изменя-

лось при прохождении через жидкий азот.

1.4.1 Моделирование

Степень эллиптичности ТГц излучения может быть записана как

$$M_{\Omega}(z) = \frac{2ab}{a^2 + b^2} = \frac{|E_+(\Omega)|^2 - |E_-(\Omega)|^2}{|E_+(\Omega)|^2 + |E_-(\Omega)|^2}, \quad (1.1)$$

а угол поворота

$$\Psi_{\Omega}(z) = 0.5 \arg[E_+(\Omega)E_-^*(\Omega)], \quad (1.2)$$

где $E_{\pm}(\Omega) = E_x(\Omega) \pm E_y(\Omega)$. При нелинейном распространении обе эти величины зависят от

$$I_{n\omega} = (|E_+(n\omega)|^2 + |E_-(n\omega)|^2)/2, \quad (1.3)$$

- суммарной интенсивности, где $n = 1; 2$.

Поляризацию среды $P_i(\Omega)$, наведённую оптическими импульсами, можно записать как

$$P_i(\Omega) = P_i^{\omega} + P_i^{2\omega} = \chi_{ijkl}^{(3)}(\Omega; \Omega, \omega, -\omega) E_j(\Omega) E_k(\omega) E_l^*(\omega) + \quad (1.4)$$

$$\chi_{ijkl}^{(3)}(\Omega; \Omega, 2\omega, -2\omega) E_j(\Omega) E_k(2\omega) E_l^*(2\omega). \quad (1.5)$$

Как показано в [77] (см. приложение Г), можно связать $M_{\Omega}(z)$ и $\Psi_{\Omega}(z)$ с характеристиками оптического излучения. Было проведено численное моделирование с учетом начальных значений эллиптичности ТГц излучения $M_0 = 0.323$ и угла $\Psi_0 = 14, 2^\circ$, измеренных в эксперименте. Результаты численного моделирования показали, что полученные значения $\mu L = 214, 4^\circ$, $\arctg \nu = 32, 8^\circ$ и $\alpha L = 288^\circ$ обеспечивают хорошее согласие со значениями параметров поляризации ТГц луча, измеренных после прохождения через слой ЖА. Значения M_{Ω} и Ψ_{Ω} , которые были рассчитаны в соответствии с вышеупомянутой теорией, равны $0,566$ и $33, 3^\circ$ соответственно.

Таким образом, несмотря на то, что в [122; 123] экспериментально было продемонстрировано, что ТГц излучение от плазмы воздушного пробоя имеет интенсивность, недостаточную для проявления эффектов самодействия, при

одновременном распространении с волнами видимого излучения можно наблюдать их взаимодействие на ТГц частоте. Это означает, что нелинейностью среды нельзя пренебрегать при описании распространения ТГц волны.

При феноменологическом подходе описания нелинейно-оптических свойств среды используются резонансные и нерезонансные электронные вклады в тензор восприимчивости. Линия поглощения ЖА расположена на частоте 1,5 ТГц [106; 131]. В этом случае возникает резонанс в $\Omega = \omega_1 - \omega_2$, учитывая, что спектральная форма фемтосекундного импульса достаточно широка. При больших интенсивностях лазерного излучения колебания и вращения молекул ЖА должны эффективно возбуждаться, и оба вклада могут привести к значительной нелинейности, и это следует учитывать при описании наблюдаемого эффекта. Эффекты, которые приводят к этому усилению, имеют рамановский характер и были описаны в литературе [132; 133].

1.5 Теоретические модели ТГц генерации

1.5.1 Распространение сверхкоротких оптических импульсов в диспергирующей среде

При взаимодействии нескольких сверхкоротких импульсов в диспергирующей среде необходимо учитывать их расхождение в пространстве в силу разной скорости распространения. Расстояние Δl , на котором импульсы первой и второй гармоники разойдутся в веществе, можно оценить как

$$\Delta l \approx \frac{c\tau}{|n_\omega - n_{2\omega}|} = \frac{27_{\text{мкм}}}{\Delta n}, \quad (1.6)$$

где $\tau = 90$ фс - длительность импульсов, n_ω и $n_{2\omega}$ - показатели преломления для центральных частот соответствующих импульсов. Необходимо отметить, что для мощных импульсов возможно также самонаведённое изменение показателя преломления среды, но в данном приближении оно не учитывается. В работе [134] приводятся экспериментальные значения показателя преломления для жидкого азота $n_{435,8} = 1,2019$; $n_{693,9} = 1,1977$, аппроксимируя эти значения, можно получить $\Delta n \approx 6,4 \cdot 10^{-3}$ и $\Delta l \approx 4,2$ мм. На расстояниях,

больших Δl , импульс второй гармоники отстает от импульса первой, и они перестают пересекаться в пространстве.

1.5.2 Модель переходного фототока

Модель асимметричной ионизации, также известная как модель переходного фототока, была предложена Кимом и соавторами [100; 135]. Они (см. также [136]) предположили, что асимметричное поле ионизации двухцветным лазерным импульсом вызывает образование выпрямленного тока, который иногда называется плотностью остаточного тока (см., например, [137]). Модель обычно применяется для взаимодействия двух линейно поляризованных гармоник. Можно записать двухцветное лазерное поле как

$$E_x = E_\omega \cos(\omega t) + E_{2\omega} \cos(2\omega t + \phi), \quad E_y = 0, \quad E_z = 0, \quad (1.7)$$

где E_ω и $E_{2\omega}$ - амплитуды первой и второй гармоники соответственно. Здесь ось z соответствует направлению распространения лазерного луча, а оси x и y перпендикулярны этому направлению. Оба лазерных поля поляризованы вдоль x .

Следуя [137] можно предположить, что плотность n_e свободных электронов в области фокусного пятна регулируются уравнением

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} = (n_f - n_e) w(E), \quad (1.8)$$

где n_f обозначает концентрацию плотности газа или жидкости, $w(E)$ - вероятность туннельной и надбарьерной ионизации, а - полная амплитуда поля. Как предложено в [138], вероятность можно оценить как

$$w(E) = \frac{4\omega_a E_a}{E} \exp\left(-\frac{2E_a}{3E} - \frac{12E}{E_a}\right), \quad (1.9)$$

где $\omega_a = 4.13 \times 10^{16} \text{ с}^{-1}$, $E_a = 5.14 \text{ Гв/см}$ атомные единицы частоты и электрического поля соответственно. Модель уравнения (1.9) была получена с использованием полуклассического подхода для ионизации статическим электрическим полем, и, следовательно, значение ω_a могло быть сильно переоценено.

Если пренебречь столкновениями, уравнение свободного движения электрона запишется в виде

$$\frac{d\vec{v}}{dt} = \frac{e}{m}\vec{E} \quad (1.10)$$

Интегрируя уравнение (1.10) для свободного электрона, генерируемого в момент времени t_0 с нулевой начальной скоростью [139], можно оценить дрейфовую составляющую $\vec{V}$ скорости $\vec{v}$, которая определяется как среднее значение $\vec{v}$ за период $2\pi/\omega$. Она имеет только компоненту x :

$$V_x(t_0) = \frac{v_\omega}{2} [-\mu \sin(2\omega t_0 + \phi) - 2 \sin(\omega t_0)] \quad (1.11)$$

Здесь $v_\omega = eE_\omega/m\omega$, а $\mu = E_{2\omega}/E_\omega$. Производная выпрямленного тока регулируется следующим уравнением [136]:

$$\frac{\partial}{\partial t} \vec{J}(t) = e\vec{V}(t) \frac{\partial}{\partial t} n_e(t) \approx e\vec{V}(t) n_f w(E(t)) \quad (1.12)$$

до тех пор, пока $n_e \ll n_f$. Если вероятность генерации свободных электронов одинаковая в любое время t_0 , то выпрямленный ток равно нулю, так как среднее значение скорости дрейфа в формуле (1.11), рассчитанное по t_0 , равно нулю.

Выпрямленный ток также равен нулю, если нет поля второй гармоники, т. е. если $E_{2\omega} = 0$. Действительно, в этом случае величина лазерного поля $E = E_\omega$, и оно не меняется со временем t . Аналогично, в соответствии с формулой (1.9), вероятность рождения свободных электронов не зависит от времени t , тогда как скорость дрейфа этих электронов меняет знак каждый полупериод. Это приводит к нулевой величине выпрямленного тока. Добавление второй гармоники разрушает эту симметрию и позволяет производить ненулевой ток. Если вычислить плотность выпрямленного тока J как функцию квадрата $E^2 = E_\omega^2 + E_{2\omega}^2$ амплитуды двухцветного лазерного импульса, можно получить зависимость энергии терагерцового излучения от энергии лазерного импульса.

Это позволит аппроксимировать измеренную зависимость полной энергии терагерцового излучения от энергии лазерного импульса. Так как видно на рис. 1.6 (а), модель находится в очень хорошем соответствии с эксперимен-

тальными данными для воздушной среды. В то же время, для генерации ТГц в ЖА модель только отражает тенденцию экспериментальных зависимостей (рис. 1.6 (б)). Разница между экспериментальными и теоретическими данными на рис. 1.6 (б) может объясняться существенным уменьшением средней длины свободного пробега электронов в ЖА по сравнению с воздухом. Это уменьшение приводит к снижению эффективности процесса ТГц генерации. Кроме того, на изменение эффективности ТГц генерации может влиять амбиполярное поле постоянного тока, образующееся в фокусном пятне в ЖА под действием лазерных импульсов.

Можно оценить сверху степень ионизации жидкости. Для $W = 2$ мДж лазерного импульса и затрат на ионизацию $P = 100$ эВ на электрон [140], оценка сверху для количества свободных электронов, полученных при поглощении лазерного импульса, составляет $N_e = W/P = 1.25 \times 10^{14}$. Оценив снизу размеры перетяжки в $r = 8$ мкм $\times L = 500$ мкм (радиус $\times$ рэлеевская длина), можно получить электронную плотность $n_e = N_e/\pi a^2 L = 1.2 \times 10^{21}$ см $^{-3}$.

Ее фактическое значение меньше; следовательно, в любом случае это намного меньше плотности жидкости $n_f = 10^{23}$ см $^{-3}$. Таким образом, плазма, образованная в фокусном пятне, только частично ионизирована. Скорость ионизации ν_{ioniz} можно оценить из уравнение $n_e = \nu_{\text{ioniz}} n_f \tau$, которое дает $\nu_{\text{ioniz}} = 1.4 \times 10^{12}$ с $^{-1}$ для длительности импульса $\tau = 90$ фс. Поэтому можно заключить, что фактическая скорость ионизации на много порядков меньше, чем предсказанная моделью надбарьерной ионизации в статическом электрическом поле (см., например, [80]). Предположительно, это происходит потому, что большая часть энергии лазерного импульса затрачивается на испарение ЖА.

1.5.3 Амбиполярная диффузия электронов в жидкости

Длина свободного пробега электрона в плазме определяется выражением $\lambda_e = 1/n_f \sigma$. В первом приближении можно взять $\sigma = 10^{-16}$ см 2 . Такое значение соответствует верхней оценке сечения для рассеяния электрона на атоме или сечении для ударной ионизации атома электроном (не учитывается тот факт, что сечение меньше для высокоэнергетических электронов). Тогда по-

лучается, что длина свободного пробега $\lambda_e = 10^{-1}$ мкм на порядки меньше, чем радиус перетяжки фокального пятна (в связи с чем уточнение сечения не очень существенно). Таким образом, можно заключить, что движение свободных электронов в жидкости имеет характер диффузии.

Диффузия имеет тенденцию сглаживать начальное неоднородное пространственное распределение электронов. В плазме, даже слабоионизированной, диффузия сопровождается появлением электрического поля постоянного тока, которое направлено вдоль радиуса перетяжки и имеет тенденцию выравнивать радиальные потоки электронов и ионов, чтобы поддерживать квазинейтральность фокального пятна.

Для эксперимента в газовой-кластерных пучках (см. главу 3) авторы [141] предположили, что ионы вылетают из кластеров после кулоновского взрыва, вызванного первым лазерным импульсом, и образуют положительно заряженное ионное облако, которое действует как постоянное напряжение смещения. В плазменном канале, созданном вторым импульсом, возбуждается поперечный ток [51] или дипольный момент [142], что приводит к излучению электромагнитных волн, аналогично ТГц излучению в поле постоянного тока.

В экспериментах с ЖА можно также предположить, что воздействие лазерного импульса приводит к разделению ионов и электронов, что образует амбиполярное поле. Это поле имеет цилиндрическую симметрию, и для дальнейшего моделирования нелинейно-оптических процессов его можно считать статичным. Вторым лазерным импульсом, который задерживается по отношению к первому, распространяется в этом поле постоянного тока. В случае одноцветной схемы можно пренебречь дисперсией в среде. Таким образом, можно считать взаимодействие фемтосекундных лазерных импульсов с этим полем постоянного тока эффективным.

Оцененная степень ионизации настолько мала, что столкновением заряженных частиц друг с другом можно пренебречь по сравнению с их столкновениями с нейтральными атомами. Даже при этих условиях, как показано в [143], диффузия одного вида заряженных частиц, например, электронов, влияет на диффузию заряженных частиц другого типа, то есть ионов. Эта

происходит из-за так называемого амбиполярного электрического поля (см., например, [144], уравнение (25.14))

$$\vec{E} = \frac{T}{e} \frac{\vec{\nabla} n_e}{n_e}. \quad (1.13)$$

Это поле остается вблизи перетяжки лазерного луча до тех пор, пока плотность носителей плазмы неоднородна. Предполагая приблизительную оценку $T = 100$ эВ и $r = 8$ мкм (однако облако со временем расширяется), уравнение (1.13) дает $E > 20$ кВ/см, что превышает максимальное внешнее электростатическое поле, приложенное к лазерной перетяжке в экспериментах, описанных в работе [51]. Эти эксперименты продемонстрировали значительное усиление ТГц излучения во внешнем постоянном электрическом поле. Поэтому можно предположить, что амбиполярное поле может также увеличивать выход ТГц излучения. В то же время, качественные оценки, основанные на формуле (1.13) могут иметь существенную ошибку ввиду неточности оценки параметров перетяжки.

1.5.4 Четырёхволновое смешение

Из-за амбиполярного поля, генерацию ТГц излучения вторым лазерным импульсом следует рассматривать в рамках явления четырехволнового смешения (FWM), представленной ниже.

Поляризационные свойства терагерцового излучения определяются симметрией свойств плазмы и вкладов молекулярного движения. Для неионизированных (нейтральных) атомов плазмы нелинейный вклад в ТГц сигнал удобно записать в виде феноменологической модели. В рамках теории четырёхволнового смешения (FWM, см. например [35]), выражение нелинейной поляризации 3-го порядка имеет вид

$$P_i^{(3)}(\omega_q) = \chi_{ijkl}^{(3)}(\omega_q; \omega_m, \omega_n, \omega_r) E_j(\omega_m) E_k(\omega_n) E_l(\omega_r), \quad (1.14)$$

где $\omega_q = \omega_m + \omega_n + \omega_r$, а $\vec{E}(\omega_p)$ - комплексная амплитуда волны на частоте ω_p ($p = q, m, n, r$). В изотропной среде, такой как воздух или ЖА, тензор

нелинейной восприимчивости $\chi_{ijkl}^{(3)}$ зависит только от трех независимых коэффициентов $\mathbb{A}$, $\mathbb{B}$ и $\mathbb{C}$, которые являются функциями задействованных частот:

$$\chi_{ijkl}^{(3)} = \mathbb{A}\delta_{ij}\delta_{kl} + \mathbb{B}\delta_{ik}\delta_{jl} + \mathbb{C}\delta_{il}\delta_{jk}. \quad (1.15)$$

δ_{ij} - символ Кронекера. Классическая теория нелинейной поляризации [35] показывает, что эти три коэффициента равны, и их выражение

$$\mathbb{A} = \mathbb{B} = \mathbb{C} = \sum_{(mnr)} \frac{bn_f e^4 / m_e^3}{G(\omega_q)G(\omega_m)G(\omega_n)G(\omega_r)}, \quad (1.16)$$

где $G(\omega) = \omega_0^2 - \omega^2 - 2i\gamma\omega$, ω_0 - атомная частота, γ скорость демпфирования из-за релаксации энергии (через вибрацию молекул, фононов и т. д.), n_f - плотность среды, m_e масса электрона, и суммирование идет по частотам ω_m , ω_n , и ω_r таким, что $\omega_q = \omega_m + \omega_n + \omega_r$.

Феноменологический параметр b имеет порядок $b \simeq \omega_0^2/d^2$,

где d - атомный размер. Используя это выражение для b , Бойд [35] оценил нелинейную восприимчивость как

$$\chi^{(3)} \simeq \frac{e^4 n_f}{m_e^3 \omega_0^6 d^2}. \quad (1.17)$$

Как видно из 1.17, нелинейная восприимчивость пропорциональна плотности среды. Это также наблюдалось экспериментально [35]. Поэтому, при переходе к более плотным средам вклад четырёхволнового смешения в ТГц сигнал должен возрасть.

Можно отметить, что для молекулярной неполярной жидкости молекулярная частота ω_0 намного ниже, чем лазерная частота ($\omega_0 \sim 1$ ТГц) и, следовательно, нелинейная восприимчивость определяется в основном лазерными частотами ω_m , ω_n , и ω_r . Это наблюдение приводит к следующему важному выводу. Если $\omega_0 \ll \omega$, относительно низкое амбиполярное поле постоянного тока $\vec{E}(0)$ способствует поляризации 3-го порядка на том же уровне, как и гораздо большее лазерное поле на удвоенной частоте (2ω).

Генерация ТГц излучения на частоте Ω (значительно ниже центральной частоты ω лазерного излучения) полностью определяется по формуле (1.14) в

которой $\omega_q \sim \Omega$. Можно предположить, что спектральные ширины лазерных линий $\omega_m, \omega_n, \omega_r$ порядка $\Omega \sim 2\pi/\tau$, где τ - длительность лазерного импульса.

Когда короткие лазерные импульсы с центральными частотами $\omega, 2\omega$ взаимодействуют друг с другом и амбиполярным полем $\vec{E}(0)$ в среде с кубической нелинейностью, можно подставить частоты $\omega, 2\omega$ и 0 в уравнение (1.14). Таким образом, поляризация $\vec{P}(\Omega)$ принимает следующий вид:

$$\begin{aligned} P_i^{(3)}(\Omega) = & \chi_{ijkl}^{(3)}(\Omega; -2\omega, \omega, \omega) E_j^*(2\omega) E_k(\omega) E_l(\omega) + \\ & + \chi_{ijkl}^{(3)}(\Omega; 0, \omega, -\omega) E_j(0) E_k(\omega) E_l^*(\omega) + \\ & + \chi_{ijkl}^{(3)}(\Omega; 0, 2\omega, -2\omega) E_j(0) E_k(2\omega) E_l^*(2\omega), \end{aligned} \quad (1.18)$$

где ради простоты отброшена интегрирование по естественной спектральной ширине лазерных импульсов на основной и удвоенной частотах.

Вклад амбиполярного поля (последние два члена в формуле (1.18)) в нелинейную поляризацию оказывается гораздо сильнее, чем FWM-вклад лазерных импульсов на частотах ω и 2ω (первый член в формуле (1.18)). Действительно, можно вывести из (1.16) следующее соотношение для коэффициентов в формуле (1.18):

$$\frac{\chi_{ijkl}^{(3)}(\Omega, \Omega, n\omega, -n\omega)}{\chi_{ijkl}^{(3)}(\Omega, -2\omega, \omega, \omega)} \sim \frac{n\omega^2}{\Omega^2} \gg 1 \quad (1.19)$$

где $n = 1$ или $n = 2$.

1.6 Выводы к главе 1

Глава посвящена оптико-ТГц преобразованию в жидкой среде (в ЖА), а также нелинейным преобразованиям ТГц сигнала при его распространении совместно с мощным оптическим излучением через жидкую среду.

На примере жидкого азота исследованы свойства оптико-ТГц преобразования в жидкой среде. Зарегистрирован ТГц сигнал для двух схем оптического возбуждения среды (одноцветной и двухцветной). Коэффициент преобразования энергии лазерного излучения в терагерцовое для двухцветной схемы в жидком азоте до 10 раз превышает аналогичную величину в воздухе.

Показано, что как ионизация среды, так и ее нелинейная восприимчивость должны равноправно рассматриваться при анализе процессов генерации терагерцового излучения в жидкости. Подвижность ионов и электронов в жидкости играет существенную роль в процессе ТГц генерации, формируя квазистатическое электрическое поле через механизм амбиполярной диффузии. Это квазистационарное поле приводит к возможности ТГц генерации при нелинейном взаимодействии 3-го порядка, которое эффективнее аналогичных процессов 2-го порядка в квазицентросимметричной плазме.

Экспериментально показано и теоретически обосновано, что в присутствии мощного оптического излучения, состояние поляризации ТГц импульса может изменяться при прохождении изотропной центросимметричной среды. Проведены теоретические оценки наблюдаемого эффекта, подтверждающие экспериментальные результаты.

Глава 2

Генерация терагерцового излучения в жидких металлах

Глава посвящена нелинейно-оптическому преобразованию лазерного излучения в импульсное ТГц при использовании субволновых металлических капельных мишеней. В отличие от главы 4, где локализация области ТГц генерации достигалась исключительно благодаря острой фокусировке в непрерывную газовую среду, в данном случае впервые использованы металлические капли диаметром порядка 50 мкм, находящиеся в свободном падении в вакууме. Это позволяет отбросить влияние среды на распространение лазерного и ТГц излучений, и исследовать точечный источник ТГц излучения. Экспериментально было показано, что для эффективной ТГц генерации необходима двухимпульсная схема накачки, и для неё были исследованы спектральные, поляризационные и энергетические характеристики ТГц излучения. Результаты работы изложены в статье [79].

2.1 Введение

Нелинейное преобразование в твердотельных средах широко распространено ввиду больших значений нелинейных коэффициентов. При этом используются как объёмные тела - в случае, когда среда прозрачна для излучения оптической накачки и ТГц излучения, так и поверхности твёрдых тел. В последнем случае, вблизи границы раздела нарушение симметрии среды существенно увеличивает значение коэффициентов нелинейности второго порядка, равного нулю для центрально-симметричных сред. В ряде работ исследовался вопрос о нелинейно-оптических преобразованиях на металлических поверхностях [145; 146]. Для процессов ГВГ была продемонстрирована ключе-

вая роль поверхностных эффектов для интенсивности сигнала: в частности, существенное увеличение сигнала в случае шероховатых поверхностей [147].

Оптико-ТГц преобразование наблюдалось на плоских [60] и шероховатых металлических поверхностях [64], а также на пленках металлических кластеров [148]. Для металлической проволоки малого диаметра [61] была показана высокая эффективность преобразования (до 1 %) из оптического в ТГц излучение. Авторы работы [61] измерили эффективность и спектр излучения в зависимости от длины и диаметра проволоки. Как можно заключить из их работы, основной механизм ТГц излучения связан с радиальным электрическим полем, которое вызывает спиральное движение электронов вдоль провода, индуцируя ТГц излучение. В работе [149] предлагается тепловой механизм оптико-ТГц преобразования на металлических поверхностях.

Существенным ограничением для металлических поверхностей является повреждение материала под действием мощного лазерного излучения, что приводит к изменению формы, состава и оптических свойств поверхности. Таким образом, авторам приходилось ограничивать энергию оптических импульсов или же смещать исследуемый образец, чтобы избежать повторного облучения поврежденных участков мишени. В данной работе для возобновления свойств мишени формируется последовательность синхронизированных с лазерным излучением металлических капель. Капли находятся в жидком состоянии, но их температура лишь незначительно превышает температуру плавления металлического сплава.

Свободно падающие металлические капли диаметром в десятки мкм в последнее время интенсивно исследуются из-за мощного излучения в экстремальной ультрафиолетовой области спектра на длине волны 13,5 нм при облучении сверхкороткими оптическими импульсами [150]. При этом эффективность преобразования может достигать 6 % [151]. Процесс образования плазмы при взаимодействии капель с оптическим излучением капель был подробно изучен для различных условий лазерного возбуждения [152; 153].

Ближайшими экспериментальными аналогами капельных мишеней, представленными в этой главе, являются кластеризованные газовые [59; 80] (также см. главу 3 данной диссертации) и жидкие [154; 155] струи. В этих работах

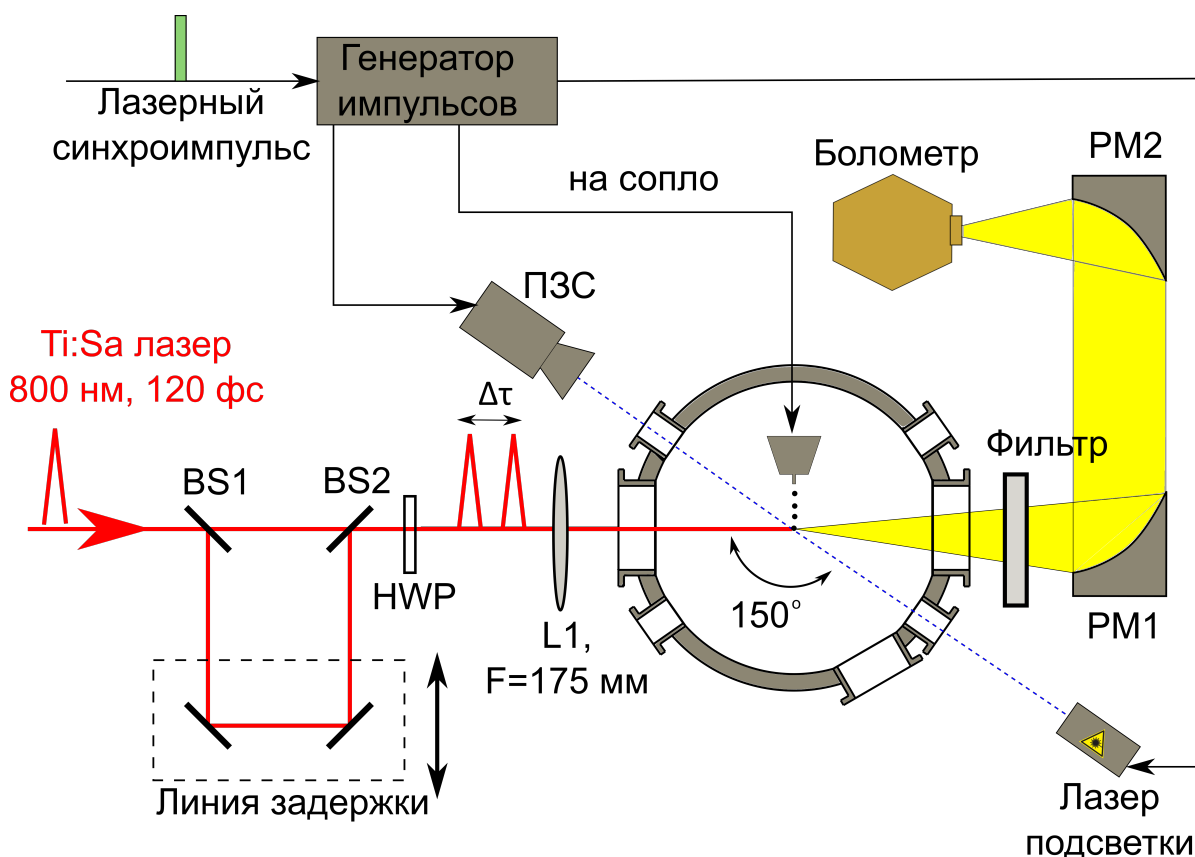
описана совместная генерация ТГц и рентгеновского излучения. Оба аналога имеют высокую локальную плотность и при оптическом возбуждении могут обеспечить плотную плазму.

Использование двух фемтосекундных лазерных импульсов, задержанных друг относительно друга [141] или оптимизация длительности лазерного импульса [156] позволяют повысить эффективность ТГц генерации за счет предварительной ионизации среды. Такие работы известны для газовых сред [157], газовых кластеров [141] (глава 3), а также для жидкостей [76; 102] (глава 1). Вызванное светом усиление нелинейного отклика в ТГц диапазоне частот было ранее продемонстрировано для нелинейных метаматериалов [158]. Кроме того, было показано существенное влияние двухимпульсной схемы возбуждения металлических поверхностей на спектр свечения плазмы и эффективность выноса материала даже в случае задержки между импульсами в десятки микросекунд [159—161].

В этой главе в качестве среды, в которой происходит генерация ТГц излучения под воздействием света, использовались свободно падающие жидкие капли металла. Фемтосекундный лазерный импульс поглощается каплей, вызывая различные гидродинамические и электронные процессы, происходящие на различных временных масштабах. Существенным фактором является нестационарная динамика температуры электронов, которая косвенно определяет и нелинейный отклик среды. Второй лазерный импульс, задержанный по отношению к первому, генерирует ТГц излучение, и оптимальное время его задержки определяется электродинамическими параметрами среды, что показано в [156]. Когда задержка между двумя импульсами оптимизируется, наблюдается увеличение генерируемой ТГц мощности на несколько порядков.

2.2 Экспериментальная установка

Схема экспериментальной установки приведена на рис. 2.1, а её фотография - на рис. 2.2. Для создания одиночных металлических капель было использовано высокотемпературное дозирующее устройство MJ-SF-01 (MicroFab Technologies) со встроенным соплом и пьезоэлементом [162]. Капли падали



BS1 - регулируемый делитель пучка, BS2 – делитель пучка 50:50, PM1 и PM2 – внеосевые металлизированные параболические зеркала с $F=150$ мм и апертурой 50 мм, HWP -полуволновая пластинка.

Рисунок 2.1. Схема экспериментальной установки для исследования ТГц генерации при взаимодействии лазерного излучения с одиночными микрокаплями.

под действием силы тяжести в специально разработанной вакуумной камере с давлением 10^{-5} мБар. Для продавливания расплава через сопло над расплавом формировалось избыточное давление аргона до 3 атм. Вакуумная камера позволяла избегать окисления капель и образования плазмы оптического пробоя в воздухе. Дополнительную информацию о системе формирования капель можно найти в [163; 164]. Металл представлял собой эвтектический сплав олова и индия (48% Sn - 52% In), который находился в жидком состоянии благодаря предварительному нагреву до 140° С. С помощью пьезоэлектрического актуатора, приклеенного к стеклянному капилляру дозатора, можно было синхронизировать формирование капель с лазерными импульсами. Размер капель регулировался путем подачи импульса напряжения с соответствующим временным профилем на пьезоэлектрик. Размер капли

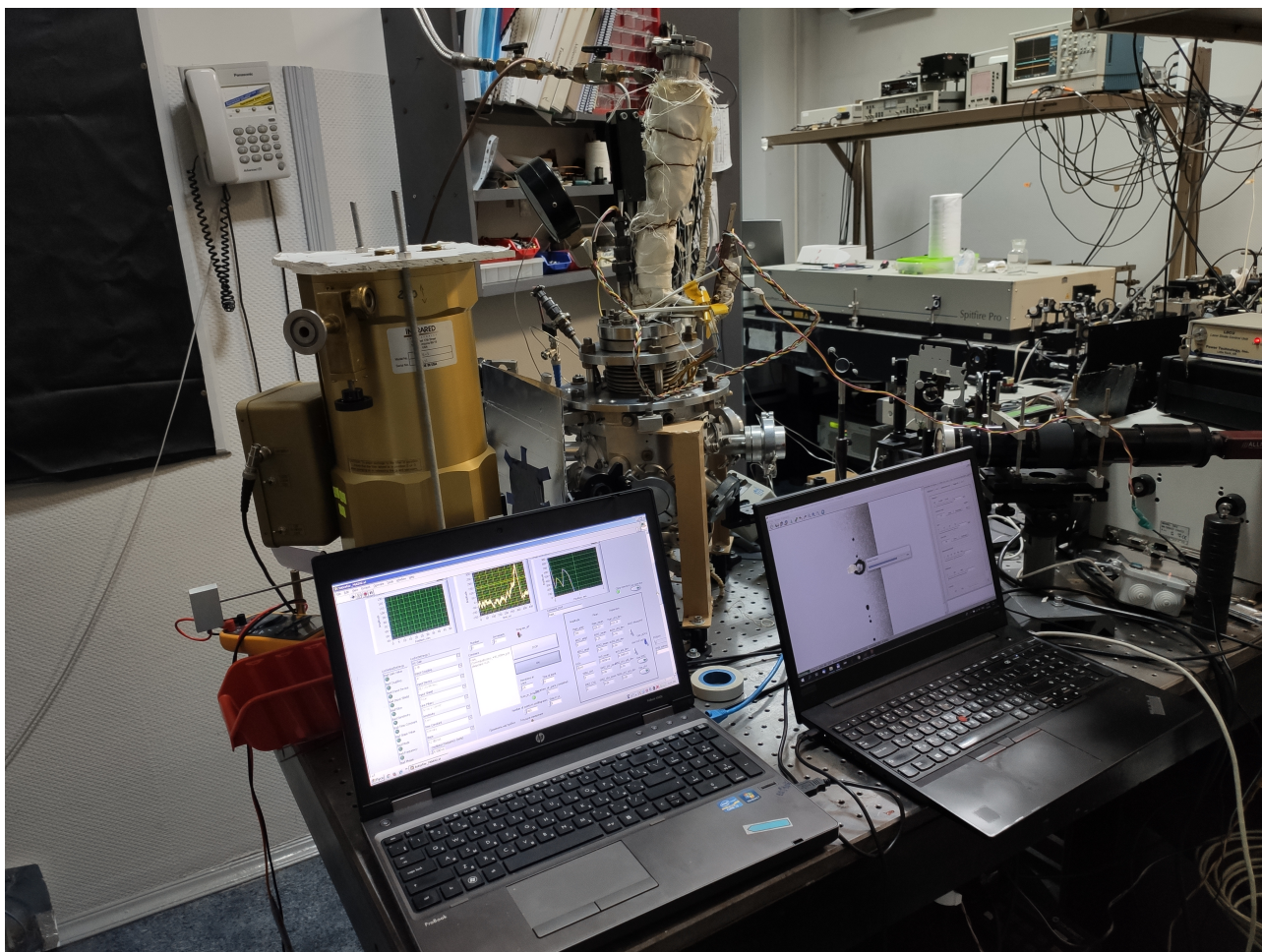
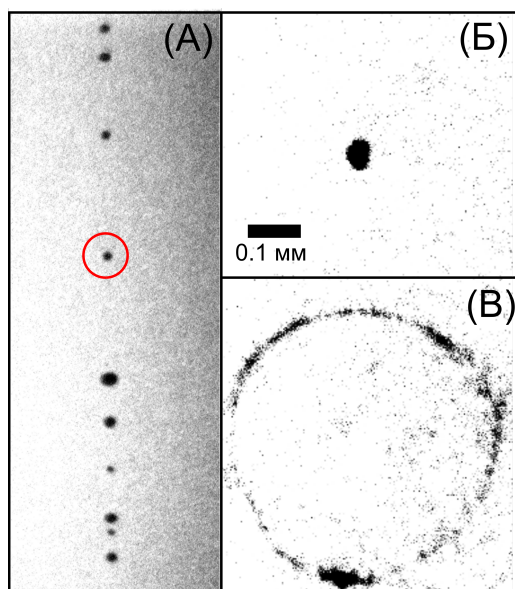


Рисунок 2.2. Фотография экспериментальной установки для генерации ТГц излучения в микрокаплях.

и точность синхронизации с лазерным импульсом контролировались ПЗС-камерой с разрешением 2,8 мкм/пиксель. Для создания снимков капли использовался дополнительный лазер подсветки не длительности, при помощи которого можно было регистрировать форму капли на различных задержках после прихода лазерного импульса. Характерные снимки представлены на рис. 2.3. Без воздействия лазерного импульса, капли имели форму от сферической с характерным диаметром 50 мкм до слабо-эллиптической, в последнем случае их диаметр составлял 48 мкм в горизонтальной плоскости, вертикальный размер достигал 59 мкм.

В качестве источника субпикосекундных импульсов был использован регенеративный усилитель (см таблицу А.1, система 1), однако частота повторения была снижена до 4 Гц. Это было сделано для минимизации влияния фрагментов капли на следующую каплю и дозатор. Два последовательных



*Последовательность капель (А), капля до (Б) и 2 мкс после (В)
воздействия мощного лазерного импульса.*

Рисунок 2.3. Микрофотографии капель, выполненные методом тенеграфии.

соотносящихся с распространяющимися лазерными импульсами, которые освещали образец, были получены с использованием настраиваемого светоделителя (BS1), который мог регулировать энергетическое соотношение между двумя импульсами, линией задержки и светоделителем BS2 50:50. Таким образом, энергия каждого лазерного импульса могла варьироваться от 0 до 0,76 мДж с постоянной суммарной энергией 0,76 мДж, а задержка между импульсами могла достигать сотен пикосекунд. Лазерный луч фокусировался объективом L1 с фокусным расстоянием 175 мм в пятно диаметром 15 мкм (объектив стоял перед входным окном вакуумной камеры). Чтобы точно отрегулировать положение лазерного пятна относительно центра капли, в эксперименте варьировалась временная задержка между каплями и лазерным импульсом, что эквивалентно смещению капли вдоль вертикального направления. В горизонтальной плоскости совмещение производилось путем перемещения линзы. Основными критериями юстировки были симметрия и скорость “взрыва” капли (см. рис. 2.3).

ТГц излучение генерировалось фотовозбужденной каплей. Светосбор ТГц излучения производился за каплей вдоль оптической оси исходного лазерного излучения (для схемы А). ТГц излучение проходило через полипропилено-

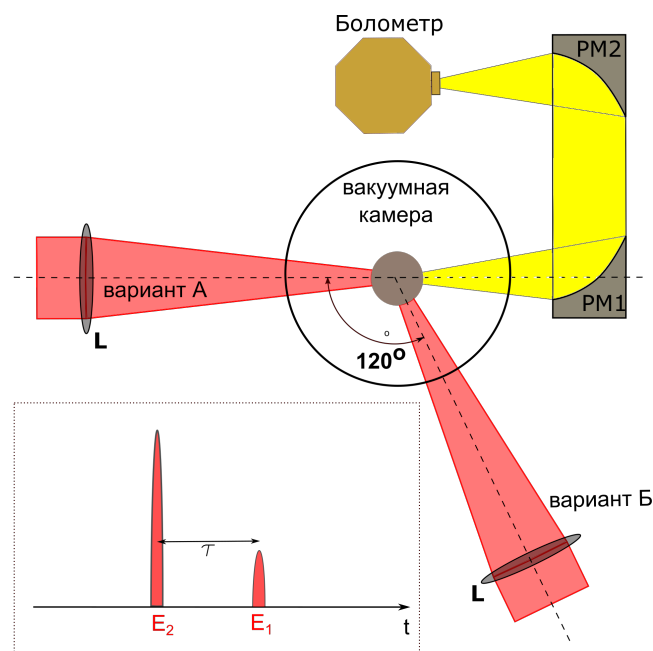


Рисунок 2.4. Варианты оптического возбуждения капельной мишени.

вое окно толщиной 3 мм, дополнительные кремниевые фильтры и фокусировалось двумя внеосевыми металлизированными параболическими зеркалами PM1 и PM2 с фокусным расстоянием 150 мм и апертурой 50 мм в болометрический детектор с гелиевым охлаждением (Infrared Labs, см. табл. А.2, детектор 2). Сам болометрический детектор включал в себя охлаждаемые фильтры НЧ ТГц диапазона. Для большинства экспериментов использовался фильтр с частотой отсечки 3 ТГц. Угол светосбора для экспериментальной схемы составлял около 19° . Для анализа поляризационного состава излучения между двумя параболическими зеркалами PM1 и PM2 мог быть размещен проволочный поляризатор (Standa Ltd.). Для анализа спектрального состава использовался интерферометр Майкельсона. Блок ТГц оптики был жестко связан с одним из окон вакуумной камеры, в то время как для оптического возбуждения могли использоваться 2 разных направления, обозначенные как «А» и «Б» на рис. 2.4. В случае «А» собралось ТГц излучение, сонаправленное исходному оптическому, тогда как в случае «Б» угол между ними составлял 120° .

2.3 Экспериментальные результаты опτικο-терагерцового преобразования в каплях

Для обеих геометрий накачки (схемы А и Б, рис. 2.4) при освещении капли одиночным лазерным импульсом зарегистрированный сигнал на выходе детектора не превышал уровня шума. При возбуждении двумя последовательными оптическими импульсами наблюдалось интенсивное ТГц излучение, с энергией в импульсе до 5 пДж. В том случае, когда низкоэнергетический импульс предшествовал высокоэнергетическому, величина сигнала была существенно больше, чем в обратном случае. ТГц сигнал в зависимости от задержки между двумя импульсами для фиксированного отношения энергий импульсов 39/720 мкДж в схеме «А» представлен на рис. 2.5. Оба импульса имели одинаковую поляризацию. Положительные задержки по оси абсцисс соответствуют случаю, когда первым с каплей встречается импульс с меньшей энергией. Как видно из рис. 2.5, измеренный ТГц сигнал при нулевой или отрицательной задержках находится на уровне шумов детектора. При положительных задержках ТГц сигнал увеличивается с характерным временем нарастания в несколько десятков пикосекунд, а затем после задержки около 70 пс достигает плато с незначительным увеличением сигнала при росте задержки между импульсами. Аналогичные кривые для двух соотношений энергий для схемы «Б» приведены на рис. 2.6. Можно отметить, что динамика ТГц сигнала отличается для двух направлений светосбора.

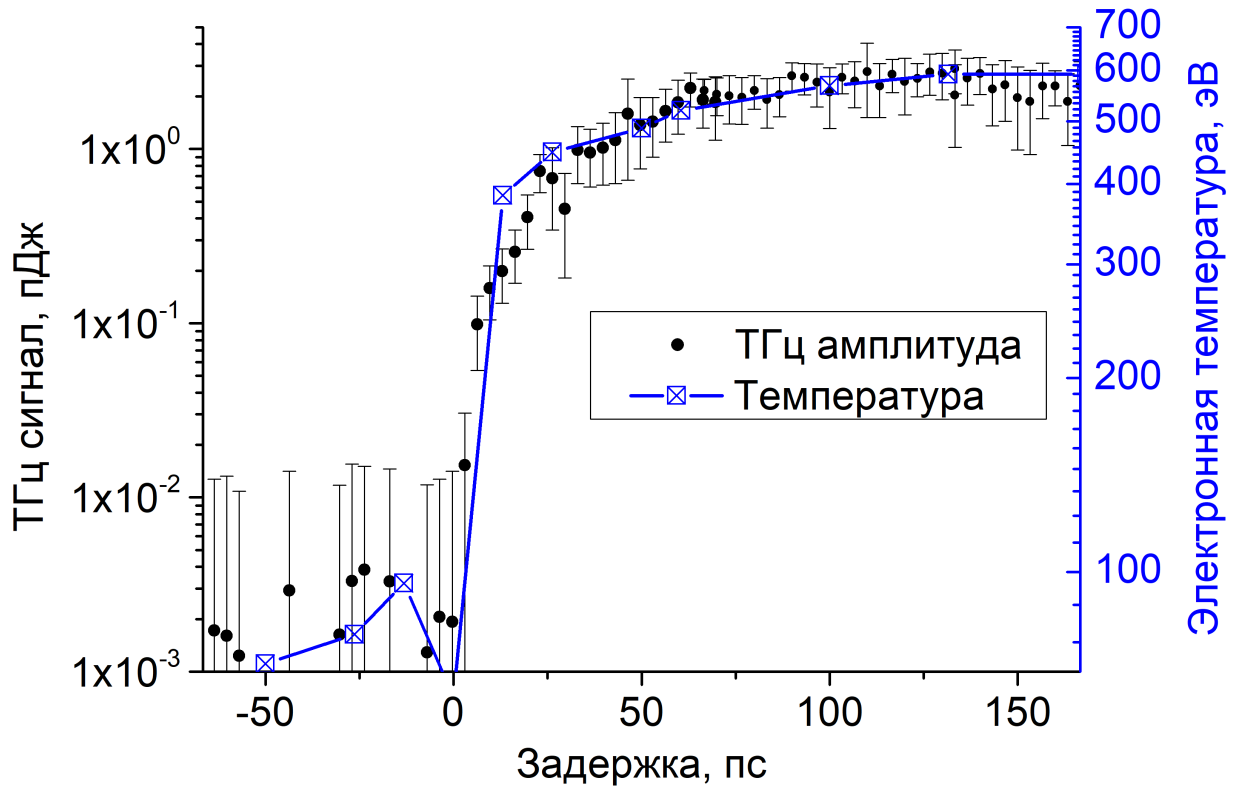
В случае использования двухцветной схемы возбуждения [100] в одно из плеч установки устанавливался кристалл ВВО для получения излучения на удвоенной частоте, при этом производилась фильтрация исходного лазерного излучения и корректировка направления линейной поляризации импульса второй гармоники. При этом не наблюдалось увеличения сигнала относительно одноцветного возбуждения (при одинаковых энергиях оптических импульсов для одноцветной и двухцветной схем возбуждения), и при нулевой задержке сигнал был так же ниже уровня шума детектора.

Подобные экспериментальные результаты соответствуют значительному усилению ТГц сигнала в условиях образования плазмы в непосредственной

близости к поверхности и внутри капли. При нулевой задержке между двумя импульсами, что можно также представить одним мощным импульсом, происходит ионизация атомов капли; однако сама ионизация не является источником ТГц излучения. Слабый оптический импульс создает плазму, свойства которой меняются со временем. С течением времени распределение электронов в капле и их температура меняются. Через некоторое время параметры плазмы становятся оптимальными для генерации ТГц излучения вторым оптическим импульсом. Тот факт, что максимальная интенсивность ТГц излучения проявляется при довольно больших задержках между импульсами, свидетельствует о том, что источником излучения является не вся капля, ионизированная под воздействием первого лазерного импульса, а градиент электронной плотности, возникающий под действием пондеромоторной силы, вызванной вторым лазерным импульсом. Отсутствие достаточного сигнала при отрицательных задержках может быть связано с тем, что в этом случае энергии второго импульса недостаточно для того, чтобы вызванная им пондеромоторная сила усиливала ТГц сигнал ($E_1 + E_2 = 750$ мкДж). Это проверялось в дополнительных экспериментах, где соотношение между импульсами изменялось в широком диапазоне интенсивностей.

Для фиксированных временных задержек между импульсами существует широкий оптимум на зависимости ТГц сигнала от коэффициента разделения исходного излучения между двумя импульсами (см. рис. 2.7). Для большинства задержек положение этой оптимальной точки находится вблизи 100/660 мкДж.

Возбуждение среды предварительным импульсом исследовалось для газообразных [165] и жидкостных [76] сред. В работах [165—168] показано, что предионизация непрерывной среды приводит к уменьшению эффективности преобразования на временах порядка десятков-сотен пс. В то же время, в [169] авторам удалось добиться существенного увеличения эффективности преобразования для малых (сравнимых с длительностью импульсов) задержек между импульсами одинаковой поляризации и со сравнимыми энергиями. Аналогичный эффект наблюдался в работах [57; 80], где для более эффективной генерации ТГц излучения применялось удлинение импульса путём



При положительных задержках импульс с меньшей энергией 39 мкДж первым достигает капли, а импульс в 720 мкДж приходит вторым. Чёрные точки соответствуют экспериментальным данным, синяя линия - результаты моделирования электронной температуры.

Рисунок 2.5. Амплитуда ТГц сигнала для различных задержек между лазерными импульсами.

его чирпирования.

Было проведено исследование влияния длительности оптических импульсов на эффективность оптико-ТГц преобразования. Для этого изменялись настройки компрессора лазерной системы для внесения линейной фазовой модуляции различного знака, приводящей к удлинению импульсов при сохранении их энергии. В случае одиночного импульса, его уширение не приводило к появлению регистрируемого сигнала. Для двухимпульсного эксперимента результаты приведены на рис. 2.8. В отличие от случаев оптической накачки кластерных струй [80], где излучение взаимодействует со струей агрегаций атомов твердотельной плотности с размерами в десятки нм, и жидкостных сред [57], максимум эффективности оказался вблизи минимальной

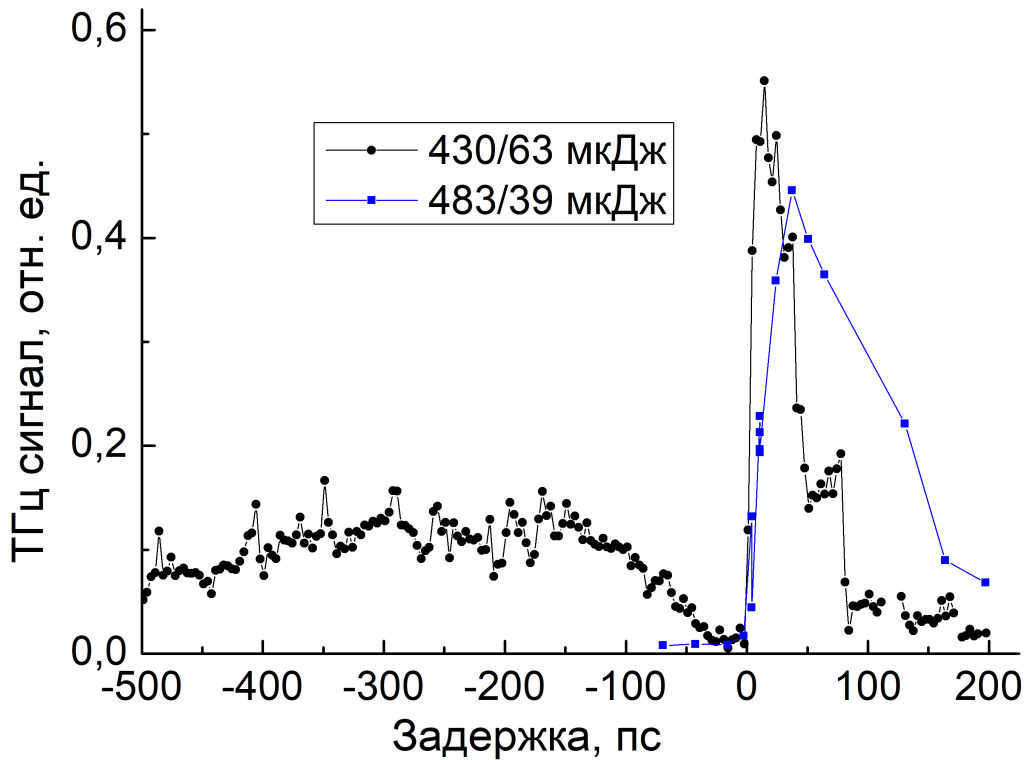
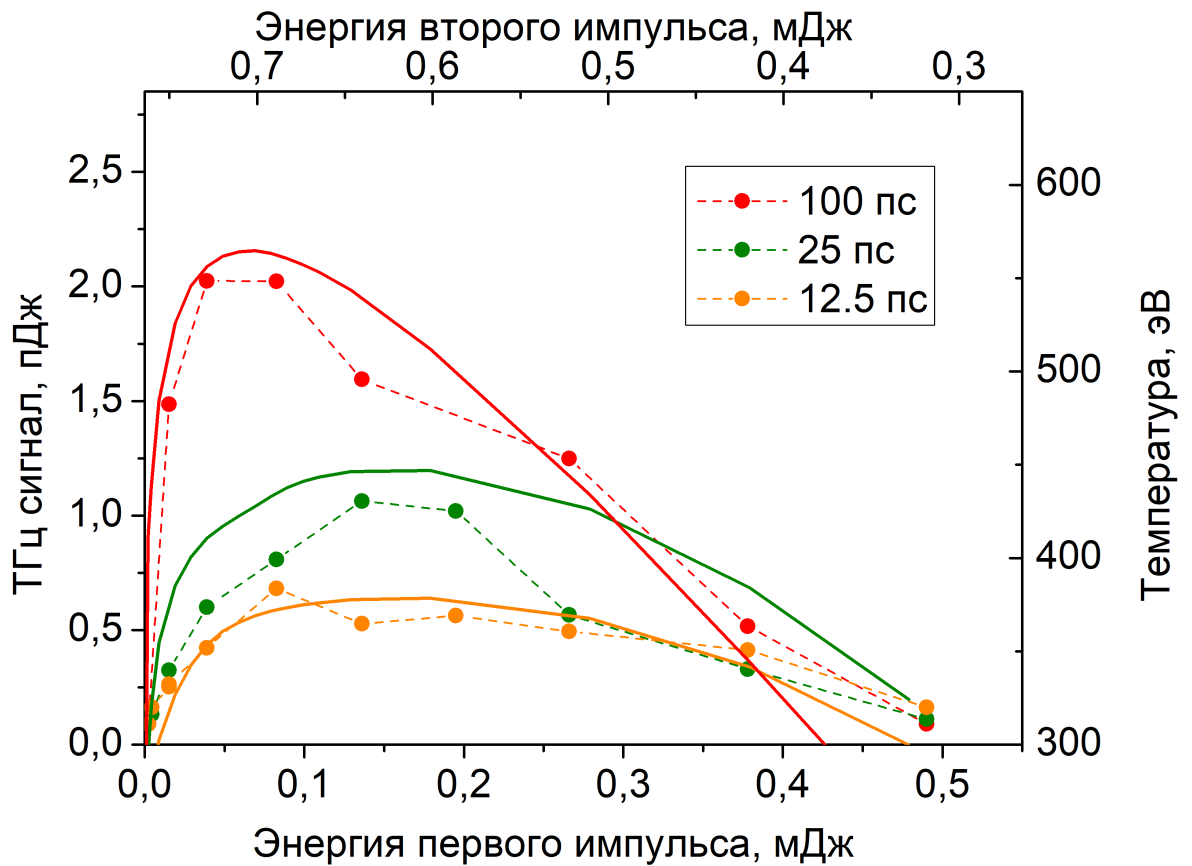


Рисунок 2.6. Зависимость ТГц сигнала от задержки между импульсами.
Схема Б.

длительности импульса. В то же время, эта зависимость менее выражена, чем в случае газообразных сред [57].

Для непрерывных сред предионизация проявляется в увеличении поглощения генерируемого ТГц излучения в предварительно созданной плазме. В случае малых задержек или же чирпирования излучения накачки в качестве механизмов усиления эффективности генерации предложены формирование амбиполярного поля [76] и увеличение длины филамента [169]. Случай, рассмотренный в данной работе, существенно отличается от остальных. Вместо непрерывных сред или же скопления частиц большой плотности, в качестве мишени используется одиночная капля. Первый импульс формирует расширяющуюся плазменную область, и ввиду её малого начального объёма и огромной плотности, всё сгенерированное излучение в ней же и поглощается. При расширении плазменного облака с ростом задержки меняется его плотность, что приводит, с одной стороны, к возможности эффективной ге-



Приведены результаты для пяти значений относительных задержек между лазерными импульсами. На рисунках показаны экспериментальные результаты (пунктирные кривые с точками) и теоретические расчеты (сплошные кривые).

Рисунок 2.7. Зависимость интенсивности ТГц сигнала от энергии лазерных импульсов, задержанных относительно друг друга.

нерации ТГц излучения и, с другой, - к возможности его выхода из области генерации.

Следует отметить, что на ТГц сигнал влияет неоднозначность позиционирования капли относительно перетяжки оптического пучка по координате, сонаправленной с оптической осью системы. Ввиду флуктуаций и засорения сопла микрочастицами окислов, направление струи при её включении может изменяться, что смещает точку оптико-капельного взаимодействия. Поскольку рэлеевская длина перетяжки составляет порядка 1 мм, а разлёт осколков капли слабо меняется вблизи точки острой фокусировки, освещенная область на капле может варьироваться в размерах.

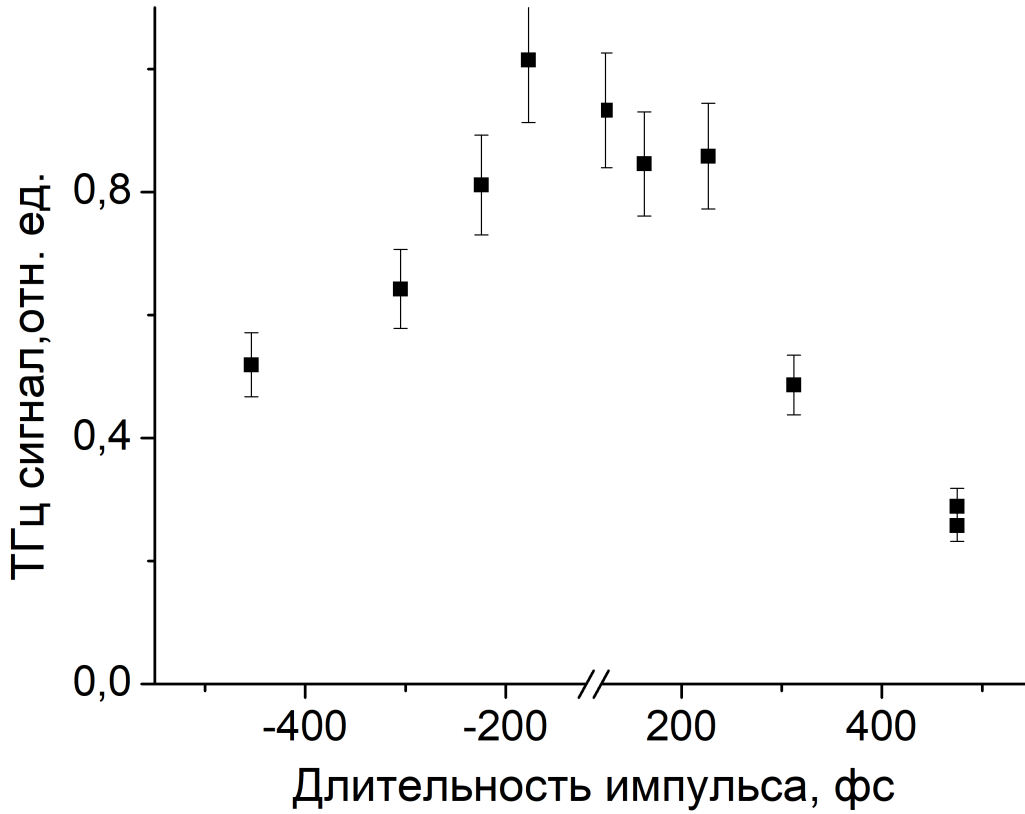
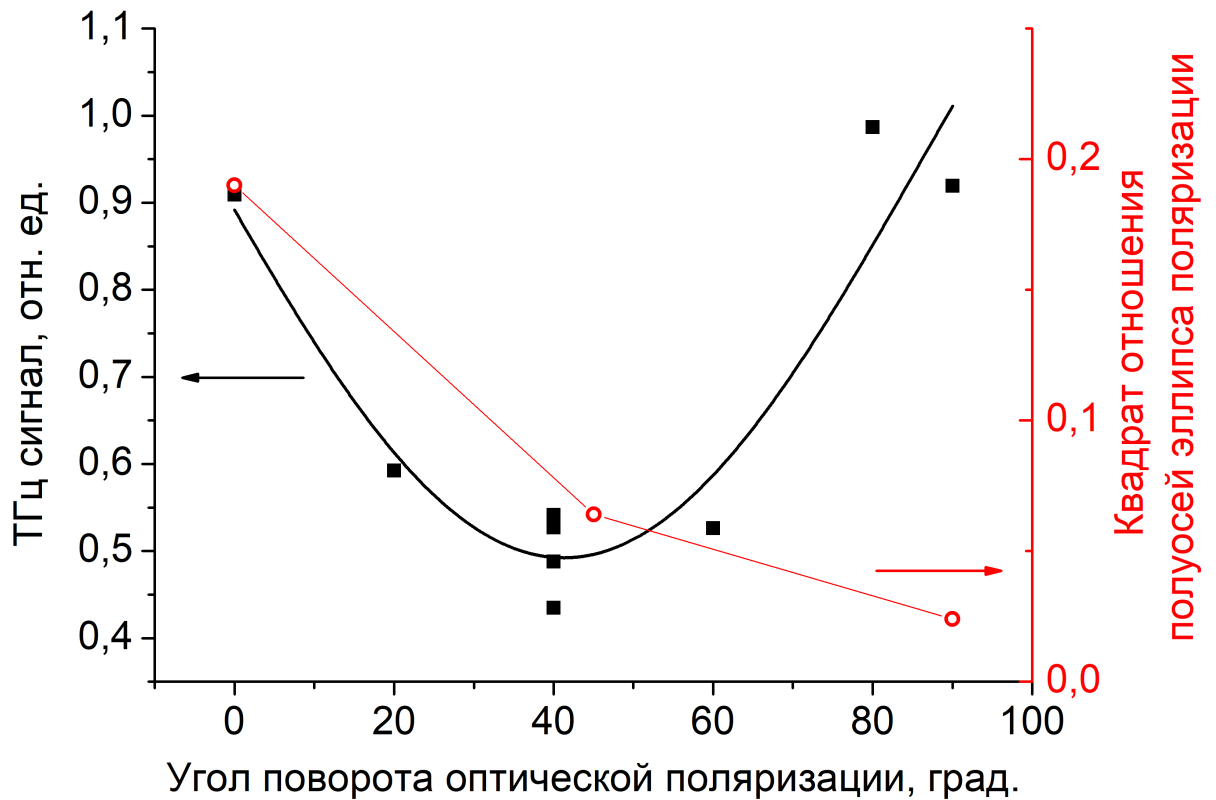


Рисунок 2.8. Зависимость интенсивности ТГц сигнала от длительности лазерного импульса для микрокапельных мишеней.

2.3.1 Поляризационные свойства терагерцового излучения

Поляризационные свойства ТГц сигнала были измерены при фиксированной задержке $\tau = 166$ пс и коэффициенте разделения энергии 39/720 мкДж. Изменение направления поляризации для первого слабого оптического импульса не привело к изменению полной энергии или состояния поляризации ТГц излучения. Направление поляризации ТГц излучения совпадало с поляризацией более мощного импульса, кроме того, полная энергия и эллиптичность ТГц излучения также зависели от неё. Это показано на рисунках 2.9 и 2.10.

Если ввести степень эллиптичности $M(\psi) = (|E_+|^2 - |E_-|^2) / (|E_+|^2 + |E_-|^2)$, где аналогично (разд. 1.4) $E_{\pm} = E_x \pm iE_y$, и угол поворота главной оси эллипса поляризации $\Phi(\psi) = \arg(E_- E_-^* / 2)$, можно показать [79], что с учётом эллиптичности капли жидкого металла этот эффект может быть объяснён качественно в рамках теории нелинейной восприимчивости 2-го порядка.

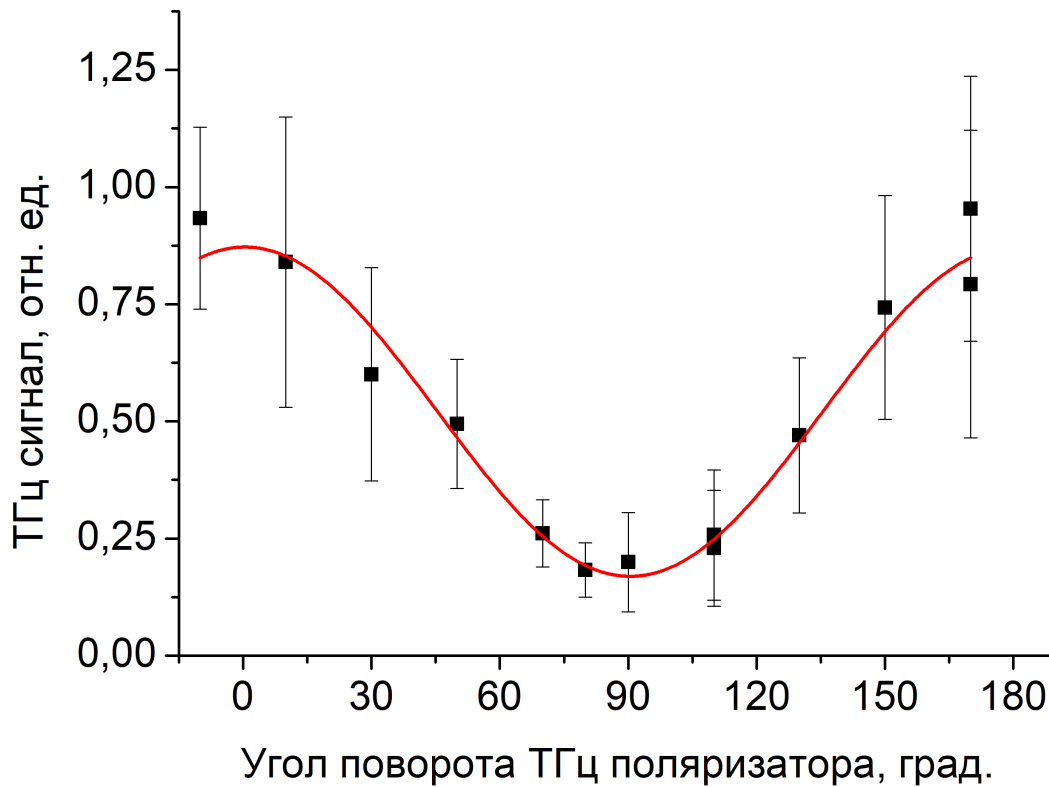


a, b - большая и меньшая оси эллипса поляризации. Ноль соответствует горизонтальной поляризации оптических импульсов.

Рисунок 2.9. Полная ТГц мощность (чёрные кружки) и $\epsilon^2 = b^2/a^2$ (красные кружки) в зависимости от угла поляризации лазерного излучения ψ .

Схематичное изображение использованной системы координат приведено на рис. 2.11.

При этом из теории следует, что $M(\psi)$ стремится к нулю, когда ψ приближается к 90° , что подтверждается в эксперименте (см. рис. 2.9). Когда $\epsilon \sim 0,02$, отношение длин малой и большой осей эллипса поляризации становится порядка 0,1, то есть разница между поляризацией измеренного ТГц сигнала и идеальной линейной поляризацией становится меньше десяти процентов. Это условие достигается при $M < 0,3$. Незначительное отличие ϵ от нуля при $\psi = 90^\circ$ в эксперименте может быть связано с ошибками измерения поляризации и остаточным количеством некогерентного излучения.



Точки соответствуют экспериментальным данным, а красная линия - аппроксимации синусоидой. Ноль соответствует горизонтальной поляризации, оптическая поляризация для обоих импульсов была горизонтальной.

Рисунок 2.10. ТГц мощность в зависимости от угла поворота ТГц поляризатора.

2.3.2 Спектральный состав терагерцового излучения

Спектр испускаемого ТГц излучения представлен на рисунке 2.12. Чтобы улучшить отношение сигнал/шум, было проведено усреднение 100 реализаций интерферограмм от интерферометра Майкельсона (см. приложение А.3). Центральная частота составляла около 1,15 ТГц с FWHM 1,5 ТГц. Чтобы удостовериться, что спектр отображает свойства источника и не ограничен измерительной установкой, был также зарегистрирован спектр двухцветной плазмы оптического пробоя воздуха в той же экспериментальной установке (синяя линия на рис. 2.12, см. также [170; 171]). Оказалось, что спектр воздушной плазмы имеет более высокочастотные компоненты, и его макси-

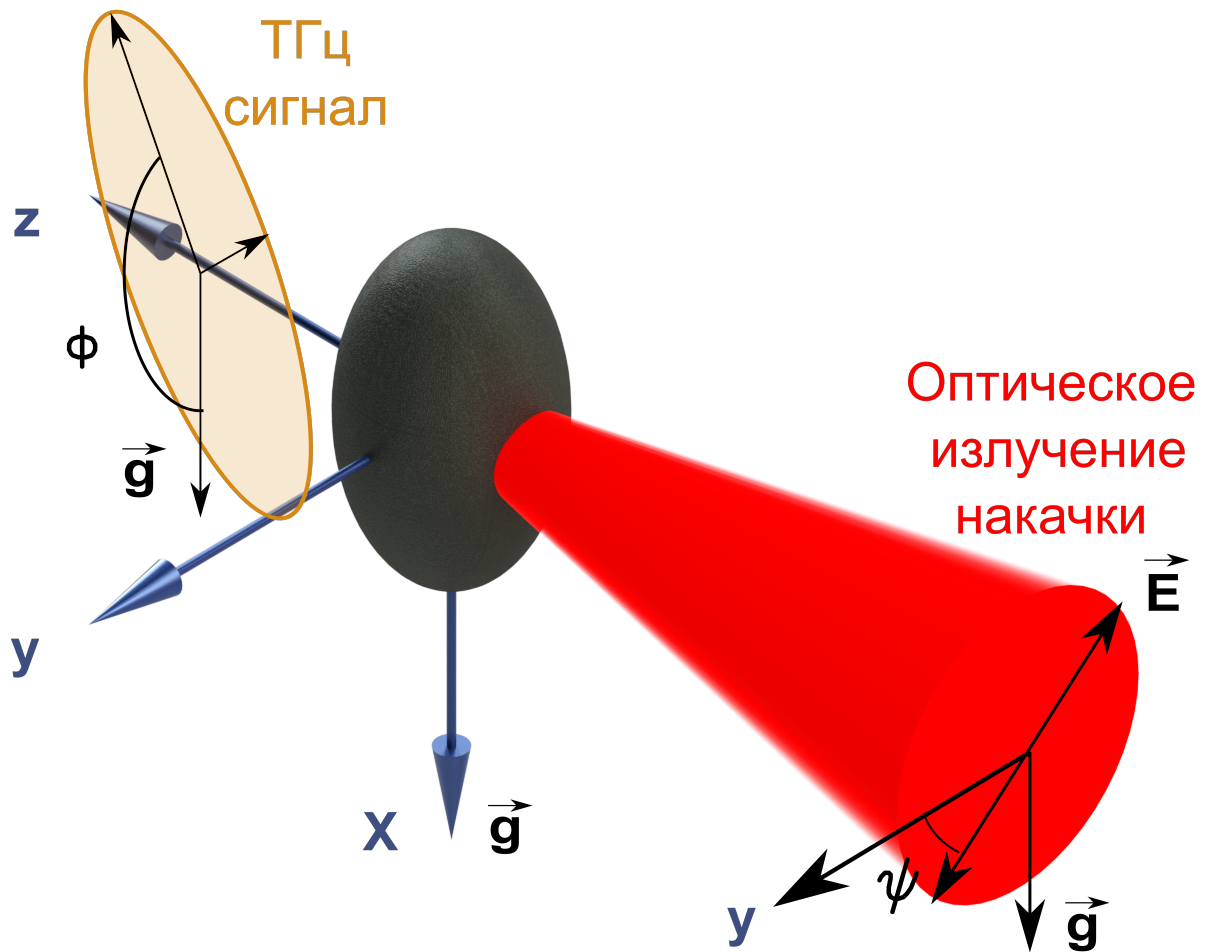
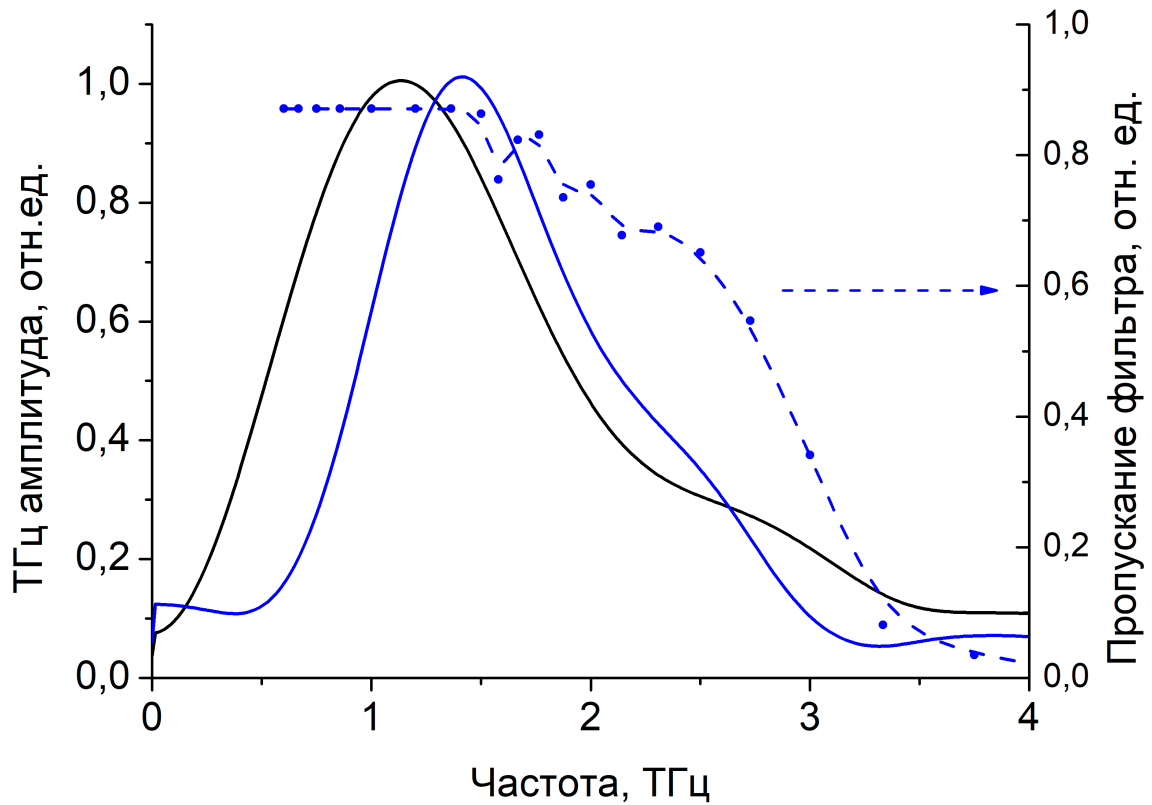


Рисунок 2.11. Схема используемой системы координат и углов.

мум находится на 1,5 ТГц. Геометрия установки позволяла собрать полный спектр излучения ввиду угла светосбора 19° [170; 171], но положение кристалла ВВО было не оптимальным из-за вакуумной камеры. Кроме того, на спектр от плазмы оптического пробоя воздуха влиял дополнительный 3 ТГц фильтр нижних частот, используемый в этом случае. Поглощение выходного ТГц окна растёт с увеличением частоты [172], но этот эффект проявляется для частот более 2,5 ТГц. Таким образом, ТГц спектр излучения капли расположен на более низких частотах, чем в случае двухцветного источника плазмы оптического пробоя. Следует, однако, отметить, что для одноцветной оптоиндуцированной плазмы в воздухе [51] пик спектра также находится вблизи или даже ниже 1 ТГц. При использовании терминологии плазменной частоты [171], можно получить, что наиболее активная область ТГц излучения имеет меньшую электронную плотность N_e , чем в случае воздушной



Черная сплошная линия соответствует каплям, а синяя сплошная линия - двухцветной эмиссии воздушной плазмы. Синяя пунктирная линия обозначает пропускание дополнительного фильтра болометра, используемого в случае воздушной плазмы.

Рисунок 2.12. Спектр ТГц излучения.

плазмы. Но из рисунка 2.7 ясно, что прикапельная область имеет огромные градиенты для всех параметров при размерах, близких к длине волны, даже для оптического излучения, поэтому такой подход может быть неприменим.

2.4 Теоретические оценки

2.4.1 Поглощение оптического излучения криволинейной поверхностью капель

Для эллиптической поверхности капель можно записать уравнение поверхности

$$z(x, y) = \sqrt{(d^2 - x^2/F^2 - y^2)},$$

где x, y, z - декартовы координаты согласно рис. 2.11, $d = 24$ мкм и $1 < F < 1.2$ - меньшая из полуосей эллипса и соотношение полуосей соответственно. Можно ввести два угла: α - угол между нормалью к поверхности и лазерным лучом, и β_1 между направлением вектора электрического поля E оптического импульса и вектором в точку наблюдения в xy -плоскости. Для удобства, можно ввести также угол β_0 между направлением вектора электрического поля E оптического импульса и осью y . Тогда можно вычислить:

$$\cos(\alpha) = \frac{z(x, y)}{\sqrt{z(x, y)^2 + y^2 + \frac{x^2}{F^2}}}$$

$$\cos(\beta_1) = \cos(\beta_0) \frac{y}{\sqrt{y^2 + \frac{x^2}{F^2}}} + \sin(\beta_0) \frac{x}{F \sqrt{y^2 + \frac{x^2}{F^2}}}$$

Если считать распределение интенсивности по оптическому пучку гауссовым, её можно записать как

$$I(x, y) = e^{-\frac{x^2 + y^2}{2D^2}},$$

где $D = 15$ мкм - FWHM оптического пучка в перетяжке. С учётом показателя преломления для длины волны $\lambda = 800$ нм (refractiveindex.info)

$$n = \sqrt{\varepsilon} = 2,38 + 6,68i. \quad (2.1)$$

для р- и s- поляризаций коэффициент "пропускания" равен [173]

$$T_p = \operatorname{Re} \left[\left(\frac{2 \cos(\alpha(x, y)) n}{n^2 \cos(\alpha(x, y)) + \sqrt{(n^2 - 1 + \cos^2(\alpha(x, y)))}} \right) \right];$$

$$T_s = \operatorname{Re} \left[\left(\frac{2 \cos(\alpha(x, y))}{\cos(\alpha(x, y)) + \sqrt{(n^2 - 1 + \cos^2(\alpha(x, y)))}} \right) \right];$$

С учётом этого можно рассчитать поглощение на единицу площади капли. Результаты расчётов приведены на рисунках 2.13. Можно отметить, что учёт кривизны поверхности капли и поляризации приводит к примерно 2 % поправке к коэффициенту поглощения.

$$P = [T_p \cos^2(\beta_1) + T_s (1 - \cos^2(\beta_1))] \cos(\alpha(x, y)) I(x, y)$$

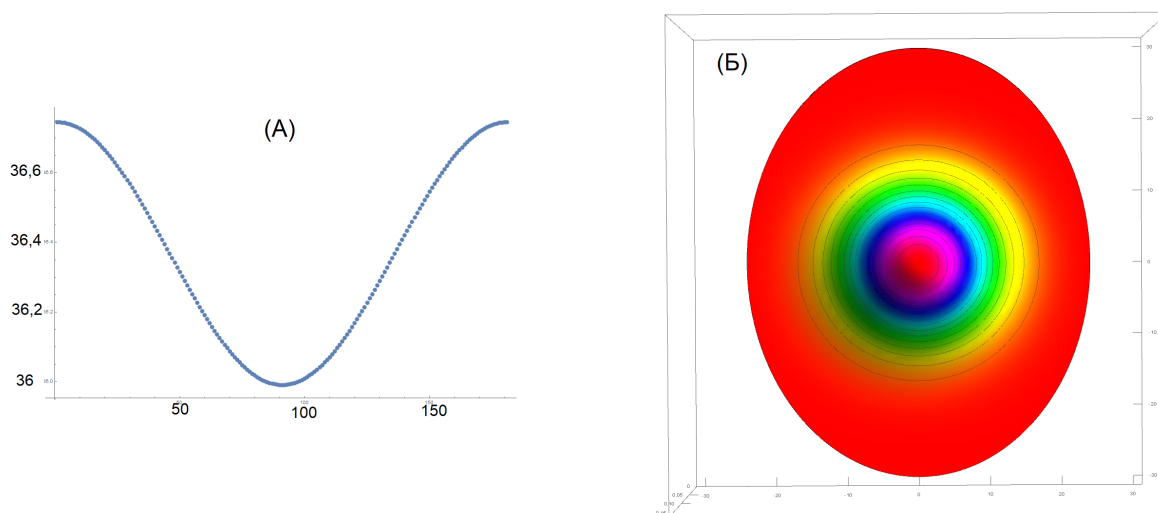


Рисунок 2.13. Теоретические расчёты суммарного поглощения (а) в зависимости от угла между вектором электрического поля оптического импульса и горизонтальной плоскостью и пример распределения поглощенной энергии по поверхности капли (б) для нулевого угла.

2.4.2 Взаимодействие капель с субпикосекундными лазерными импульсами

Общая схема процессов, происходящих при двухимпульсном фотовозбуждении капель, приведена на рис. 2.14. Следует отметить, что на временах порядка десятков-сотен пикосекунд форма жидкокапельной мишени остаётся неизменной, тогда как на субмикросекундных временах формируемая в капле ударная волна приводит к её разлёту на большое количество "осколков" (рис. 2.14, Е).

Энергия оптического излучения расходуется на испарение материала расплава с его последующей ионизацией. Как видно из табл. 0.1, для расплава характерна надбарьерная ионизация. На субпикосекундных временах (рис. 2.14, В) энергия поглощается электронами. При этом изначально электронное распределение имеет вид, отличный от Максвелловского. Следует отметить, что по-видимому ранее наблюдаемая ТГц генерация от металлических поверхностей происходит на данном этапе. На больших временах выравниваются электронные и ионные температуры, и происходит расширение плазменного облака с понижением его плотности (рис. 2.14, В). К моменту прихода второго импульса вблизи поверхности капли находится плазменное облако, объём и плотность которого зависят от задержки между импульсами и энергии

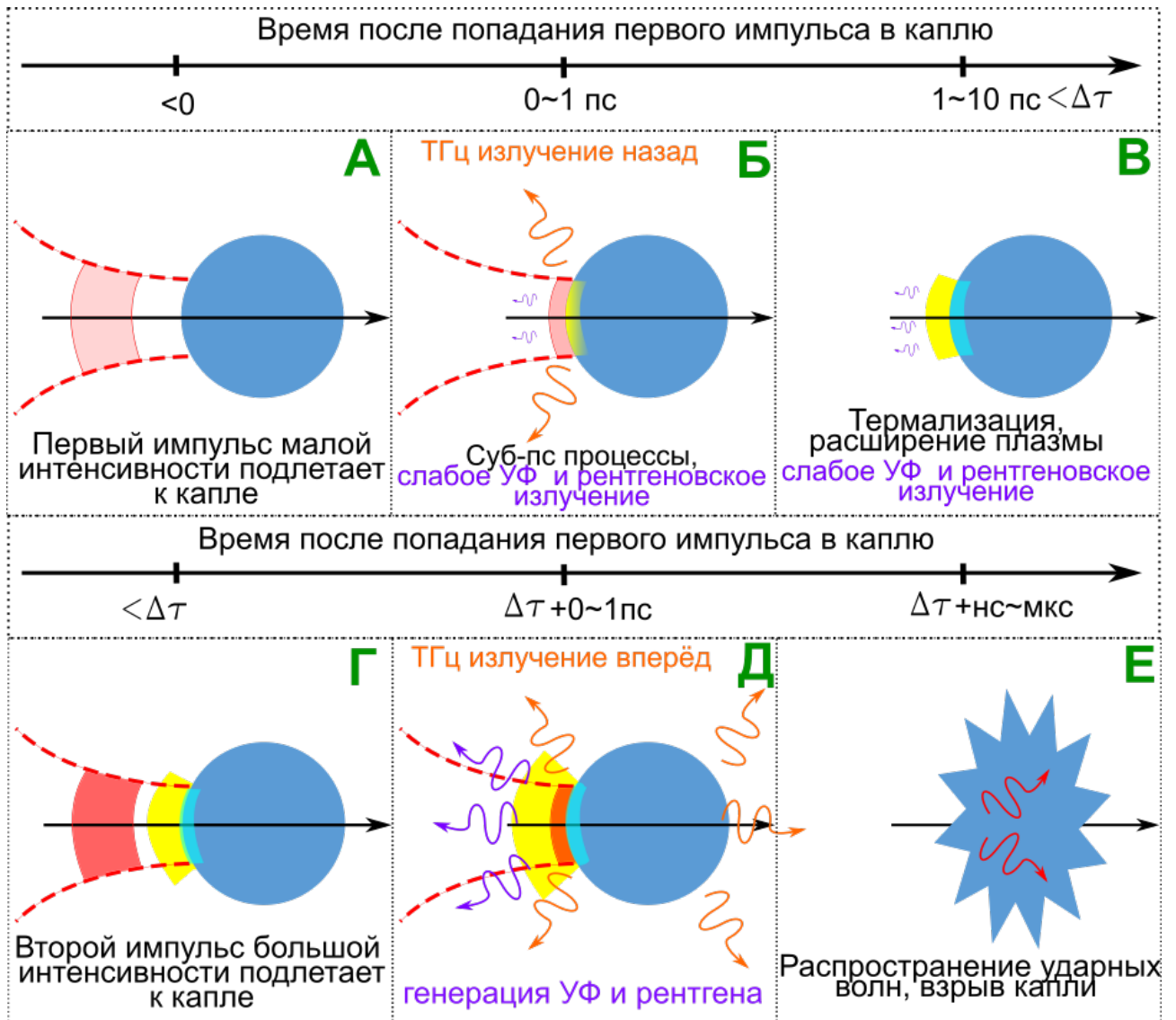
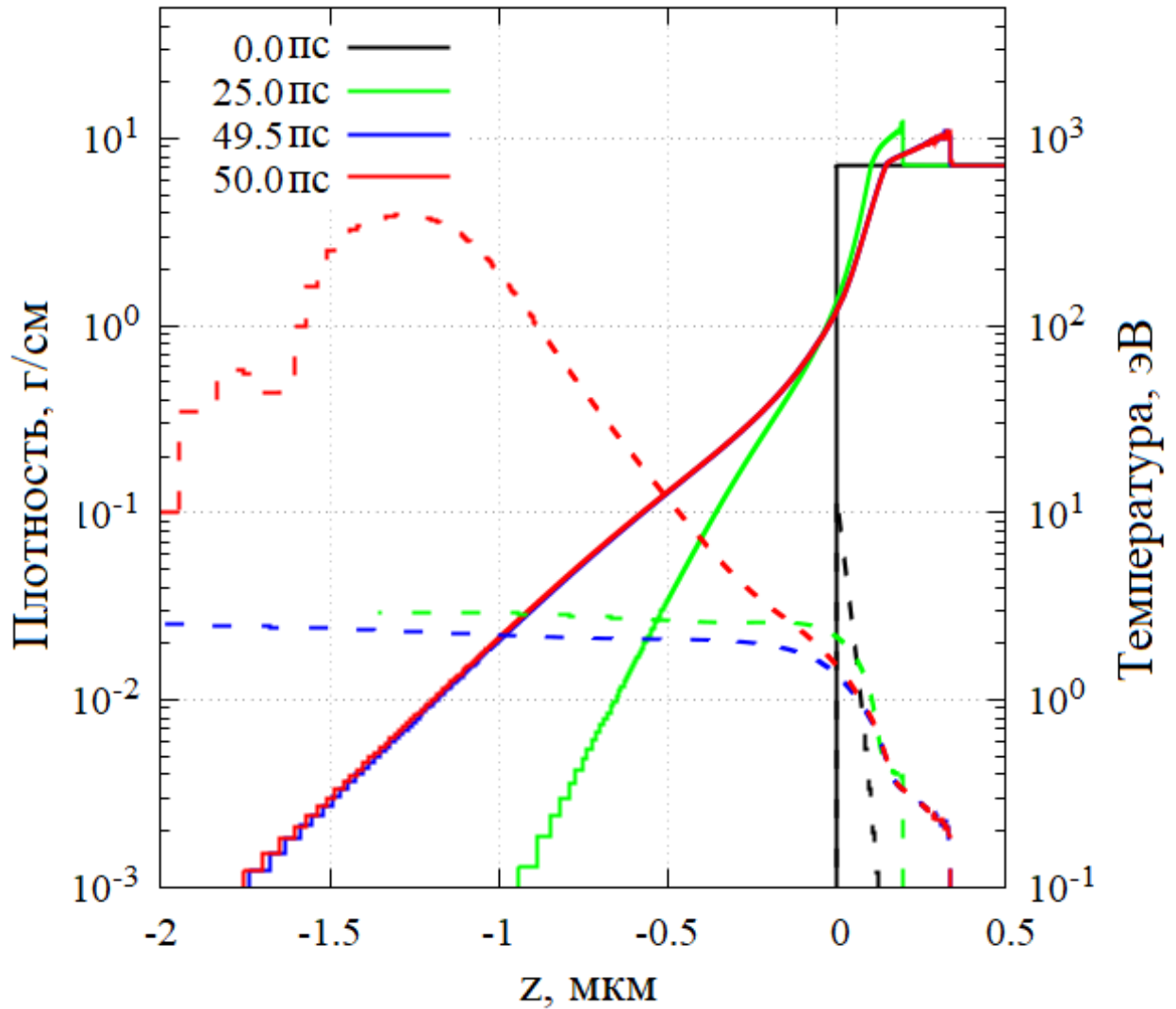


Рисунок 2.14. Схематическая иллюстрация стадий взаимодействия капли с субпикосекундными лазерными импульсами.

предымпульса (рис. 2.14, Г). Взаимодействие субпикосекундного излучения с данной плазмой приводит к генерации ТГц излучения, регистрируемой в эксперименте (рис. 2.14, Д).

Сферическая субволновая капля, находящаяся в ближней зоне локализованного ТГц излучателя, эффективно рассеивает попавшее на неё излучение, что приводит к возможности регистрации сигнала в области за каплей - по сути, в её тени. Поскольку размеры капель сопоставимы с длиной волны ТГц излучения, диаграмма направленности такого рассеяния имеет сложный характер и остро зависит от размера капель и поляризации ТГц излучения [174].



Энергия первого импульса 39 мкДж, второго 720 мкДж, задержка между импульсами 50 пс. Представлены распределения в моменты времени в диапазоне $0 \div 50$ пс. Сплошные кривые соответствуют плотности, пунктирные - температуре.

Рисунок 2.15. Численное моделирование плотности и электронной температуры вблизи поверхности капли.

Принимая во внимание показатель преломления материала капли (2.1), а также оценки из работы [175; 176], можно считать, что поглощается порядка $15 \div 20\%$ падающего оптического излучения. Проведённые вычисления в рамках приближения одножидкостной двухтемпературной модели позволили получить распределения максимальной энергии электронов и плотности вещества вблизи поверхности капель (см. рис. 2.15).

Как видно из рис.2.15, поглощение 15% части первого импульса в 20-нм

скин-слое капли приводит к электронным температурам много больше порогов испарения и ионизации для олова. Это приводит к быстрому разлёту плазмы в области $at\ z < 0$ и ударной волны для $z > 0$ (характерные ступеньки на графиках плотности).

2.5 Выводы к главе 2

Глава посвящена процессу оптико-ТГц преобразования при взаимодействии двух субпикосекундных лазерных импульсов с одиночной металлической микрокаплей.

Продемонстрировано, что металлическая микрокапля, размер которой $d=50$ мкм много меньше ТГц длины волны $\lambda \sim 300$, является точечным источником ТГц излучения. Показано, что генерация интенсивного ТГц излучения при двухимпульсном возбуждении микрокапель фемтосекундным лазерным излучением позволяет более чем на 2 порядка увеличить терагерцовый сигнал по сравнению с одноимпульсным возбуждением.

Мощность ТГц излучения существенно зависит от задержки между импульсами и соотношения их энергий. Был зарегистрирован сигнал до 2 пДж при суммарной энергии импульсов накачки 0.76 мДж.

Спектр ТГц излучения имеет центральную частоту 1.14 ТГц и FWHM 1.4 ТГц.

Зарегистрирован как сонаправленный с оптическим излучением ТГц сигнал, так и излученный под углом 120° . При этом их энергии сопоставимы.

ТГц излучение эллиптически поляризовано. Эллиптичность и мощность ТГц излучения зависят от поляризации излучения оптической накачки. Показано, что излучение имеет когерентное происхождение, так как оно хорошо поляризовано и состояние поляризации зависит от одного из лазерных импульсов. Взаимодействие фс импульса и микрокапли эллиптической формы может быть описано нелинейной поляризацией второго порядка.

Глава 3

Генерация терагерцового излучения в газово-нанокластерных струях

Глава посвящена оптимизации оптико-ТГц преобразования в дискретной среде - потоке газовых кластеров. Такая среда сочетает достоинства твёрдых тел и газов: с одной стороны, высокая локальная плотность приводит к большим нелинейным коэффициентам, а с другой - низкая средняя плотность упрощает распространение оптического и ТГц излучения в среде. Ввиду несовершенства генератора газовых кластеров, в реальном эксперименте приходится иметь дело со смесью газа и сформировавшихся кластеров, причём ключевые характеристики такой смеси меняются при удалении от точки её формирования. Экспериментально показано, что изменение длительности лазерных импульсов путём внесения линейной фазовой модуляции (т.н. чирпа) может существенно повысить эффективность преобразования. При этом существуют симметричные относительно нуля по коэффициенту линейной модуляции точки оптимума эффективности преобразования. Результаты главы изложены в работах [80; 87].

3.1 Введение

При адиабатическом расширении в вакуум газа через специального вида сопло возможно образование агрегатов - кластеров, состоящих из большого количества атомов и молекул газа (до 10^7) [177; 178]. Атомы в таких агрегатах связаны ван-дер-ваальсовскими силами. Для кластерных сред характерна высокая локальная плотность и большие значения нелинейных коэффициентов. Газо-кластерные струи в качестве среды для нелинейно-оптического взаимодействия мощных лазерных пучков применялись для генерации рент-

геновского излучения [59; 179; 180] и высших гармоник [181], ВКР [182], а также самофокусировки [183]. Было также показано, что поглощение лазерного излучения в пучке кластеров может достигать высоких значений (до 95%) из-за линейного (Ми) и нелинейного резонансного взаимодействия [184; 185].

Изначально, интерес к кластеризованным средам обусловлен излучением мощных рентгеновских импульсов [59; 179; 180] при лазерной фемтосекундной накачке. Феноменологическое объяснение этого процесса приведено в [38; 39]. Под действием фемтосекундного лазерного импульса происходит многократная ионизация атомов, входящих в состав агрегата. Таким образом, кластер трансформируется в плазму твердотельной плотности. Электрон-ионные столкновения приводят к дополнительному возбуждению ионов с испусканием рентгеновского излучения. Ввиду малой плотности газов, в них такой процесс маловероятен [186]. Рентгеновское излучение можно использовать для диагностики наличия кластеров в пучке.

В недавних экспериментальных и теоретических работах было показано, что при взаимодействии субпикосекундных лазерных импульсов с такими объектами возможна и эффективная генерация ТГц излучения [66—72]. В ходе экспериментов было показано, что, в отличие от газовых сред [33; 34], в газо-кластерных струях зависимость ТГц энергии от интенсивности лазерного излучения не испытывает насыщения вплоть до максимально достижимых экспериментально интенсивностей 10^{17} Вт/см² (энергия 70 мДж/лазерный импульс) [67], что является перспективным для получения мощных ТГц импульсов. В работах [66; 67] была произведена оценка энергии ТГц импульсов, и был показан рост эффективности преобразования на 2 порядка при переходе от газообразного к кластеризованному аргону для равной средней атомарной плотности. Были исследованы одноцветная [66] и двухцветная [69] схемы возбуждения. Как и в газе, переход к двухцветной схеме увеличивал эффективность оптико-ТГц преобразования.

Диаграмма направленности такого источника, полученная в [66—68], представляет собой четырёхлепестковую структуру, где лепестки расположены симметрично относительно оптической оси лазерной накачки, угол между

направлениями на локальный максимум и оптической осью составляет порядка 30° . Было сделано предположение, что такой вид диаграммы направленности обусловлен квадрупольным характером процесса генерации низкочастотного излучения, возникающего в плазменном филаменте в результате действия градиентной поперечной силы лазерного импульса на электроны.

В данной главе приводятся результаты экспериментов по оптико-ТГц преобразованию в газовой-кластерных струях с использованием одно и двухцветных схем возбуждения. Параллельно, производилась регистрация мощности и спектрального состава рентгеновского излучения для характеристики имеющихся кластеров.

3.2 Экспериментальная установка

Схема экспериментальной установки приведена на рис. 3.1. В качестве источника оптического излучения использовалась лазерная система с усилением чирпированных импульсов на основе фемтосекундного титан-сапфирового лазера с многопроходным усилителем (см. табл. А.1, система 3). Длительность импульса τ изменялась в диапазоне $50 \div 600$ фс чирпированием лазерного импульса в вакуумном решетчатом компрессоре.

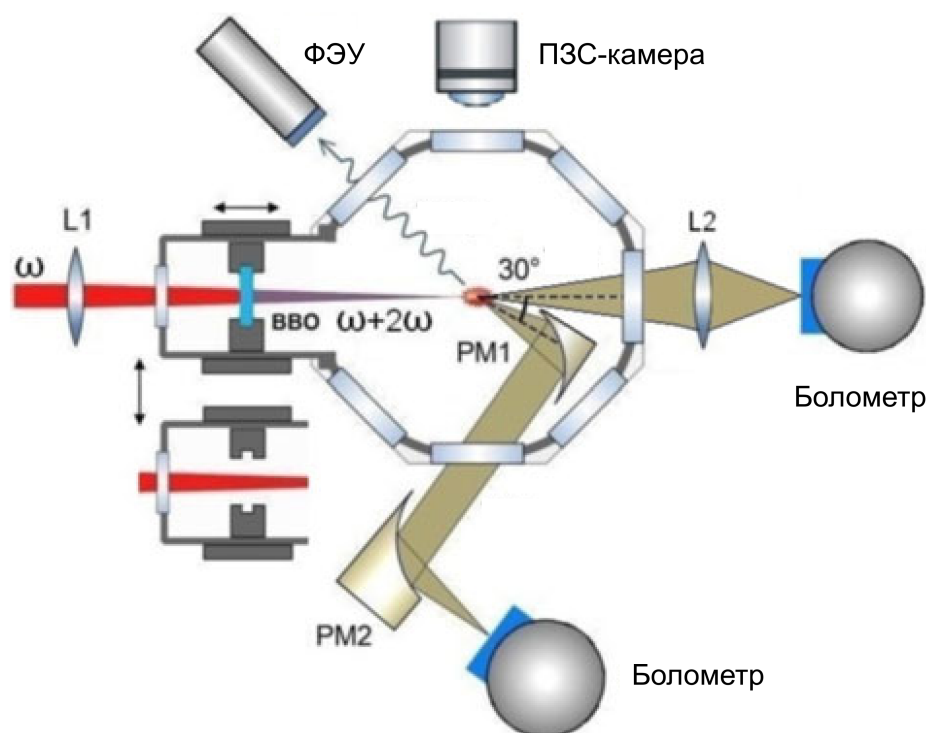
Для создания газо-кластерных пучков применялась техника адиабатического расширения газа в вакуум через специальное сверхзвуковое коническое сопло [177; 178]. Входной диаметр составлял $d_{in} = 0,75$ мм, выходной диаметр $d_{out} = 4$ мм, угол полураскрытия $\alpha = 5^\circ$, длина была равна 24,7 мм. Сопло было подключено к камере высокого давления с импульсным электромагнитным клапаном, который работал с частотой повторения $1,25 \div 5$ Гц и был синхронизирован с лазерными импульсами. Временная задержка между лазерным импульсом и открытием клапана задавалась модулем синхронизации для управления и оптимизации процесса формирования кластеров. Для получения кластеров использовался чистый газообразный аргон, максимальное значение давления газа достигало 2 МПа, а рабочее давление в вакуумной камере при непрерывной откачке турбомолекулярным насосом не превышало

5 мТорр.

Средний радиус образовавшихся кластеров аргона можно оценить по закону Хагены, модифицированному для больших кластеров [187] равным 20 нм. Эксперименты по рэлеевскому рассеянию показали, что закон Хагены дает завышенный размер кластера, и в [188] была предложена поправка к закону Хагены. Авторы экспериментально установили, что средний размер кластера, который характеризуется числом атомов в кластере N_{exp} , связан с N_{theor} - оценкой числа атомов в кластере по закону Хагены, как $N_{exp} = N_{theor}\eta^{-2}$, где η - соотношение размеров, полученное в [188]. В эксперименте лазерный луч был сфокусирован на 5 мм ниже выходного отверстия сопла, в этой точке средней радиус кластеров можно оценить в 14 нм.

Согласно [189], доля кластеров в газокластерной смеси постоянно увеличивается, при увеличении продолжительности открытия клапана от 300 до 800 мкс. В эксперименте продолжительность открытия клапана была равна 400 мкс. Оценки показывают, что доля кластеров в таком случае составляет $10 \div 12\%$, что соответствует плотности кластеров около $5 \cdot 10^{11} \text{см}^{-3}$.

Оптическая часть установки, изображенной на рис. 3.1, могла формировать как одноцветную, так и двухцветную накачку и предусматривала возможность светосбора ТГц излучения в прямом (вдоль луча накачки) и боковом (под углом 30° к первому) направлениях. Лазерное излучение фокусировалось в газо-кластерную струю линзой L1 ($F = 200$ мм) на расстоянии 5 мм ниже края сопла. Выходное окно вакуумного решетчатого компрессора, входное окно вакуумной камеры и фокусирующая линза L1 были изготовлены из MgF_2 , который имеет низкое значение нелинейного показателя преломления n_2 . Это позволило избежать влияния эффектов самовоздействия лазерного луча при его распространении. Кристалл ВВО толщиной 200 мкм помещался внутри вакуумной камеры рядом со входным окном, и мог использоваться для генерации второй гармоники коллинеарно основному лазерному лучу в двухцветной схеме возбуждения. Фундаментальное лазерное излучение на входе в кристалл было линейно поляризовано в горизонтальной плоскости. Плоскость поляризации второй гармоники определялась ориентацией кристалла ВВО и составляла угол около 70° относительно горизонтали.



PM1, PM2 - внеосевые параболические зеркала, ВВО- нелинейный кристалл ГВГ, L1 - линза фокусирующая

Рисунок 3.1. Экспериментальная установка для изучения ТГц генерации в газовой-кластерных струях.

Как было показано в [66—68], угловое распределение ТГц излучения, генерируемого в пучке аргоновых кластеров, содержит четыре лепестка. Внеосевые металлизированные параболические зеркала PM1 и PM2 собирали ТГц излучение от одного из основных пиков углового распределения мощности, которое находится в 30° от оси лазерного луча, и фокусировали его в детектор. PM1 имело фокусное расстояние 50 мм и апертуру 25 мм, PM2 - фокусное расстояние 150 мм и апертуру 50 мм. Для сбора ТГц излучения, испускаемого в прямом направлении, использовалась полипропиленовая линза L2. ТГц излучение покидало вакуумную камеру через полипропиленовые окна с полосой пропускания $0 \div 3,5$ ТГц, и детектировалось охлаждаемым кремниевым болометром (Infrared Laboratories, см. табл.А.2). Для регистрации рентгеновского излучения применялся ФЭУ со сцинтиллятором NaI (толщина 5 мм). Оптическое изображение филамента в газовой-кластерном пучке также контролировалось ПЗС камерой с объективом, направленными ортогонально опти-

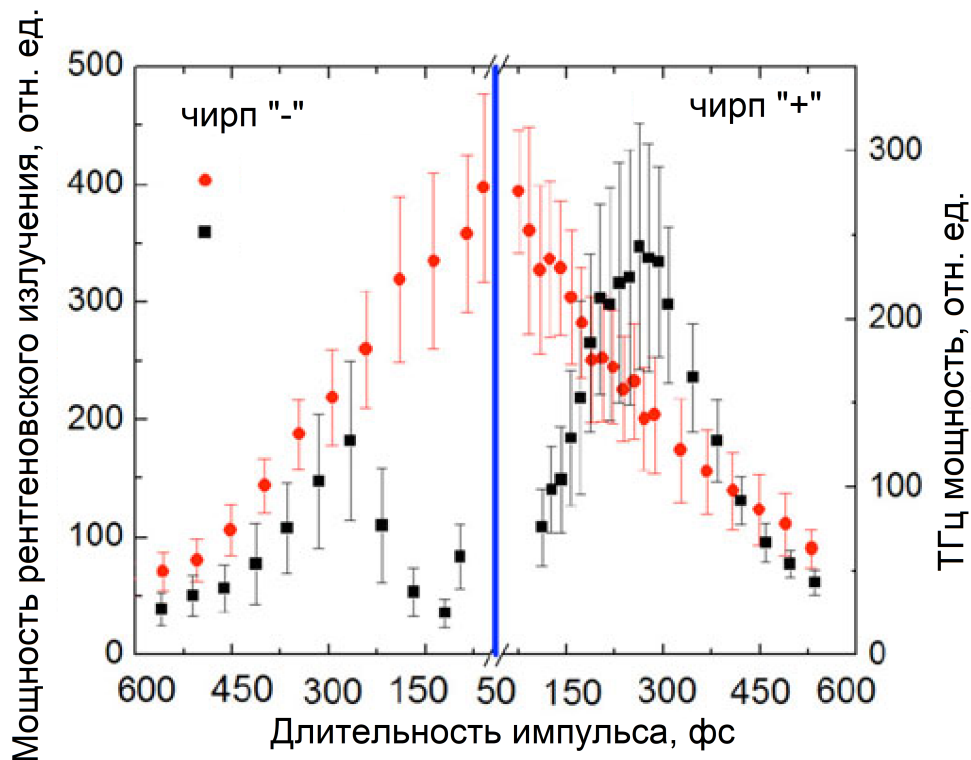
ческой оси системы.

3.3 Экспериментальные результаты

3.3.1 Одноцветная накачка

В ходе экспериментов по оптико-ТГц преобразованию в газо-кластерных струях варьировались два основных параметра лазерного излучения: энергия в импульсе и длительность импульса. Последний параметр изменялся перестройкой компрессора лазерной системы, при которой происходит линейная фазовая модуляция лазерных импульсов (чирпирование). При одноцветной накачке ТГц излучение наблюдалось только под углом 30° относительно оптической оси системы. В прямом направлении ТГц сигнал от газо-кластерной аргонной струи не превышал шума детектора. На рис. 3.2 приведены зависимости энергии ТГц и рентгеновских импульсов, совместно генерируемых в газо-кластерном пучке аргона в зависимости от длительности лазерного импульса для двух знаков чирпирования лазерных импульсов. Можно отметить, что ТГц сигнал имеет локальный минимум в области минимальной длительности лазерного импульса, тогда как рентгеновский сигнал демонстрирует максимальное значение. В то же время, существует два локальных максимума ТГц сигнала, симметричные относительно спектрально-ограниченного случая. Минимальная длительность лазерного импульса (и максимальный выход рентгеновского излучения) характеризуется интенсивностью в вакууме $1,3 \cdot 10^{17} \text{ Вт/см}^2$ лазерного излучения, что достаточно для появления нелинейных резонансных механизмов нагрева кластеров.

Влияние длительности лазерных импульсов на рентгеновский сигнал из аргонных кластеров при интенсивной субпикосекундной лазерной накачке наблюдалось в [180] и объяснялось процессом нелинейного резонансного поглощения, который включает в себя энергичные электронные колебания, проходящие через кластер. При росте длительности лазерного импульса уменьшается его интенсивность, и нагревательный механизм изменяется на линейный, что приводит к снижению сигнала рентгеновского излучения. Сходное



Режим одноцветного возбуждения, энергия лазерного импульса 22,7 мДж, давление аргона до сопла 2 МПа.

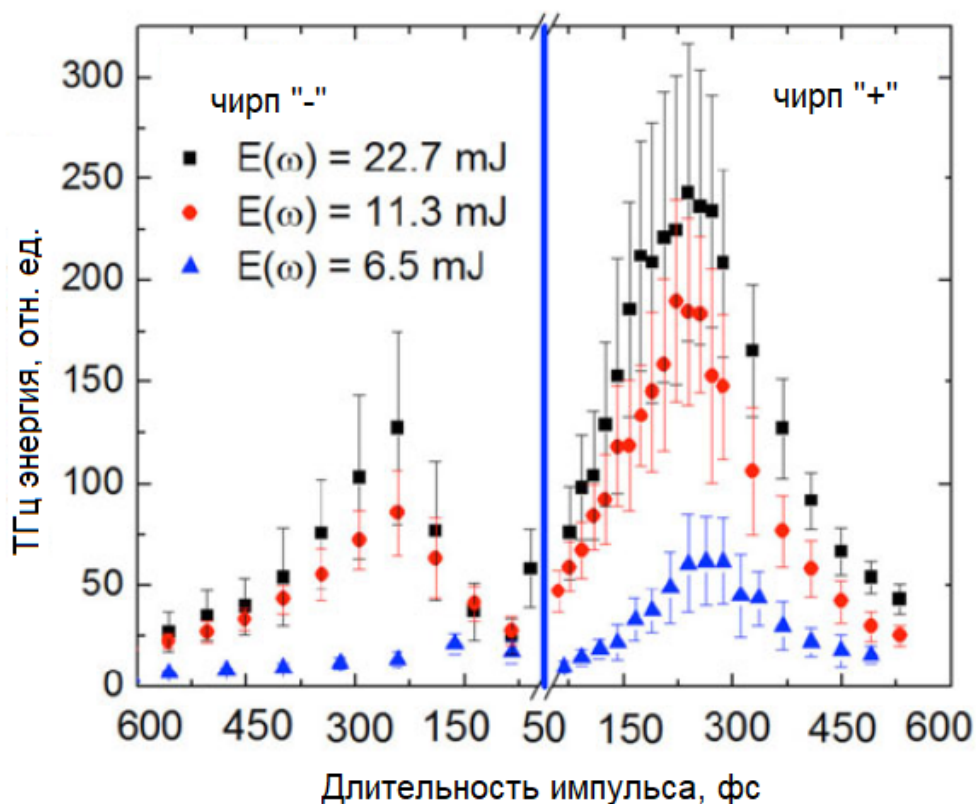
Рисунок 3.2. ТГц и рентгеновский сигнал из струи аргоновых кластеров как функция длительности лазерных импульсов.

поведение рентгеновского сигнала для различных длительностей импульса наблюдалось и в этом эксперименте (см. рис. 3.2).

ТГц излучение могло поглощаться в плотной кластерной плазме, генерируемой лазерным полем высокой интенсивности, потому что лазерная интенсивность имеет максимальное значение при минимальной длительности импульса для заданной суммарной энергии. Для проверки этой гипотезы были проведены измерения ТГц сигнала для трех различных энергий импульсов. Из рис. 3.3 видно, что все три кривые демонстрируют одинаковое поведение и их форма не зависит от общей энергии лазерных импульсов при трех значениях энергии.

3.3.2 Двухцветная накачка

В режиме двухцветного возбуждения газо-кластерной струи аргона ТГц излучение было зарегистрировано в обоих направлениях светосбора. Выход ТГц

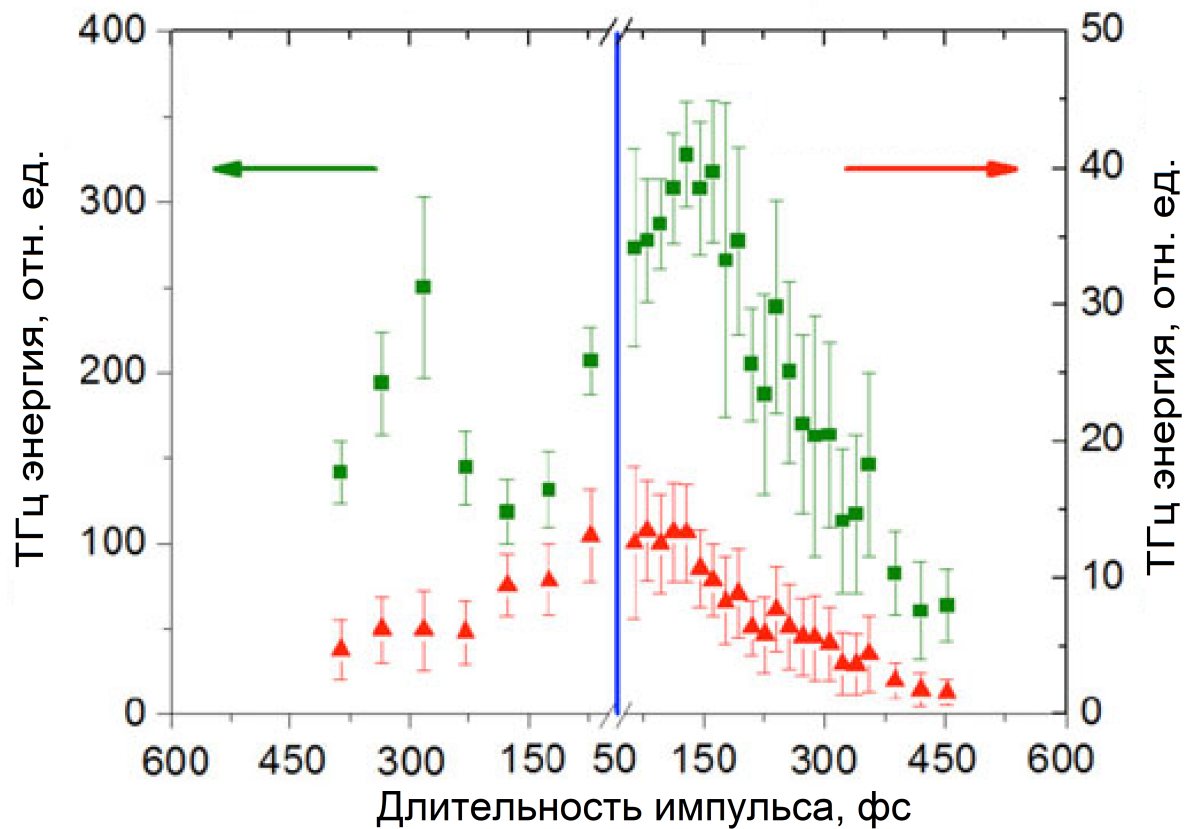


Энергия импульсов: 6,5; 11,3; 22,7 мДж. Режим одноцветного возбуждения, давление аргона до сопла 2 МПа.

Рисунок 3.3. ТГц сигнал от струи аргоновых кластеров как функция длительности лазерных импульсов при различных энергиях импульсов.

излучения в направлении 30° относительно оптической оси был на порядок величины больше, чем в прямом направлении. Соотношение между абсолютными значениями этих двух ТГц сигналов было оценено с учетом разницы в светосборе и условиях распространения ТГц лучей. Кроме того, использование двухцветного режима возбуждения дало примерно пятикратное увеличение ТГц сигнала по сравнению с одноцветным режимом возбуждения (при сравнении ТГц сигналов, генерируемых в оптимальных условиях для обоих случаев). Рентгеновский сигнал не изменился при переходе от одноцветного к двухцветному режиму. Кроме того, рентгеновский сигнал не зависел от угла поворота кристалла ВВО (что приводит к изменению интенсивности излучения 2й гармоники и изменения состояния поляризации обоих излучений).

Кривые на рис. 3.4 отображают зависимости энергии ТГц импульсов, генерируемых струей аргоновых кластеров под углом 30° относительно опти-



Красным точкам соответствует излучение в прямом направлении, зелёным - собранное под углом 30° к лазерному лучу накачки. Режим двухцветного возбуждения, давление аргона 2 МПа.

Рисунок 3.4. ТГц сигнал от струи аргоновых кластеров как функция длительности лазерных импульсов для двухцветной накачки.

ческой оси и вдоль неё. Обе зависимости были измерены как функции длительности лазерного импульса. Как видно из рисунка 3.4, величина ТГц сигнала, зарегистрированного под углом 30° относительно оси лазерного луча уменьшается в области минимальной длительности лазерных импульсов, но глубина провала не такая большая, как в случае одноцветного режима возбуждения. В отличие от этого, ТГц сигнал, собранный в прямом направлении возрастает до максимального значения при минимальной длительности возбуждающего лазерного импульса. Можно предположить, что ТГц излучение в прямом направлении происходит от взаимодействия двухцветных лазерных импульсов с некластеризованным газом. Степень кластеризации аргона в кластерной струе была оценена как $10\% \div 12\%$, следовательно, процент-

ное содержание мономеров (некластеризованных атомов) в струе аргона было около 90%. Таким образом, ТГц излучение в прямом направлении может вызываться процессом четырехволнового смешения ($2\omega - \omega - \omega$, см. раздел 1.5.4) и переходного фототока $J(t)$ (разд. 1.5.2), аналогично случаю генерации ТГц излучения при оптическом пробое в газовых средах с двухцветными лазерными импульсами. В этом случае ТГц сигнал максимален в максимуме интенсивности лазерного излучения (т.е. при минимальной длительности лазерного импульса), поскольку эффективность процесса четырёхволнового смешения и скорость фотоионизации максимальны при этих условиях.

Кроме того, как видно на рис. 3.2, 3.3, 3.4, положительно chirпированный возбуждающий импульс приводит к несколько более высокому сигналу ТГц излучения по сравнению с отрицательно chirпированным. Этот эффект может быть объяснен спектральной асимметрией лазерных импульсов в лазерной системе. Как показано в [190], из-за спектральной асимметрии chirпированные импульсы во временном представлении имеют «плечо», расположенное на переднем или заднем фронте основного импульса в зависимости от знака chirпирования. Если «плечо» находится на переднем краю импульса, оно действует как предимпульс и влияет на процесс взаимодействия лазерный импульс - кластер.

3.3.3 Зависимость ТГц сигнала от энергии накачки

Были проведены измерения энергии ТГц импульсов при фиксированной энергии лазерного возбуждения в двух схемах лазерного воздействия на пучки кластеров: с одноцветным воздействием на частоте ω и при двухцветном воздействии на $\omega + 2\omega$. В обеих схемах общая энергия лазерного излучения оставалась неизменной и ее преобразование во вторую гармонику в кристалле ВВО не превышало 10%. В экспериментах использовалась лазерная система с низкой частотой повторения импульсов и относительно высокими колебаниями энергии, которые не позволили измерить напряженность поля в соответствии с методами, описанными, например, в [191], и приходилось измерять интегральную энергию ТГц импульсов с использованием ячейки Голя (GC-1P, см табл. А.2), которая была предварительно откалибрована.

Каждый раз измерения проводились для максимальной энергии ТГц импульса, и для его оптимизации длительность лазерного импульса изменялась в соответствии с результатами измерений, показанными на рис. 3.2 и 3.3. При измерениях под углом 30° с энергией возбуждающего лазерного импульса 9 мДж, энергия ТГц импульса составляла около 0,6 нДж в одноцветном и 3 нДж в двухцветном режимах соответственно. Здесь следует отметить, что в экспериментальной установке (см. раздел 3.2), собиралось не всё ТГц излучение ввиду его сложного пространственного распределения [68]. ТГц излучение собиралось в телесный угол 0,2стерадиана, который обеспечивался параболическим зеркалом РМ1 (см. рис. 3.1). Энергия ТГц импульса в прямом направлении была оценена только в случае двухцветного взаимодействия величиной 0,15 нДж. В одноцветном режиме, никакого сигнала в прямом направлении не наблюдалось.

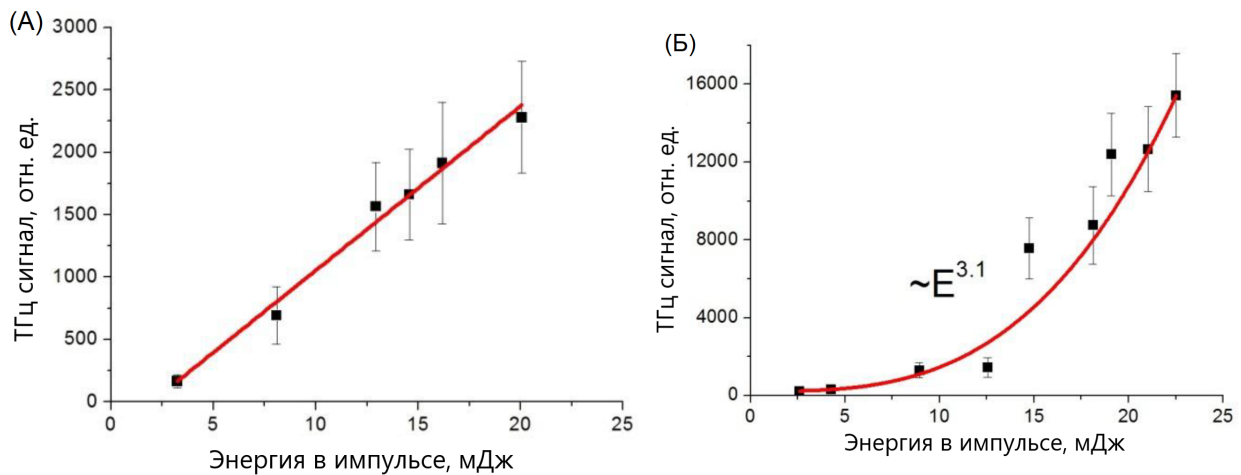


Рисунок 3.5. Зависимость ТГц сигнала от энергии накачки для одноцветной (а) и двухцветной (б) схем возбуждения.

Измеренная зависимость ТГц сигнала от мощности накачки для двух режимов возбуждения приведена на рис. 3.5. Из графиков видно, что обе зависимости можно аппроксимировать степенной функцией, причём для одноцветного возбуждения зависимость близка к линейной, а для двухцветного имеет кубический характер. Кроме того, даже при больших энергиях накачки не наступает насыщения ТГц сигнала.

3.4 Теоретические оценки

Можно предположить, что описанные выше зависимости рентгеновского и ТГц сигналов от длительности лазерного импульса относятся к некоторым особенностям рождения свободных электронов в кластере и самой эволюции кластеров [40]. Максимальная интенсивность лазерного излучения в эксперименте составляла $I_{max} = 1,3 \cdot 10^{17} \text{Вт/см}^2$ (для спектрально-ограниченного импульса 50 фс, см. табл. 0.2). С этими параметрами становится возможной надбарьерная ионизация (см. табл. 0.1).

Согласно [42], потенциалы ионизации для первых 11 электронов в атоме аргона лежат в диапазоне $\{15,8 - 540\}$ эВ соответственно. Тем самым, J_Z увеличивается почти в три раза между 8-м и 9-м электронами когда J_Z меняется с $J_8 = 143$ эВ до $J_9 = 423$ эВ. Поскольку интенсивность лазерного поля не превышала $I_{max} = 1,3 \cdot 10^{17} \text{Вт/см}^2$, в эксперименте степень ионизации Z была зафиксирована на уровне $7 \div 8$. Чирпирование лазерного импульса не могло изменить это значение, потому что I_{max} изменяется лишь в 12 раз в диапазоне изменения длительностей импульса. Для первых восьми уровней аргона, потенциал ионизации почти пропорционален Z и может быть оценен как $J_Z \approx 16,5 \cdot Z$ эВ. В соответствии с [40], время ионизации этих уровней может быть оценена как

$$\tau_Z \sim \frac{\sqrt{2}e^2 Z \sqrt{m_e}}{J_Z^{3/2}} \sim 10^{16} Z^{-1} [\text{с}] \quad (3.1)$$

где m_e - масса электрона. Поэтому можно считать, что ионизация происходит практически сразу - за время, меньшее чем период колебаний лазерного поля. Более глубокие уровни с $Z \geq 9$ могут быть ионизированы из-за механизма ударной ионизации (см введение).

Предположим, что взаимодействие фемтосекундного лазерного импульса с кластером аргона приводит к образованию квазинейтральной плазмы внутри ядра кластера. Квазинейтральность сохраняется в течение начальной стадии распространения лазерного импульса. Рост лазерного поля в кластере постепенно приводит к образованию неравномерного радиального распределения ионов, которое почти сферически симметрично; и формированию

асимметричного распределения электронов, которые колеблются между полюсами кластера [192].

Лазерное поле вытягивает большие сгустки электронов кластера каждую половину периода колебаний поля, в то время как ионное облако постепенно расширяется в радиальном направлении. Ввиду быстрой потери электронов, кластер постепенно приобретает электрический заряд Q . Эта обусловлено разной силой поля в разных частях кластера. Действительно, общее электрическое поле, действующее на одиночный ион, состоит из внешнего лазерного поля, усредненного по периоду лазерного поля, собственного статического поля заряженного кластера и динамического поля, связанного с вынужденными колебаниями электронного облака в кластере. В то же время, электроны достаточно быстры, чтобы следовать фазе лазерного поля.

Чтобы оценить Q , можно предположить, что плотность заряда равномерно распределена по кластеру, так что статическое поле радиально симметрично и задается как

$$E_Q(r) = \frac{Q_r}{R^2} \quad (3.2)$$

где r и R - расстояния до центра кластера и радиус кластера соответственно. Используя соотношение между зарядом кластера и напряженностью лазерного поля $Q(R) = 4ER^2$, можно получить

$$E_Q(R) = 4E. \quad (3.3)$$

Это поле имеет радиальное распределение, что приводит к тому, что под действием лазерного импульса суммарное поле заряда кластера на полюсах и на экваторе кластера будет разными. Действительно, поля, приложенные к полюсам, коллинеарны и их сумма равна $5E$, тогда как значение суммарное значение на экваторе $\sqrt{17}E$, поскольку там эти поля ортогональны. Можно предположить, что разница между амплитудой поля на полюсах и экваторе может быть намного больше из-за неоднородности пространственного распределения электронов. Как сообщалось в [193], вызванное поляризацией электрическое поле на полюсах превышает лазерное электрическое поле на порядок. Этого может быть достаточно для ионизации девятого и последую-

щих электронов из ионов аргона, но для подтверждения этого предположения необходимы дальнейшие расчеты. В любом случае, количество свободных электронов, получающихся в результате надбарьерной ионизации настолько велико, что соответствующая плазменная частота составляет, по крайней мере, на порядок величина большее значение, чем можно было обнаружить в наших измерениях. Таким образом, можно заключить, что наблюдаемое ТГц излучение не было вызвано плазменными колебаниями электронного облака в окрестностях одного кластера.

3.5 Выводы к главе 3

В данной главе изучается генерация ТГц излучения при взаимодействии оптического излучения с газовой-кластерными струями.

Проведены экспериментальные исследования при одно- и двух-цветных режимах возбуждения газовой-кластерной среды, измерены энергии ТГц излучения, генерируемого соосно лучу накачки и под углом 30° к нему. Показано, что ТГц излучение представляет сумму компонент от кластеров и некластеризованного газа, причём эти компоненты можно разделить по влиянию длительности оптического импульса на эффективность оптико-ТГц преобразования в среде.

Показано, что для кластерной компоненты излучения существует оптимальная длительность импульса ($200 \div 250$ фс), отличная от спектрально-ограниченной, при которой достигается максимум эффективности преобразования. Симметрия зависимости эффективности преобразования от внесенной линейной фазовой модуляции относительно нулевого значения говорит о том, что эффект не может быть объяснен дисперсией импульса в среде.

Глава 4

Генерация терагерцового излучения в газах

В данной главе представлены результаты экспериментального исследования поляризационных и частотно-угловых свойств ТГц излучения, а также эффективности оптико-ТГц преобразования при фокусировке сверхкоротких световых импульсов в газовую среду при изменении условий генерации: изменения размера излучающей области и параметров рабочей среды (давления газа). Исследована зависимость эффективности оптико-ТГц преобразования при переходе от разреженного газа к жидкости. Показано, что уменьшение объёма плазменной области приводит к формированию более широкой угловой диаграммы направленности ТГц излучения, а также повышает эффективность оптико-ТГц преобразования. Результаты главы изложены в работах [73; 74; 78].

4.1 Введение

Плазма оптического пробоя газов - широко распространённый и хорошо изученный источник широкополосного ТГц излучения [51—53; 194; 195]. Впервые возможность ТГц генерации в ней была показана в [194]. Дальнейшие исследования показали, что при фокусировке в газы субпикосекундных импульсов возможна генерация одиночных ТГц импульсов с широким спектром и центральной частотой в районе $1 \div 2$ ТГц. Кроме того, была показана коническая пространственная структура генерируемого ТГц излучения [52] и его радиальная поляризация. Исследования проводились в широком диапазоне фокусных расстояний фокусирующих линз, от длиннофокусных, когда в газовой среде формировался протяженный филамент, до относительно короткофокусных с плазменной областью, локализованной в районе перетяжки. Механизм генерации при одноцветной накачке схож с черенковским [52].

Очевидные методы повышения интенсивности таких источников - увеличение энергии исходных лазерных импульсов, уменьшение их длительности и подбор оптимальной длины волны для эффективной ионизации среды [196]. При этом для фокусировки лазерного излучения в среду обычно используются длиннофокусные линзы и объективы для уменьшения вероятности повреждения фокусирующей системы при большой мощности оптической накачки и заданным лазерной системой диаметром пучка. Кроме того, активно исследовались случаи с образованием протяженного филамента, что было интересно с точки зрения удаленной диагностики объектов - оптическое излучение значительно меньше поглощается в атмосфере с водяными парами. Наконец, угловая диаграмма ТГц излучения для протяженных перетяжек позволяла эффективно собирать сгенерированное излучение даже при малых апертурах оптических элементов. Однако, эффективность генерации источников на базе плазмы оптического пробоя газов оставалась порядка 10^{-6} [53].

Существенного увеличения эффективности удалось достичь при помещении перетяжки оптического излучения во внешнее постоянное электрическое поле [51; 195] величиной порядка 1 кВ/см. Оказалось, что амплитуда ТГц сигнала растёт линейно с увеличением внешнего поля [195], и возможно повышение эффективности преобразования на 3 порядка по сравнению с нулевым внешним полем [51]. Процесс генерации в данном случае можно описать четырёхволновым смещением [195] (см. раздел 1.5.4).

В ходе дальнейших исследований было обнаружено, что как и добавление статического поперечного электрического поля, использование одновременно импульсов первой и второй гармоник лазерного излучения для возбуждения среды приводит к резкому росту эффективности оптико-ТГц преобразования. Выигрыш по мощности может достигать 3 порядков, а коэффициент преобразования - 10^{-4} [129]. При этом спектр излучения оказывается также более широким, чем при одноцветной накачке [171].

Также, стоит отметить работу [165], в которой описывается влияние предимпульса оптического излучения, формирующего плазму, на свойства ТГц излучения, сгенерированного более мощным последующим импульсом. Показано, что создание плазмы предшествующим импульсом уменьшает эффек-

тивность оптико-ТГц преобразования при задержках между импульсами в десятки пикосекунд.

Для получения излучения на частоте 2ω чаще всего используется нелинейный кристалл β -бората бария (ВВО) субмиллиметровой толщины, а соотношение мощностей 1 и 2 гармоник составляет около 10:1 [74].

По сравнению с одноцветной схемой, в данном случае появляются дополнительные сложности, связанные с фазировкой двух импульсов и их различной скоростью распространения ввиду дисперсии среды. Для увеличения мощности сигнала необходимо оптимизировать мощность, поляризацию и задержку между импульсами. В простейшем и широко распространённом для газовых сред случае нелинейный кристалл устанавливается после линзы, фокусирующей излучение в вещество. Тогда, при малой дисперсии в среде, удаётся оптимизировать интенсивность второй гармоники и угол между главными осями эллипса поляризации двух импульсов путём поворота кристалла вокруг своей оси, а также его перемещением вдоль сфокусированного пучка в зоны большей или меньшей интенсивности излучения. При этом последнее действие также влияет на разность фаз между двумя гармониками, и, таким образом, на эффективность преобразования по синусоидальному закону с периодом для воздуха порядка 15 мм. Наконец, близость кристалла к перетяжке оптического излучения определяется лучевой стойкостью. Следует отметить, что поляризация второй гармоники на выходе из кристалла близка к линейной, в то время как исходно линейная поляризация первой гармоники может приобретать существенную эллиптичность ввиду двулучепреломления в кристалле. Подробно теория генерации в такой экспериментальной схеме разбирается в [197].

Достоинством такой схемы является стабильность задержки между импульсами первой и второй гармоник при неподвижном нелинейном кристалле, но её применение затруднено в случае сред, отличных от атмосферного воздуха: дисперсия в оптически плотных средах приводит к расхождению двух сверхкоротких импульсов, поскольку их пространственная протяженность составляет порядка десятков мкм. Поэтому любые оптические элементы, окна кювет и плотные среды приводят к невозможности использования

двухцветной схемы. Было предложено и используются два метода внесения предварительной задержки: схема с двумя клиньями и дополнительным нелинейным кристаллом [58] и предварительное разделение и повторное сведение пучков с внесением задержки [198]. В последнем случае можно контролировать все параметры нелинейного преобразования и состояние поляризации двух пучков, однако неизбежно появляется фазовый шум ввиду микроскопических вибраций оптических элементов, который приводит к нестабильности ТГц сигнала.

Изучению зависимости ТГц сигнала от давления газовой среды посвящены работы [135; 199—204]. Большинство авторов исследовало область низких давлений в двухцветном режиме возбуждения, получая при этом зависимость от давления колебательного характера. Такой характер зависимости может быть объяснен изменением фазы между пучками двух гармоник при изменении плотности среды. Это напрямую экспериментально показано в [203]. В работе [202] показано, что уменьшение давления газа может привести к росту эффективности преобразования. В то же время, интерес представляет изменение эффективности и механизмов генерации при переходе от разреженного к более плотному газу, и далее - к сверхкритической и обычной жидкостям.

В работе [200] для случая одноцветной накачки с приложением внешнего постоянного поля показано, что повышением давления в газе (азоте) можно добиться повышения эффективности оптико-ТГц преобразования. Правда, в данной работе такого эффекта удавалось достичь лишь за счёт повышения напряжения пробоя газа при росте давления, что позволяло авторам повышать внешнее электрическое поле. При постоянном смещении сигнал был константой в диапазоне давлений $1 \div 45$ атм.

В работе [205] предложен метод импульсной газовой струи, позволяющей минимизировать эффекты распространения оптического и ТГц излучения в среде. Используемый газ (аргон) и метод генерации (импульсный напуск газа в вакуум) позволяют проводить прямое сравнение с кластерными источниками. В [201] показано смещение максимума спектра ТГц генерации в высокочастотную область при росте давления газа.

Интересная модификация плазменного источника ТГц излучения предло-

жена в работе [53]. Авторы продемонстрировали, что можно увеличить эффективность оптико-ТГц преобразования при использовании фокусирующих систем с большой числовой апертурой, и, вследствие этого, с образованием микроплазменного облака оптического пробоя газа. Этот режим интересен также тем, что размер излучающей области по всем осям много меньше длины волны генерируемого ТГц излучения - т.е. образуется точечный излучатель.

Здесь стоит отметить, что во многих случаях оптико-ТГц преобразования область фокусировки оптического излучения по нескольким координатам имеет размеры, много меньшие длины волны излучения. Например, в случае филаментации в газовых средах диаметр филамента имеет размеры в десятки мкм, и в каждый момент времени оптический импульс имеет длину вдоль оси распространения порядка $c\tau$, где τ - длительность импульса. Таким образом, формируется "световая пуля" [206], по всем размерам намного меньшая, чем характерная длина волны ТГц излучения. В то же время, регистрируемое ТГц излучение представляет собой результат интерференции излучения такого рода "световой пули" в различные моменты времени, таким образом, источник становится протяженным. Другой показательный пример - фотопроводящая антенна - имеет зазор между электродами порядка десятков микрометров, и незначительную глубину проникновения оптического излучения в полупроводниковую подложку. Однако, в таком случае излучает система из металлических электродов и подложки, и дополнительно на свойства ТГц пучка влияет его прохождение сквозь подложку.

Сам термин "микроплазма" использовался и ранее для описания областей плазмы размером от единиц до десятков и даже сотен микрон, и скорее противопоставлялся термину "филамент". Ряд работ был посвящен динамике плазмы при острой фокусировке субпикосекундных лазерных импульсов в различные газы [207; 208]. В работах [209—211] исследовался вопрос о возможности бесконтактной диагностики микроплазменных областей при помощи ТГц излучения. В данной главе микроплазмой будет обозначаться область плазмы, которая имеет субволновые размеры для ТГц излучения (~ 300 мкм для 1ТГц) по всем трём осям в пространстве, в то время как "филамент" будет

означать более протяженную плазменную область.

Генерации ТГц излучения в режиме микроплазмы посвящен ряд экспериментальных [53—56; 212] и теоретических [211; 213; 214] исследований. Были получены спектр, зависимость ТГц энергии от мощности накачки и угловая диаграмма направленности для одноцветной [53; 54] и двухцветной [55] схем возбуждения. Были также рассмотрены случаи накачки двумя встречными импульсами [212] и характеристики ТГц излучения, генерируемого в направлении, встречном [56] к лазерному излучению накачки. Наконец, работе [215] был предложен метод генерации ТГц излучения при использовании микроплазменного волновода.

В данной главе исследуется процесс двухцветной генерации в диоксиде углерода в широком диапазоне давлений, позволяющим веществу находиться в состояниях от разреженного газа до сверхкритической жидкости, и найдено оптимальное давления для максимальной эффективности генерации.

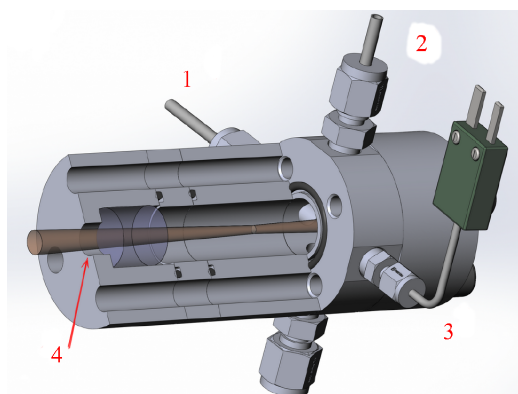
Также, изучается зависимость углового распределения ТГц излучения в одноцветной экспериментальной схеме для систем с различной числовой апертурой, причём повышение числовой апертуры позволяло переходить от протяженного излучающего плазменного облака к режиму микроплазмы. Проповедена оценка величины двух вкладов - дипольного и квадрупольного - в мультипольном разложении [216; 217] пространственного спектра ТГц генерации. Показано, что эффективность генерации и ширина углового распределения растут при уменьшении размеров перетяжки, и доминирует дипольный вклад.

4.2 Исследование зависимости эффективности оптико-ТГц преобразования и свойств ТГц излучения при генерации в плазме оптического пробоя от давления для углекислого газа

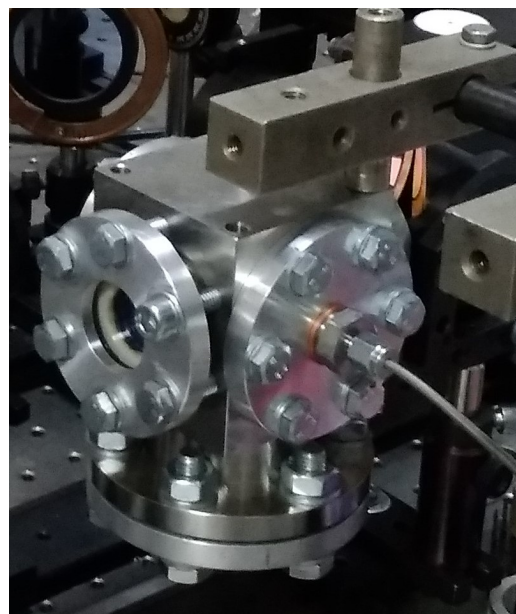
Выбор в качестве рабочего газа диоксида углерода обусловлен возможностью достижения в лабораторных условиях состояния сверхкритической жидко-

сти при увеличении давления газа, это позволило исследовать состояния от разреженного газа до сверхкритической жидкости в зависимости от температуры и давления в кювете [218]. Ранее углекислый газ уже использовался в качестве среды для генерации ТГц излучения [219], и было показано, что при атмосферном давлении эффективность генерации в CO_2 сопоставима с эффективностью генерации в воздухе. В то же время, более сложная относительно двухатомных газов структура молекулы CO_2 позволяет предположить наличие вкладов от электронных, вращательных и колебательных переходов в дальнем ИК диапазоне в нелинейно-оптический отклик среды. Можно предположить, что вклад этого механизма в ТГц сигнал будет увеличиваться при росте давления, в то время как при пониженном давлении доминирующим будет движение свободных электронов в ионизированном плазменном канале.

4.2.1 Экспериментальная установка



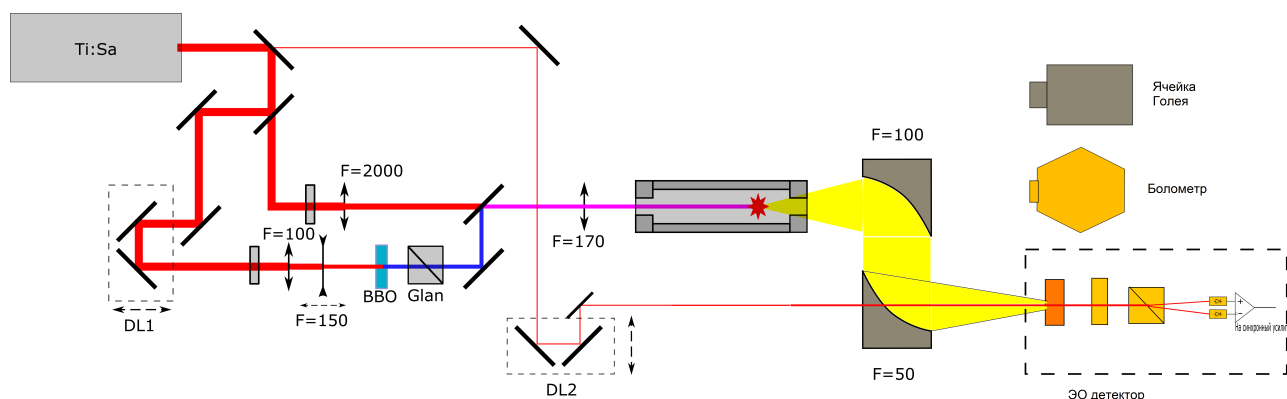
1- напуск газа под давлением, 2 - датчик давления, 3 - датчик температуры, 4 - входное окно.



(а) Кювета высокого давления, использованная в экспериментах. (б) Кювета малого давления.

Рисунок 4.1. Кюветы, использованные для проведения экспериментов по ТГц генерации в газах при различном давлении.

Для исследования влияния давления газа на эффективность оптико-ТГц преобразования в нём применялось две кюветы. Первая могла выдерживать давление $0 \div 3$ бар, вторая же работала в диапазоне $1 \div 250$ бар и температу-



DL1, DL2 - моторизованные линии задержки, Ti:Sa - лазерный источник, BBO - нелинейный кристалл β -бората бария, Glan - призма Глана-Тейлора (поляризатор); ячейка Голея, Болометр, ЭО детектор - варианты детекторов ТГц излучения.

Рисунок 4.2. Экспериментальная установка, использованная в исследованиях по ТГц генерации при изменении давления газа.

рах до 50°C . Кюветы изображены на рис. 4.1. Лазерное излучение фокусировалось в центр кюветы сквозь прозрачное в оптическом диапазоне входное окно, а ТГц излучение исследовалось через выходное окно на противоположном торце кюветы. Первая кювета имела апертуру выходного окна 50 мм с толщиной 3 мм, при этом материалом окна был тефлон. Окна второй кюветы были изготовлены из кристаллического сапфира толщиной 10 мм, и имели чистую апертуру 8 мм. Сапфир прозрачен для оптического излучения, и имеет умеренное поглощение в ТГц диапазоне (см рис. 4.5). Расстояние между окнами (т.е. толщина газового слоя) для второй кюветы могла варьироваться в пределах $10 \div 150$ мм. При измерении зависимости сигнала от давления производилась сшивка результатов экспериментов от обеих кювет.

Оптическая схема эксперимента приведена на рис. 4.2. Поскольку входные стёкла кювет, а потенциально и сама среда с повышенной плотностью, за счёт дисперсии существенно разносят во времени импульсы первой и второй гармоник лазерного излучения, применялась схема с отдельной генерацией второй гармоники с возможностью подстройки задержки между импульсами. Для получения ГВГ лазерного излучения в лазерный пучок устанавливался кристалл ВВО толщиной 0,3 мм. Остаток излучения первой гармоники в этом плече фильтровался по поляризации призмой Глана-Тейлора. Энергия в им-

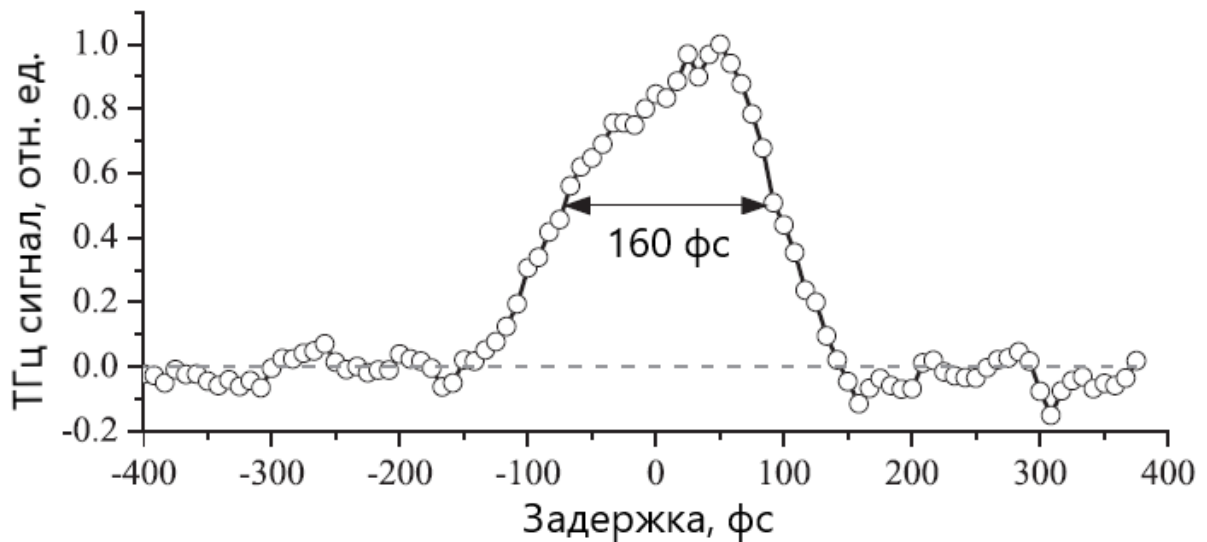


Рисунок 4.3. Зависимость ТГц сигнала от задержки между оптическими импульсами накачки.

пульсе ГВГ достигала 40 мкДж, в то время как для основного излучения энергия составляла 600 мкДж. Излучение первой и второй гармоник совмещалось на дихроичном зеркале, и фокусировалось в кювету линзой с фокусным расстоянием 170 мм. Диаметры перетяжек для излучения первой и второй гармоник (в случае в малой мощности излучения) можно оценить в 25 мкм и 12 мкм FWHM соответственно. Совмещение пучков во времени достигалось линией задержки, по пространству - парой зеркал, в т.ч. дихроичным сводящим зеркалом. Процедура настройки проводилась при атмосферном давлении исследуемой среды, однако её оптимальность контролировалась также и для других давлений.

Детектирование ТГц излучения производилось болометрическим детектором (см. приложение А.2), регистрировавшим интегральную мощность сигнала. При этом в каждой измеренной точке производилась регистрация зависимости интенсивности сигнала от задержки между импульсами первой и второй гармоники (см рис. 4.3). Максимальное из значений принималось за ТГц сигнал в данной точке. Для измерения спектрального состава излучения использовался интерферометр Майкельсона совместно с болометрическим детектором (см. приложение А.3).

Фотография экспериментального стенда приведена на рис. 4.4

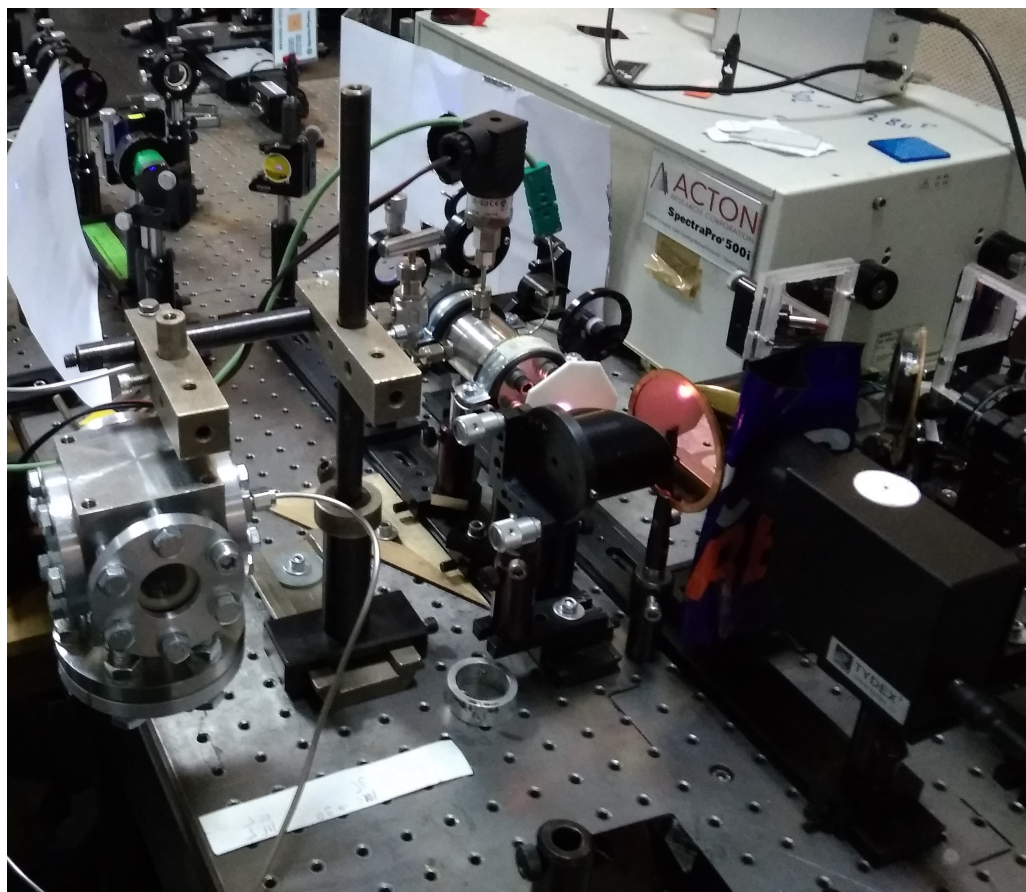


Рисунок 4.4. Фотография экспериментальной установки для регистрации зависимости ТГц сигнала от давления газа.

4.2.2 Результаты и их интерпретация

Для случаев заполнения кювет воздухом и углекислым газом был зарегистрирован ТГц сигнал. Спектр сигнала из кюветы №2 при наполнении её воздухом и углекислым газом при атмосферном давлении приведён на рис. 4.5. Спад спектральной мощности в частотном диапазоне более 1.5 ТГц связан с поглощением в материале торцевых окон кюветы (синяя кривая на рис. 4.5). Как видно из экспериментальных данных, в пределах прозрачности окон кюветы спектры совпадают.

На рис. 4.6 для тех же газов представлена зависимость ТГц сигнала от давления в кювете. Для изученных газов существует оптимальное значение давления в кювете, зависящее от состава газа. При давлении в кювете порядка 15 атм. и выше ТГц сигнал не был зарегистрирован. В отличие от [136], где наблюдались осцилляции в кривой зависимости ТГц сигнала от давления, в данном случае форма кривой сглаженная. Это связано с компенсацией за-

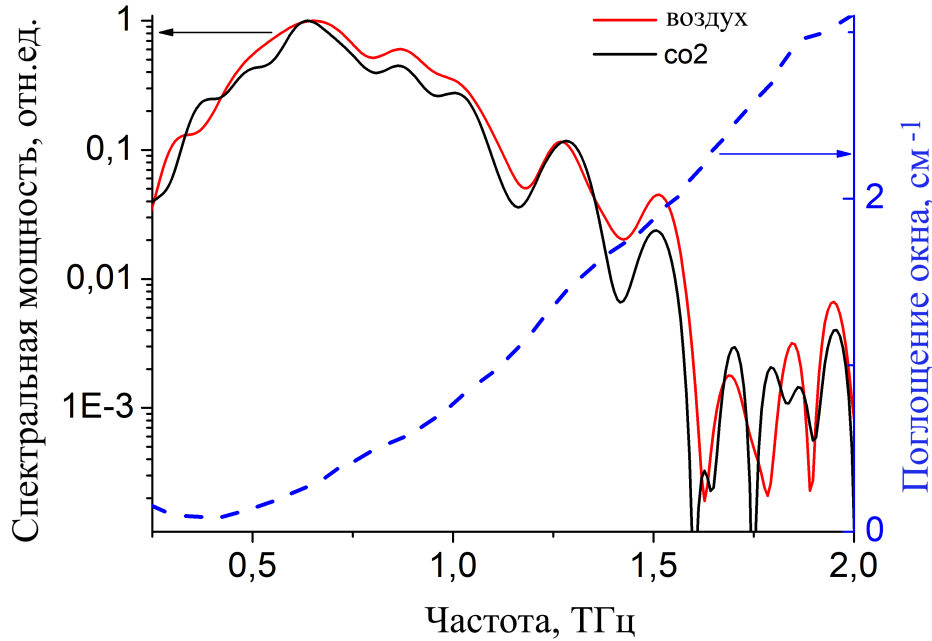


Рисунок 4.5. Спектральный состав ТГц сигнала при генерации в воздухе и углекислом газе.

держки между импульсами первой и второй гармоники.

На рис. 4.3 представлена зависимость интенсивности ТГц сигнала от задержки между импульсами первой и второй гармоники. Для малых давлений эта кривая имеет ярко выраженный пик с полушириной, определяемой исходной длительностью лазерного импульса, но при увеличении давления полуширина растёт.

Изменение давления и температуры в кювете приводит к изменению физических свойств среды, в т.ч. её дисперсионных свойств. Это может видоизменять угловую диаграмму направленности ТГц излучения. Ввиду малой числовой апертуры выходного окна кюветы №2, детектором регистрируется лишь сигнал в диапазоне $0^\circ \div 7,5^\circ$ градусов от оси. Как показали результаты численных экспериментов по ТГц генерации при изменении давления (см [74]), угловое распределение мощности ТГц излучения действительно уширяется при увеличении давления среды, и уже при давлении 5 атм большая часть сигнала не достигает детектора. На основе метода подобия можно показать, что увеличение давления приводит к уменьшению эффективной числовой апертуры фокусирующей системы как $NA \sim \frac{1}{\sqrt{p}}$. Экспериментально

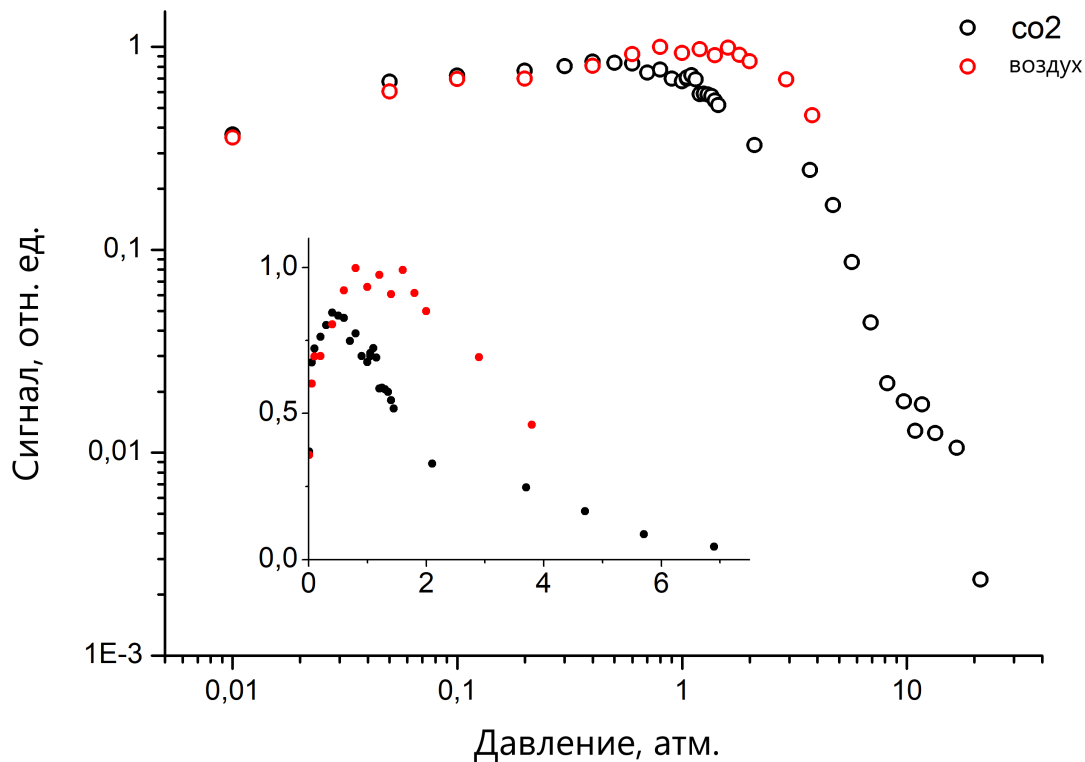


Рисунок 4.6. Зависимость ТГц сигнала от давления для различных газов.

влияние числовой апертуры системы на угловое распределение ТГц излучения рассматривается в следующем разделе главы. В то же время, следует отметить, что при достижении состояния как жидкости, так и сверхкритической жидкости, регистрируемый ТГц сигнал на детекторе был меньше уровня шума.

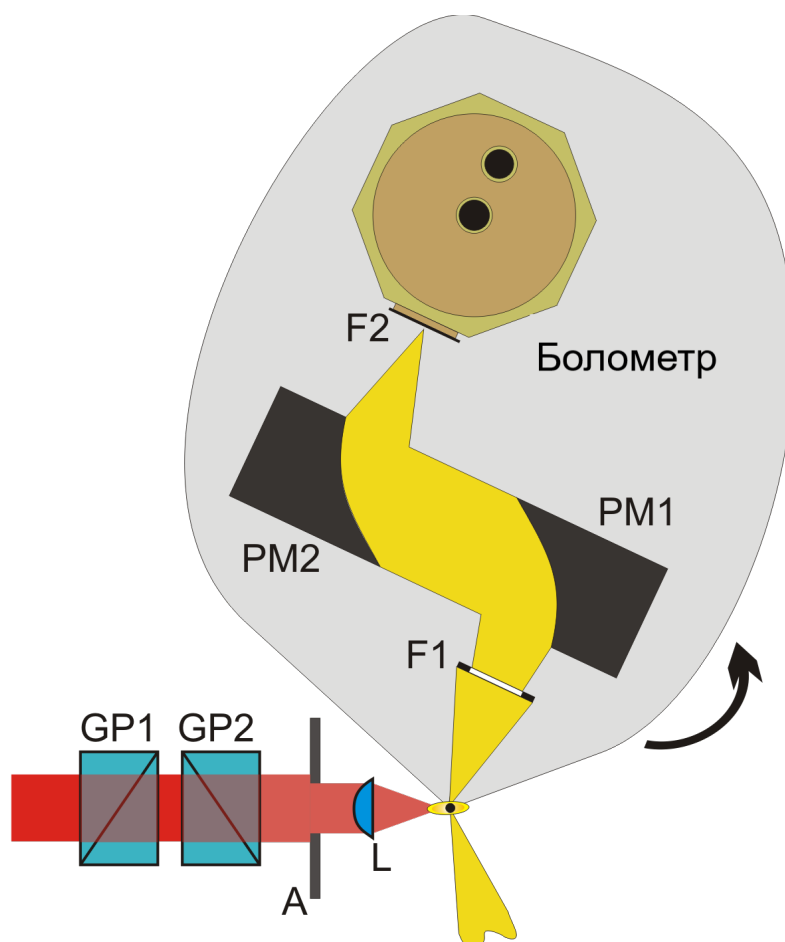
4.3 Изменение параметров фокусировки лазерного излучения

4.3.1 Экспериментальная установка

Схема экспериментальной установки для регистрации углового распределения мощности ТГц излучения для различных условий эксперимента приведена на рис. 4.7, а её фотография на рис. 4.8. В лазерный луч от титан-сапфирового регенеративного усилителя (см. таблицу А.1, система 1) помещалась линза для фокусировки в окружающий воздух. Для изменения па-

раметров фокусировки - и, как следствие, длины и диаметра филамента, использовался набор линз с различным фокусным расстоянием: плосковыпуклые линзы из плавленого кварца с фокусными расстояниями $F=100, 50, 40, 25$ и 7 мм и асферическая акриловая линза CAУ046 (Thorlabs, Inc.), с эффективным фокусным расстоянием $F=4,6$ мм. Для каждого объектива с различным фокусным расстоянием была использована фиксированная апертура оптического пучка, равная $d=7$ мм, и максимально доступная энергия импульса в 700 мкДж. Единственным исключением были акриловые линзы с фокусным расстоянием $F=4,6$ мм (апертура самого объектива составляла $d=3,7$ мм, а максимальная энергия импульса ниже порога повреждения составляла примерно 250 мкДж) и объектив с фокусным расстоянием 7 мм (максимальная энергия импульса была выбрана равной 450 мкДж, чтобы избежать оптического пробоя). Числовая апертура фокусирующих линз, равная $NA = \sin(\alpha)$, где $\alpha = \arctg(\frac{d}{2F})$, изменялась при этом от $0,035$ до $0,37$. Энергия импульса оптического излучения регулировалась парой призм Глана-Тейлора (GP1 и GP2 на рис. 4.7). При этом GP2 устанавливалась в фиксированное положение, соответствующее линейной горизонтальной поляризации. Диаметр пучка мог варьироваться ирисовой диафрагмой А. Длительность импульса контролировалась на входе в экспериментальную установку, и излучение было спектрально-ограниченным.

Для оценки размеров филамента проводился анализ изображения плазменного облака, появляющегося в фокальной точке. Изображения флуоресценции плазмы регистрировались с помощью ПЗС-камеры CoolSNAP Color (Roper Scientific) с микрообъективом. Камера располагалась перпендикулярно оптической оси системы. При этом достигалось разрешение 1392×1040 пикселей, размер пикселя составлял $4,65 \text{ мкм} \times 4,65 \text{ мкм}$. Микрообъектив состоял из 8-кратного объектива ЛОМО с числовой апертурой $0,2$, расположенного в торце тубуса на расстоянии 25 см от матрицы камеры и в ≈ 1 см от фотографируемого объекта. Для калибровки увеличения системы в конкретной конфигурации, на месте исследуемого облака плазмы параллельно оптической оси системы устанавливался и фотографировался калибровочный слайд для микроскопа. Было получено разрешение порядка $0,5 \text{ мкм/пиксель}$. При



Лазерный луч сфокусирован с помощью линзы в окружающий воздух. Пара внеосевых параболических зеркал (PM1, PM2) расположенных под углом θ от оси оптического пучка коллимируют и затем фокусируют ТГц излучение в окно кремниевого болометра. Угол θ может непрерывно изменяться в диапазоне $[-90^\circ, 90^\circ]$. Две призмы Глана-Тейлора (GP1, GP2) позволяют регулировать мощность и поляризацию оптического излучения, тогда как диафрагма A - ограничивает его апертуру.

Рисунок 4.7. Схема экспериментальной установки, используемой для изучения угловой диаграммы направленности излучения (вид сверху).

этом наибольший вклад в регистрируемое изображение внесли полосы флуоресценции азота и ионов азота (N_2 и N_2^+), которые лежат вблизи $350 \div 450$ нм [220].

Система светосбора ТГц излучения состояла из пары внеосевых параболических зеркал PM1 и PM2 с эффективным фокусным расстоянием 100 мм и апертурой 50 мм, и кремниевого болометра с гелиевым охлаждением (см. таблицу А.2, детектор 2). Для изучения углового распределения излучения, система светосбора была установлена на поворотный транслятор, который

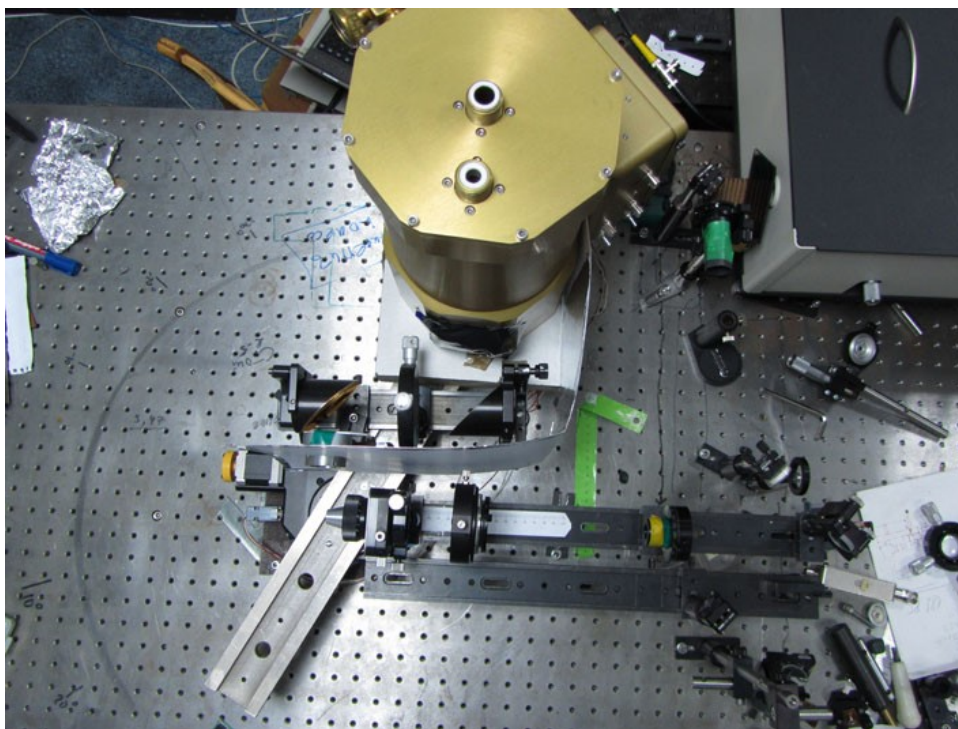
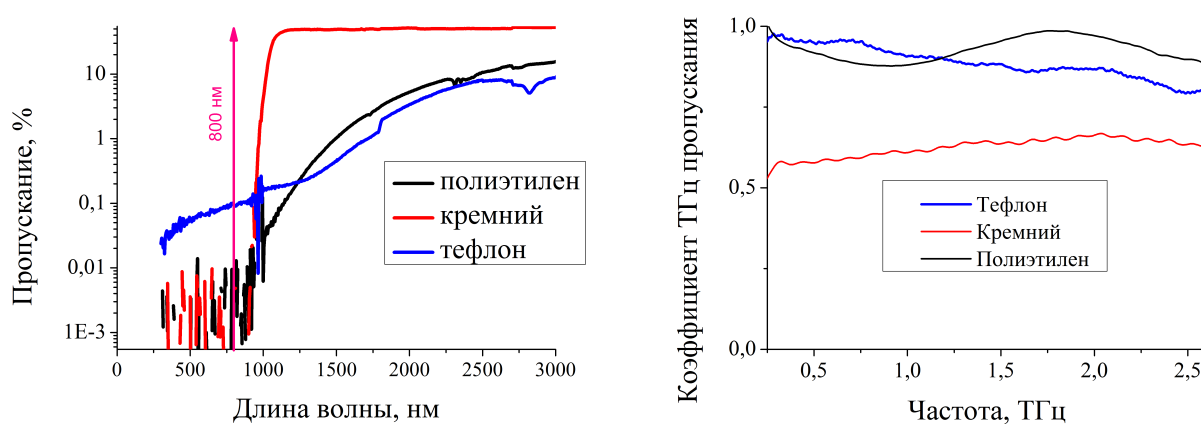


Рисунок 4.8. Фотография экспериментальной установки для регистрации углового распределения ТГц излучения при генерации в воздухе.

мог вращаться вокруг вертикальной оси, проходящей через фокальную точку объектива. Угол детектирования θ между оптической осью системы и первым параболическим зеркалом РМ1 мог меняться в диапазоне от -90° до $+90^\circ$, где 0° соответствует направлению распространения лазерного пучка. В эксперименте, при повороте детектирующей системы сигнал регистрировался с дискретностью 1° . Необходимо отметить, что максимально достижимый угол светосбора определялся чистой апертурой первой параболы и составлял 27° . Геометрия установки не позволяла регистрировать интенсивность ТГц излучения в обратном направлении, когда углы детектирования превышают $+90^\circ$ и -90° . Поляризацию ТГц-излучения можно было анализировать с помощью проволочного поляризатора, помещенного между РМ1 и РМ2.

Для фильтрации излучения накачки использовалась многоступенчатая система фильтров. Как видно на рис. 4.7, перед параболическим зеркалом РМ1 устанавливался тефлоновый фильтр F1 толщиной 2,4 мм с целью рассеяния лазерного излучения накачки. В качестве F2 использовались две кремниевые пластины толщиной 0,35 мм, которые были прикреплены к входному окну болометра. Входное окно болометра было сделано из полиэтилена высокой

плотности (HDPE) толщиной 1 мм. Спектры пропускания фильтров в оптическом и ТГц диапазонах приведены на рис. Для дополнительной фильтрации ТГц сигнала использовался установленный внутри болометра и охлажденный до 4° К кристаллический кварцевый фильтр с гранатовым порошком толщиной 0,8 мм (коэффициент пропускания для частот ниже 3 ТГц равен 0,8, на более высоких частотах фильтр является непрозрачным), что ограничивало исследуемый диапазон до $0 \div 3$ ТГц. По оценкам из спектральных измерений с использованием интерферометра Майкельсона, большая часть энергии ТГц излучения концентрируется в этом спектральном интервале, что согласуется с данными из [53]. Полный коэффициент пропускания фильтрующей системы в диапазоне $0,1 \div 3$ ТГц был равен примерно 0,1, в то время как за пределами этого спектрального диапазона был ниже 10^{-4} .



(а) Пропускание фильтров в оптическом диапазоне, (б) Пропускание фильтров в ТГц диапазоне.

Рисунок 4.9. Фильтры, использованные для выделения ТГц излучения.

4.3.2 Экспериментальные результаты

Угловые распределения ТГц излучения

Для всех условий фокусировки, была изучена зависимость интенсивности ТГц излучения от угла детектирования θ . В связи с тем, что первое параболическое зеркало имело ограниченную апертуру, оно могло собирать только часть излучения, испускаемого под большими углами от оптической оси. Это привело к зависимости эффективности сбора излучения от значения угла

детектирования θ , которая учитывалась при обработке экспериментальных данных.

Если R – эффективное фокусное расстояние РМ1, то эффективная апертура РМ1 может быть представлена в виде круга с радиусом R_{parab} , движущегося вдоль окружности с радиусом R в горизонтальной плоскости и собирающем излучение от части сферы вращения детектора с радиусом R при вращении системы детектирования (см. рис. 4.10). Пусть в фокусе параболического зеркала u имеется источник ТГц излучения, излучающий в узкий конус с углом θ , очень узкой угловой шириной ($\Delta\theta \approx 0$) и однородным распределением по азимутальному углу α . Излучение этого источника пересекает сферу вращения детектора с радиусом R по окружности с радиусом $R\sin\theta$. Таким образом, если $R\sin\theta > R_{parab}$, часть испускаемого ТГц излучения не попадёт в детектор при любой ориентации детектора. Для того, чтобы рассчитать значение поправочного коэффициента, на который следует домножать полученный сигнал, чтобы сравнить энергоэффективность ТГц генерации, необходимо найти соотношение длины всего круга, вдоль которого ТГц излучение пересекает «сферу обнаружения» ($2\pi R\sin(\theta)$) и длину его части, которая попадает в пунктирную область сферы. В случае широкого ТГц конуса, когда $R\sin\theta > R_{parab}$, апертура детектора, расположенного под углом θ , собирает только часть излучаемой энергии.

Для узкого конуса ТГц излучения, когда $R\sin\theta < R_{parab}$, детектор собирает всю излучаемую энергию и, следовательно, множитель коррекции равен 1. Значения поправочного коэффициента как функция угла излучения θ для параболического зеркала, использованного в проведённом эксперименте, приведены на рис. 4.10.

Для каждой фиксированной линзы проводилась серия экспериментов по регистрации зависимости углового распределения ТГц излучения от мощности накачки. Характеристики различных линз сведены в табл. 4.1. Пример зарегистрированных кривых для линзы с $F=7$ мм приведены на рис. 4.11. Для этих кривых интересно проанализировать зависимость угла раскрытия конуса ТГц излучения и его мощности от энергии накачки. Соответствующие кривые приведены на рис. 4.12 и 4.13. Следует отметить, что для фиксиро-

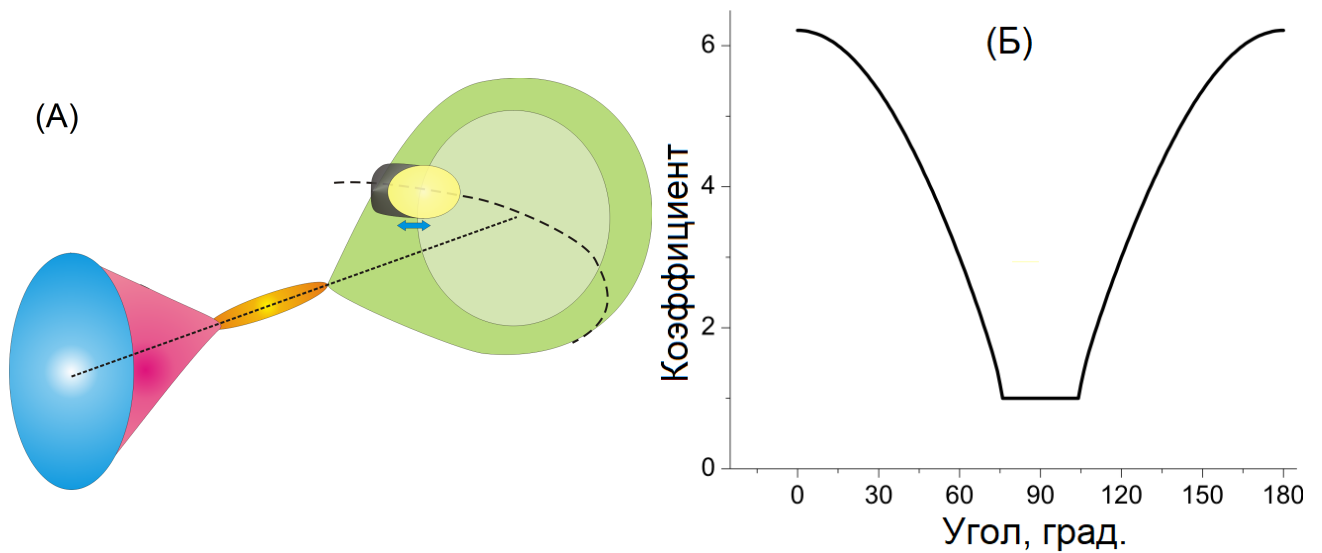
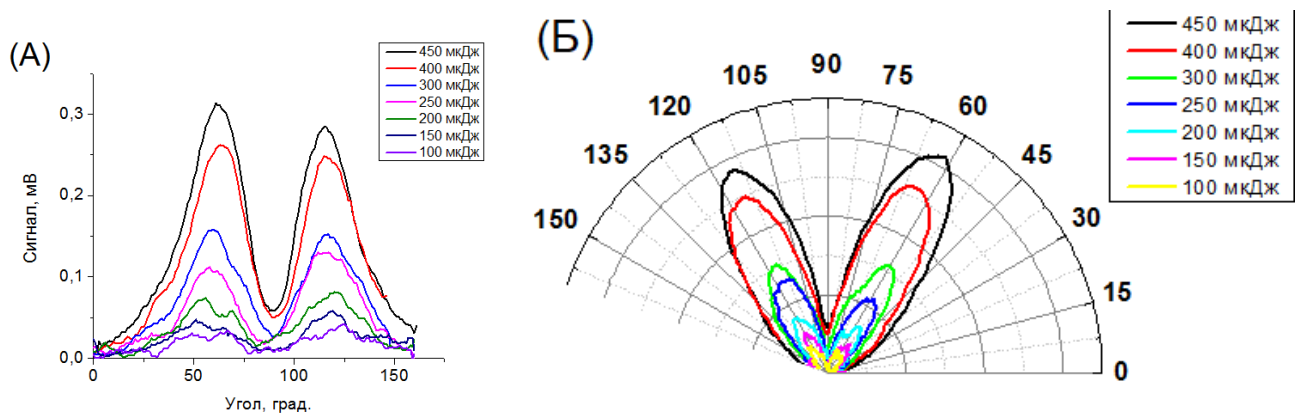


Рисунок 4.10. (а) Схема, показывающая снижение эффективности светосбора ТГц для широких конусов излучения. (б) Значения поправочного коэффициента для используемых экспериментальных параметров.



(а) В линейных координатах. (б) Аналогичные зависимости в полярных координатах.

Рисунок 4.11. Угловые зависимости энергии ТГц излучения для сферической линзы с фокусным расстоянием 7 мм при разных энергиях падающего излучения.

ванной числовой апертуры уменьшение энергии накачки приводило к росту угла раскрытия конуса ТГц излучения.

Угловые зависимости для каждой из линз приведены на рис. 4.14 точками. Хорошо видно, что для всех условий фокусировки угловая диаграмма направленности в плоскости вращения детектора содержит два лепестка примерно равной интенсивности, что соответствует коническому профилю ТГц

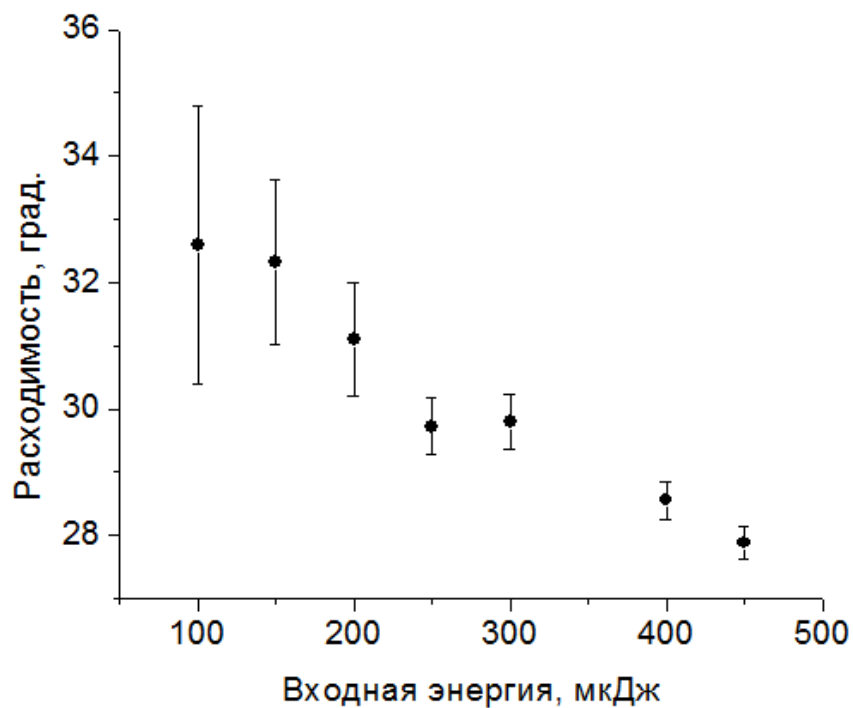


Рисунок 4.12. Расходимость ТГц излучения (половина угла раскрытия конуса в зависимости от энергии оптического излучения, сферическая линза с $F=7$ мм.

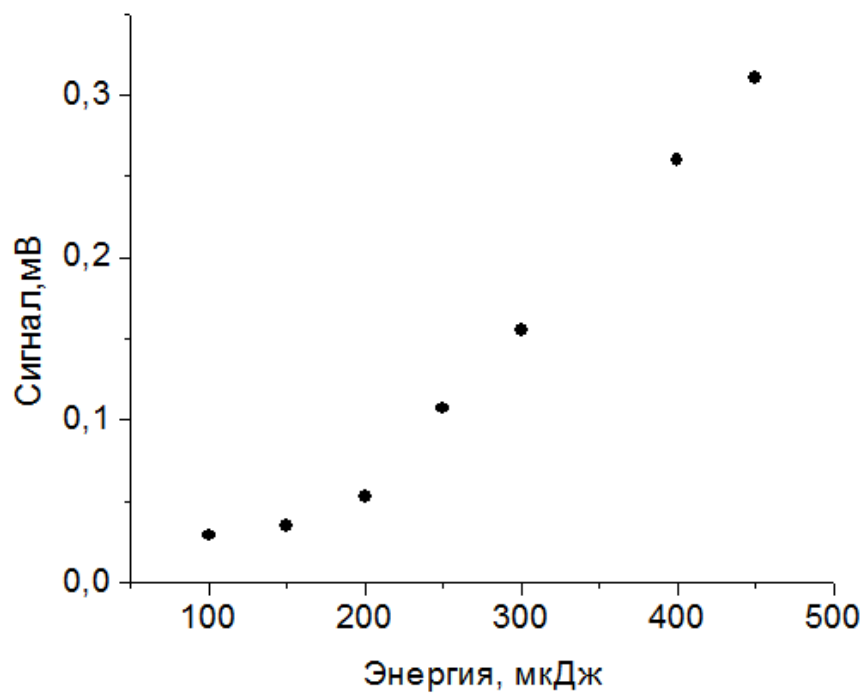
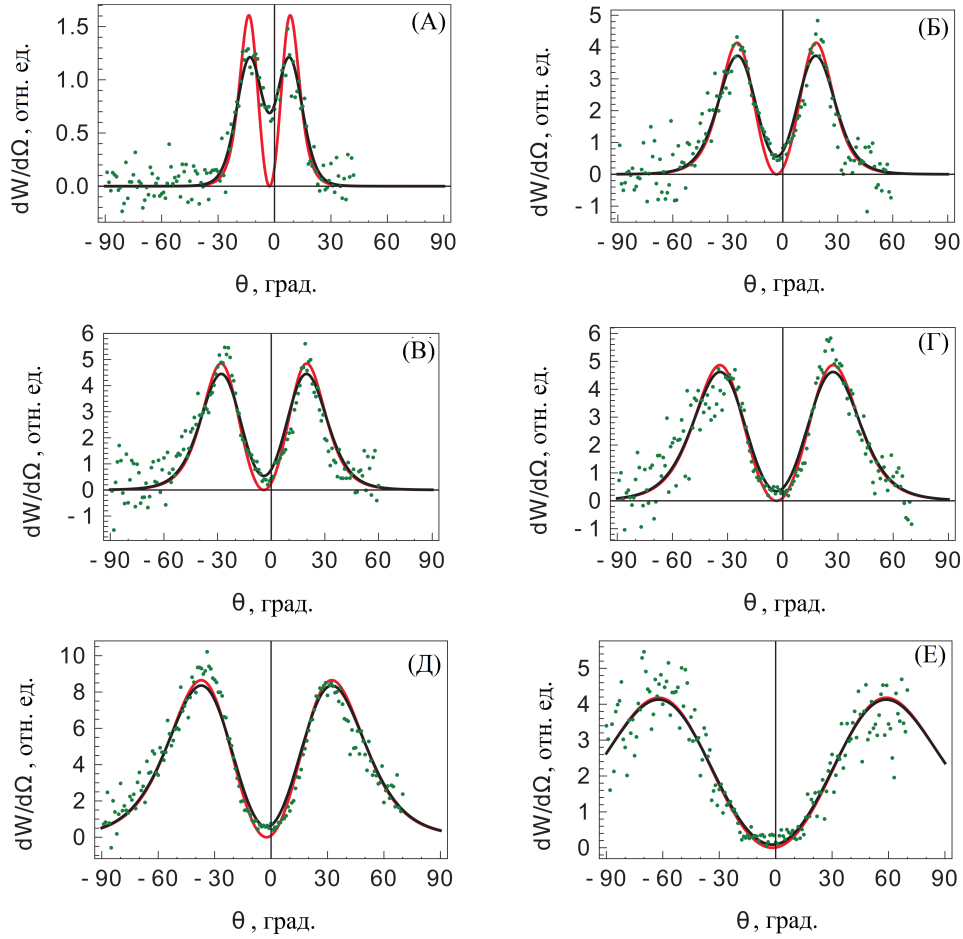


Рисунок 4.13. Зависимость энергии ТГц излучения в направлении максимума от энергии оптического излучения, сферическая линза с $F=7$ мм.



Экспериментальные данные (зеленые точки), теоретическое аппроксимация (красная линия), теоретическая аппроксимация с корректировкой инструментальной функцией (черная линия); фокусные расстояния F указаны на графиках (см. таблицу 4.1 для параметров аппроксимации): (А) $F = 100$ мм, (Б) $F = 50$ мм, (В) $F = 40$ мм, (Г) $F = 25$ мм, (Д) $F = 7$ мм и (Е) $F = 4,6$ мм.

Рисунок 4.14. Измерения углового распределения ТГц излучения $dW/d\Omega$ для разных условий фокусировки.

излучения. Для всех условий фокусировки и линейной поляризации оптического луча не наблюдалось зависимости пространственного профиля ТГц излучения от направления поляризации оптического импульса. Незначительная асимметрия распределения излучения, показанная на рис. 4.14, скорее всего связана со смещением нуля измерительной системы относительно оптической оси системы.

По мере уменьшения фокусного расстояния линз, длина плазменного облака становилась короче (см. рис. 4.15), а угол, при котором наблюдался

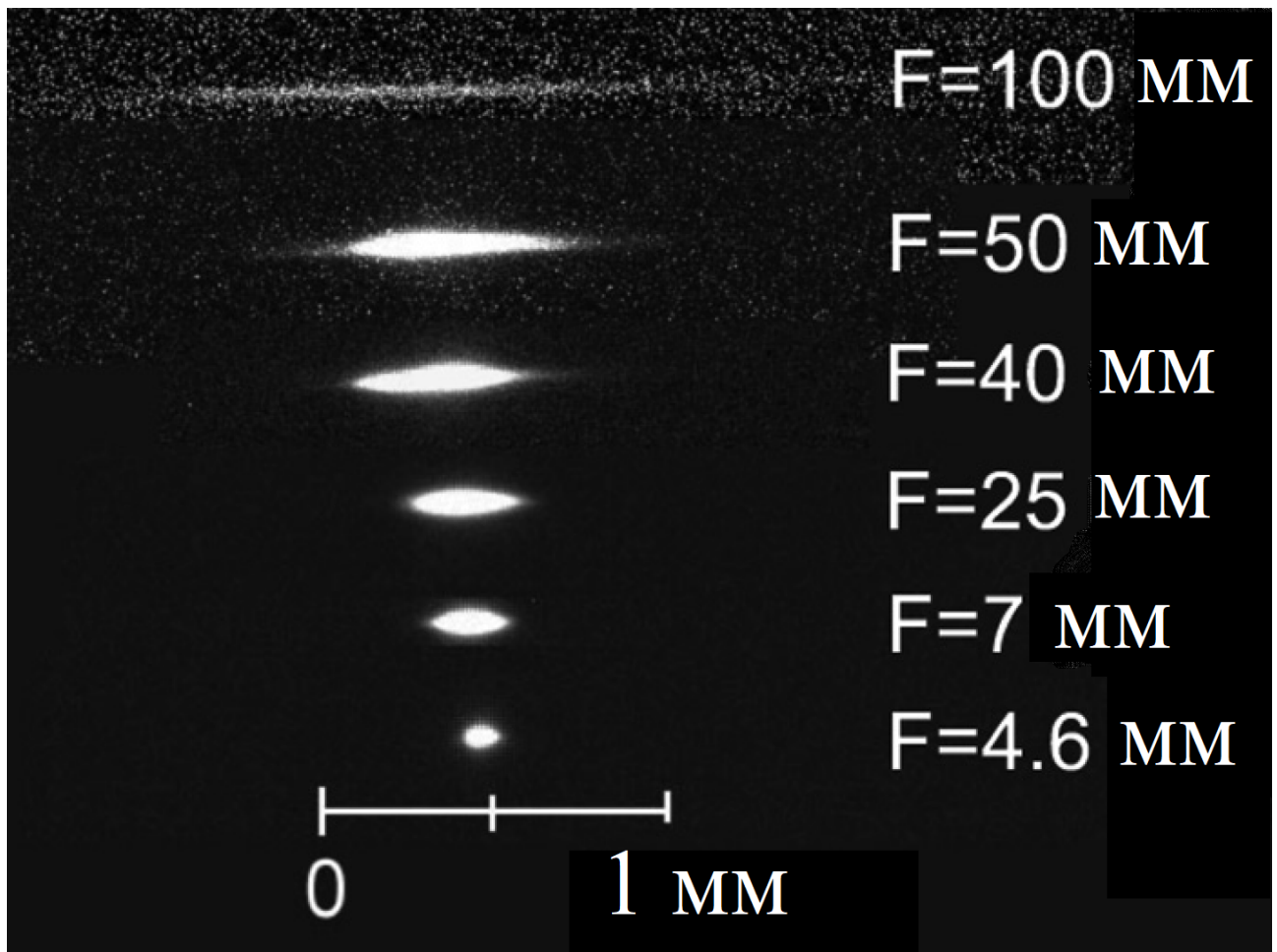


Рисунок 4.15. ПЗС-изображения фотоиндуцированной флуоресценции плазмы (вид сбоку), полученные при разных условиях фокусировки. Измеренная длина L и радиусы a филаментов указаны в таблице 4.1.

максимум ТГц интенсивности θ_{max} увеличивался (см. рис. 4.14 и 4.16).

Для сравнения эффективности преобразования оптического сигнала в ТГц для различных условий фокусировки, интенсивность ТГц сигнала была проинтегрирована по углу излучения от -90° до 90° . При этом было учтено, что измеренная энергия ТГц импульсов при больших углах детектирования θ - это только часть полной энергии, излучаемой в этот угол из-за конечной апертуры параболического зеркала, поэтому нужно умножить необработанные данные на поправочный коэффициент в зависимости от угла детектирования θ до процедуры интегрирования. После этого можно оценить эффективность как отношение интеграла ТГц интенсивности к энергии оптического импульса. Черные кружки на рис. 4.17 показывает эффективность преобразования в зависимости от фокусного расстояния объектива. Хорошо видно,

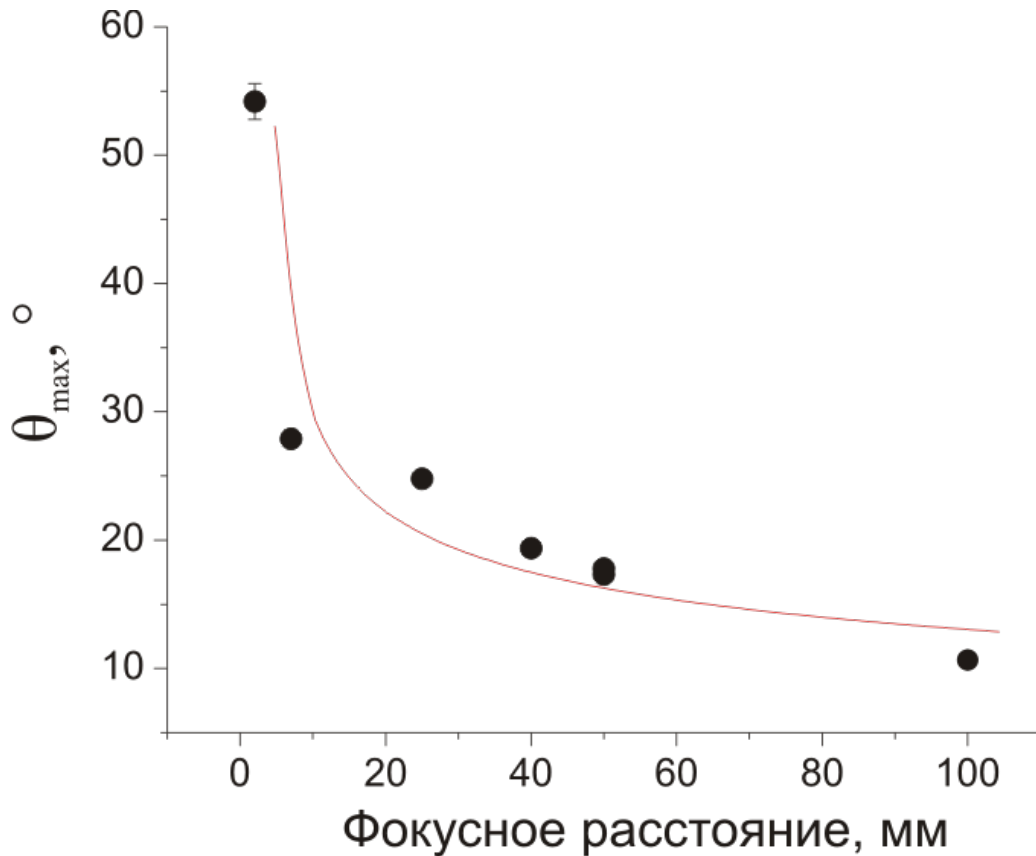
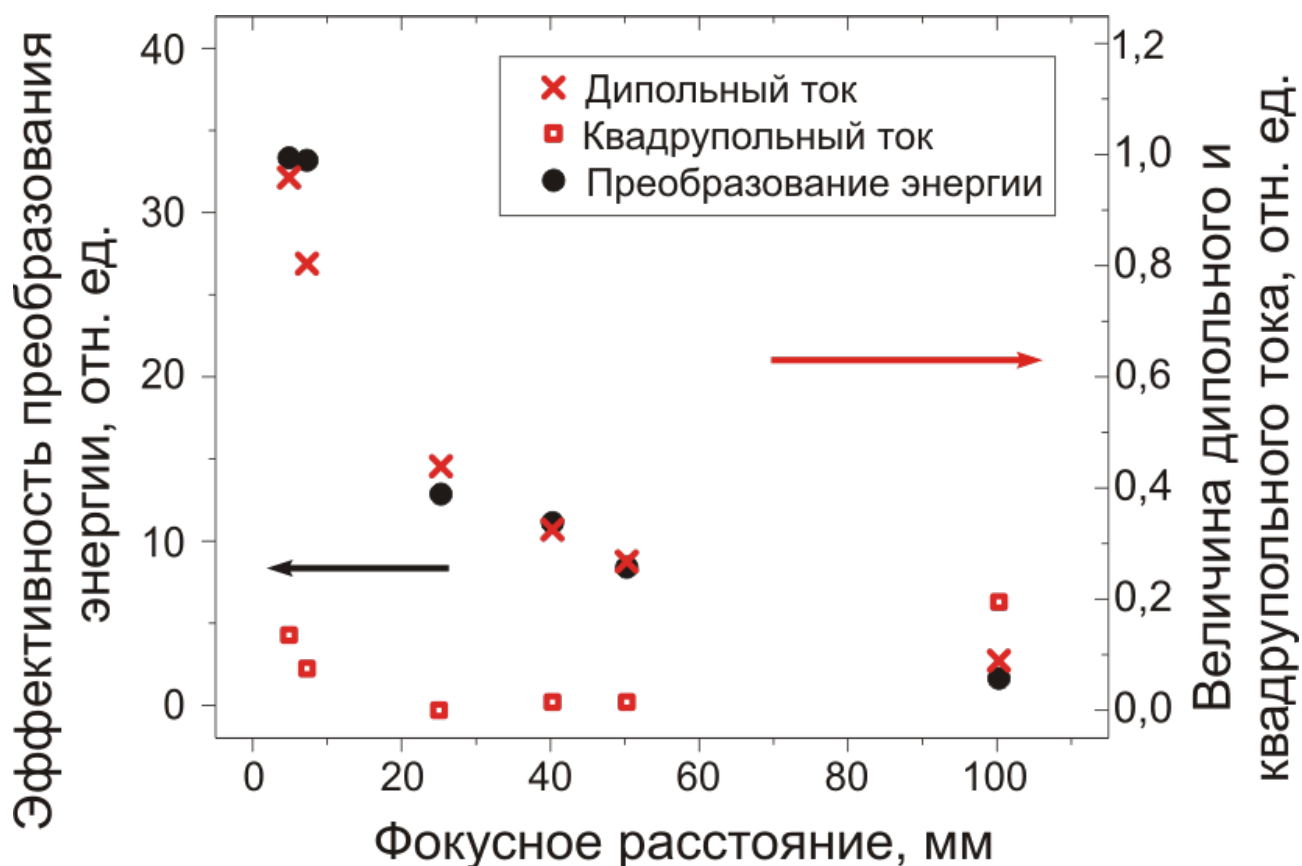


Рисунок 4.16. Зависимость угла θ_{max} , для которого наблюдается максимум интенсивности ТГц излучения от фокусного расстояния.

что для самых маленьких фокусных расстояний, генерация ТГц становится более эффективной. Меньший диаметр сфокусированного пятна приводит к увеличению пиковой лазерной интенсивности и плотности плазмы [221] и росту градиентов поля интенсивности. При этом рост эффективности преобразования достигает в исследованном диапазоне числовых апертур $0,035 \div 0,37$ 15 раз.

Как видно из этих результатов, эффективность преобразования оптической энергии в ТГц также увеличивается, несмотря на то, что длина и объем плазменного канала уменьшаются в случае острой фокусировки. Поэтому можно заключить, что уменьшение размеров плазмы играет меньшую роль в оптико-ТГц преобразовании. Тем не менее, светосбор становится затруднительным, так как угол максимальной интенсивности излучения θ_{max} может достигать 55° (см. рис. 4.16).



Черные кружки: эффективность энергии оптико- ТГц преобразования в зависимости от фокусного расстояния. Красные кресты: вклад дипольного тока в ТГц сигнал. Красные квадраты: вклад квадрупольного тока в ТГц сигнал.

Рисунок 4.17. Зависимость эффективности оптико-ТГц преобразования и различных вкладов в ТГц сигнал от фокусного расстояния линз.

Поляризация ТГц излучения

Для измерения поляризации ТГц излучения угол детектирования θ устанавливался равным направлению максимума ТГц интенсивности (θ_{max}), а ТГц анализатор помещался между РМ1 и РМ2. В обоих максимумах угловой зависимости максимум ТГц интенсивности наблюдался при горизонтальной ориентации поляризатора. Для вертикальной ориентации поляризатора ТГц интенсивность была в 10 раз ниже для длиннофокусных и в 50 раз ниже для короткофокусных линз. Аналогичный эффект наблюдался при довороте линейной поляризации оптического излучения до вертикальной. Эти измерения согласуются с ранее опубликованными работами [222; 223] о радиальной поляризации ТГц пучка- ТГц излучение, возникающий при оптическом пробое

газов импульсами первой гармоники лазера в случае малой апертуры фокусирующей системы, распространяется в конус, поляризация в каждой точке которого линейна и направлена к оси конуса. Из-за того, что детектор вращался только в горизонтальной плоскости и его апертура была ограничена, часть ТГц излучения, выходящая из области генерации под большими углами относительно горизонтальной плоскости не попадала на детектор, так как не попадала в апертуру первого параболического зеркала (РМ1). Поэтому фактически измерялась только часть всей диаграммы направленности, которая была локализована вблизи горизонтальной плоскости. Ввиду этого, наблюдалась центральная часть конически поляризованного пучка, поляризация которой ожидалась горизонтальной.

Для ряда линз были измерены зависимости ТГц сигнала от угла поворота ТГц поляризатора. Пример такой зависимости приведён на рис. 4.18. Как и в случае протяженных филаментов, вне зависимости от поляризации излучения накачки было зарегистрировано, что ТГц поляризация линейна и направлена горизонтально.

Спектральный состав излучения

Для измерения спектрального состава сигнала применялся интерферометр Майкельсона (см раздел А.3). Система детектирования доворачивалась до угла максимума ТГц мощности, и параллельный пучок с параболического зеркала РМ1 направлялся на делительное зеркало интерферометра. Измерялось несколько интерферограмм, после чего результат усреднялся, и спектр сигнала вычислялся при помощи Фурье-преобразования.

Для линзы с фокусным расстоянием $F=7$ мм усреднённая интерферограмма и её спектр приведены на рис. 4.19. Можно отметить, что спектр сигнала не претерпел существенных изменений при уменьшении размера излучающей области.

4.3.3 Численная аппроксимация результатов эксперимента

Существующие феноменологические трактовки излучения плазменного филамента, индуцированного мощным лазерным импульсом [52; 68; 136; 142;

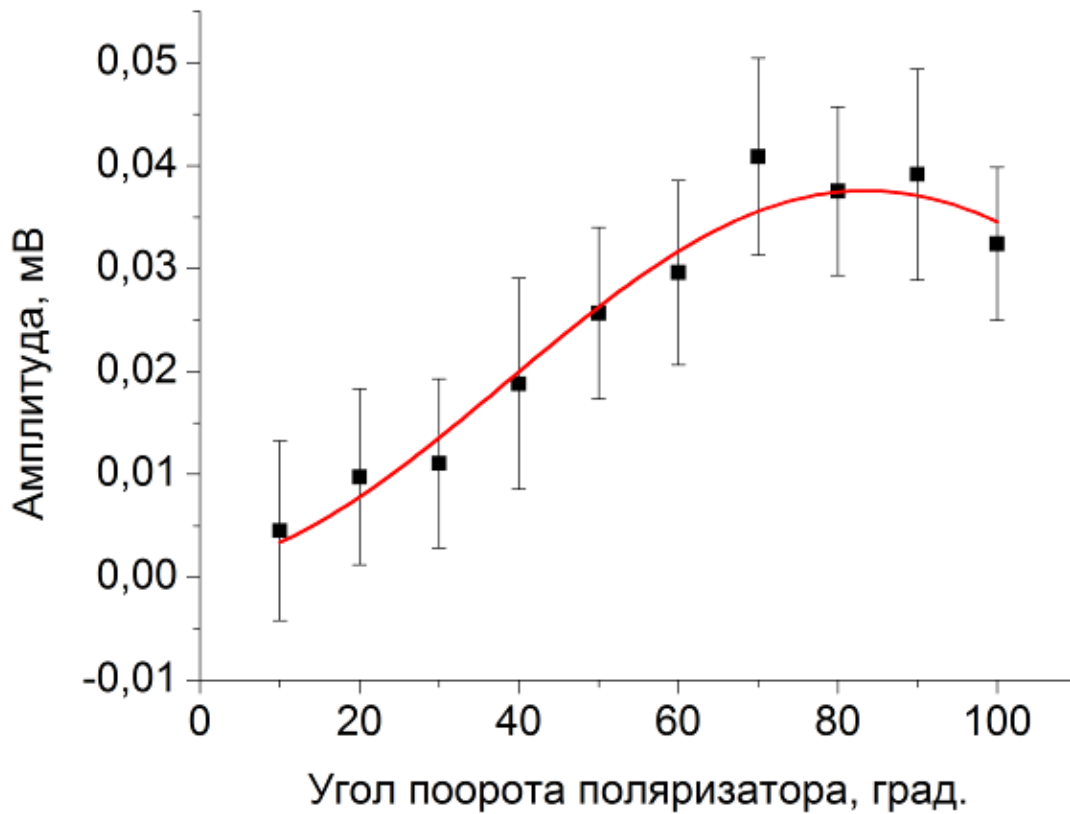


Рисунок 4.18. Зависимости энергии прошедшего ТГц излучения от угла поворота ТГц анализатора для линзы с $F = 8$ мм.

224], не принимали во внимание рассмотрение количественных оценок вкладов дипольного и квадрупольного механизмов генерации ТГц излучения. Для учёта количественных оценок дипольного и квадрупольного вкладов в излучение плазмы оптического пробоя газов в [78] была разработана модель, учитывающая дипольные и квадрупольные токи в плазме. Она приведена в приложении В.

Угловые распределения плотности мощности, вычисленные при помощи этой модели В.14 показаны на рис. 4.20 для выбранного набора параметров, таких, что только один из I_1 или I_2 ненулевой. Дипольные и квадрупольные угловые распределения визуально отличается в случае короткой ионизованной области. Если $L/c\tau \lesssim 0.4$, квадрупольное распределение имеет два видимых задних лепестка, тогда как дипольное распределение всегда имеет только две передних лепестка. Задние лепестки становятся слишком маленькими в случае длинной ионизованной области с $L/c\tau \gtrsim 1$.

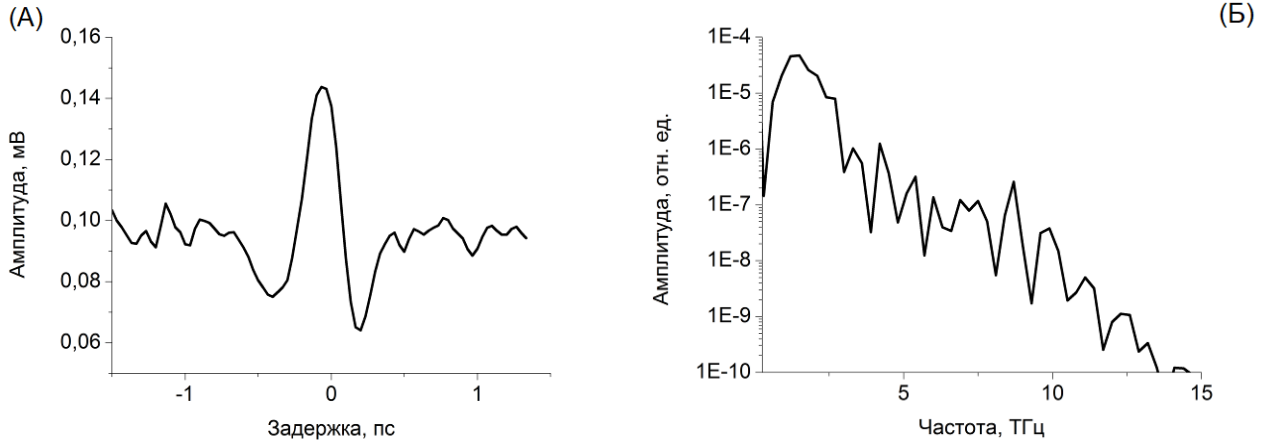


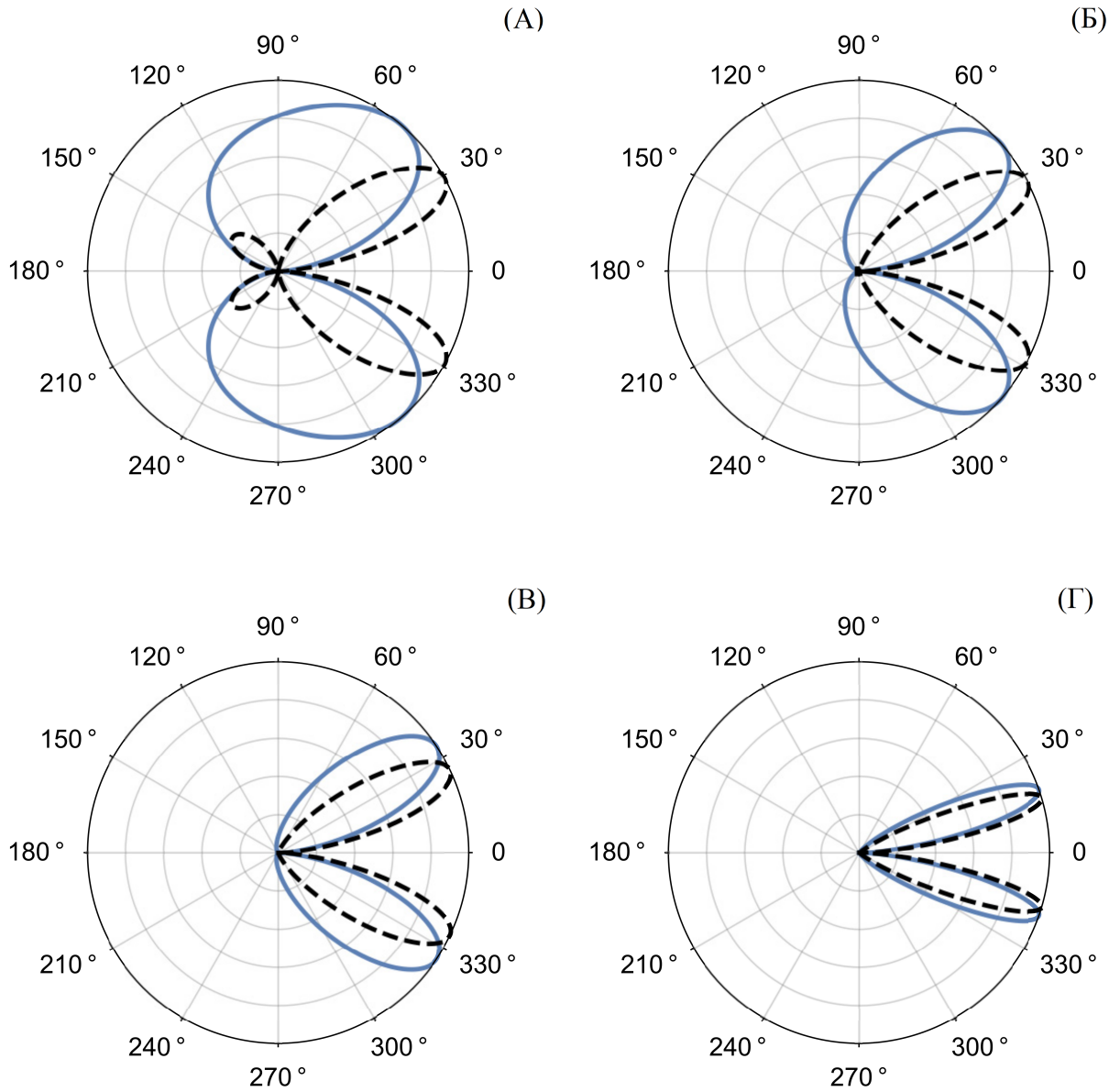
Рисунок 4.19. (а) Усреднённая интерферограмма излучения. Одноцветная накачка, линза $F = 7$ мм, угол $\theta = 20^\circ$. (б) Спектр сигнала.

Ширина передних лепестков и угол θ_{max} , при котором достигается максимальная интенсивность излучения для квадрупольного излучения, меньше, чем для дипольного при равных значениях L/ct .

Кроме того, интенсивность ТГц излучения благодаря квадрупольному току равна нулю в направлении, ортогональном к оси лазерного луча, то есть при $\theta = 90^\circ$ и -90° для любых значений L/ct . Дипольные и квадрупольные угловые распределения становятся неразличимыми, если $L/ct \gtrsim 8$.

Для оптического импульса с длительностью $\tau = 120$ фс, как в данном эксперименте, пространственная длина лазерного импульса накачки составляет $ct \approx 39$ мкм, что приводит к экспериментально измеренным значениям отношения $L/ct \gtrsim 1$ (см. рис. 4.15). Как показано в таблице 4.1, экспериментальные и подогнанные значения L/ct совпадают с коэффициентом $2 \div 3$, демонстрируя ту же тенденцию, что и в случае, когда меняется фокусное расстояние F . Для большого отношения L/ct угол раскрытия конуса излучения масштабируется как $\theta_{max} \approx \sqrt{ct/L}$ как для дипольной, так и для квадрупольной структуры. Возвращаясь к формуле В.13, можно увидеть, что $T \approx 2\tau$ для ТГц излучения, распространяющегося под углом θ_{max} .

Уравнения В.14 были использованы для аппроксимации экспериментальных данных, как показано на рис. 4.14. Сначала данные аппроксимировались с помощью функции В.14, в предположении наличия как квадрупольной, так и дипольной природы излучающего тока, то есть изменяя I_1, I_2, L и . При



Соотношения L/ct (А) 0,4, (Б) 1, (В) 2 и (Г) 8. Сплошная синяя линия: дипольное излучение, вызванное I_1 . Черная пунктирная линия: квадрупольное излучение за счет I_2 .

Рисунок 4.20. Угловые диаграммы $dW/d\Omega$, нормированные по своим максимумам для $a = ct$ и различных соотношений L/ct .

расчёте численных аппроксимаций была учтена функция отклика системы детектирования в виде двумерного гауссова профиля с шириной $\theta = 6^\circ$.

Таблица 4.1. Экспериментальные и аппроксимированные параметры областей плазмы; значения L и a нормированы по длине лазерного импульса $c\tau = 39$ мкм.

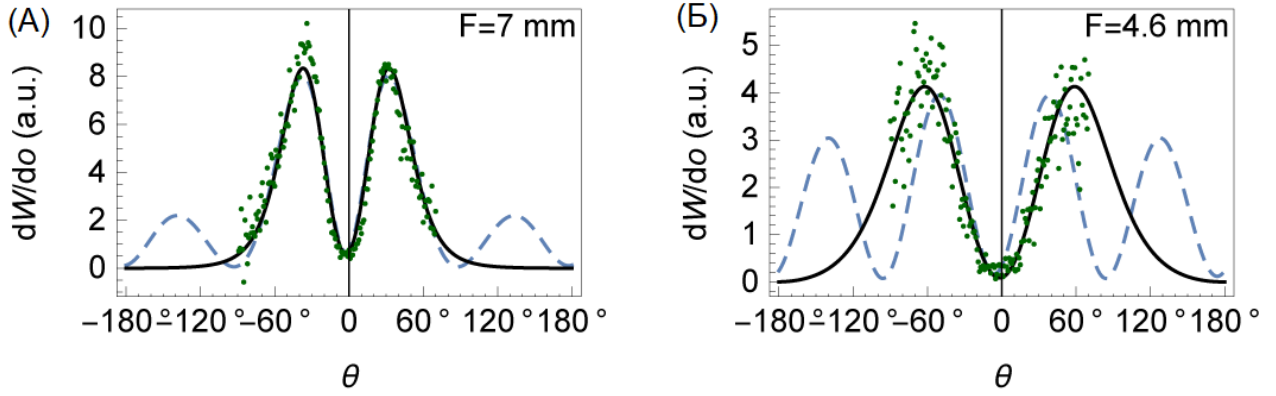
	Эксперимент		Аппроксимация 1			Аппроксимация 2		
$F(\text{мм})$	L	a	I_1	I_2	L	I_1	I_2	L
100	61.5	4.3	0.71	0.13	24.71	0.00	0.53	16.72
50	16.7	2.6	2.14	0.01	6.99	0.00	1.37	4.87
40	18.0	3.1	2.60	0.01	5.62	0.00	1.73	3.82
25	12.1	3.5	3.51	0.00	3.32	0.00	3.61	1.58
7	9.7	6.7	6.43	0.05	2.34	0.00	5.22	1.22
4.6	4.1	4.8	7.67	0.09	0.76	0.00	22.55	0.17

Результаты представлены в таблице 4.1 как аппроксимация № 1. Она показывает значительное доминирование дипольного тока даже при большом фокусном расстоянии F , когда длина филамента L настолько велика, что дипольное и квадрупольное излучение с трудом различимы. Как видно из табл. 4.1, квадрупольный ток I_2 мал по сравнению с дипольным током I_1 . Поэтому можно заключить, что

$$\frac{dW}{d\Omega} \approx \frac{3\pi^{3/2}}{16\sqrt{2}} c^2 L^2 \Delta\omega^5 \tau^4 I_1^2 \sin^2\theta, \quad (4.1)$$

Затем процедура аппроксимации была проведена для случая, когда дипольный ток принудительно устанавливается нулевым. Результат представлен в таблице 4.1, аппроксимация № 2. Сравнивая две аппроксимации, можно сделать вывод, что аппроксимация № 1 лучше для любого F , хотя графики для аппроксимации № 2 визуально неразличимы при больших F от соответствующих графиков для аппроксимации № 1 на рис. 4.14. Наиболее значительная разница наблюдается при малых F , как показано на рис. 4.21 для $F = 7$ мм и $F = 4,6$ мм.

Были также построены результаты аппроксимаций, нормированных на максимальное значение на рис. 4.17 вместе с эффективностью преобразования энергии. Как видно по графику, вклад дипольного тока увеличивается по мере уменьшения фокусного расстояния, в то время как квадрупольный



Аппроксимация № 1 (сплошная линия) и № 2 (пунктирная линия) для фокусных расстояний $F = 7 \text{ мм}$ (а) и $F = 4,6 \text{ мм}$ (б).

Рисунок 4.21. Сравнение экспериментально измеренной полной энергии dW , излучаемой в телесный угол $d\Omega$ с численной аппроксимацией.

вклад невелик, и его значение остается примерно на одинаковом уровне для всех условий фокусировки.

Как видно из результатов аппроксимаций, вычисленные размеры ТГц излучателя меньше видимых размеров филамента. Это означает, что большая часть ТГц излучения генерируется в тонкой части плазмы, где плотность плазмы близка к критическому значению для ТГц излучения. Внутренняя часть плазмы не прозрачна для ТГц излучения, а внешние слои плазмы имеют гораздо меньшую электронную плотность, так что их вклад в наблюдаемый сигнал тоже ниже. Кроме того, размеры плазменного облака, измеренные с использованием ПЗС, скорее всего завышены из-за расширения плазмы после прохождения оптического импульса. Схожие явления наблюдались при оптическом пробое в газовой - кластерных средах, где размеры нелинейной среды, излучающей ТГц волны, могла быть измерена путём регистрации рентгеновского излучения кластеров [80](см. главу 3).

4.4 Выводы к главе 4

В данной главе была исследована зависимость эффективности ТГц генерации в газе от его давления для двух различных газов, один из которых - диоксид углерода - при увеличении давления достигал состояния жидкости.

Экспериментально получены оптимальные давления 0,5 атм для углекислого газа и 1,2 атм для воздуха при идентичных условиях эксперимента.

Измерены зависимость угловой диаграммы направленности генерируемого в плазме оптического пробоя воздуха ТГц излучения от условий фокусировки в процессе формирования «микроплазменного» источника. Показано, что при терагерцовой генерации в газовых средах при увеличении числовой апертуры фокусирующей системы в диапазоне от 0,035 до 0,37 происходит рост до 15 раз энергии генерируемого терагерцового излучения при оптико-терагерцовом преобразовании, а также растёт угол раскрытия конической диаграммы направленности излучения в диапазоне от 10 до 55 градусов.

Проведено сравнение дипольных и квадрупольных вкладов эффективности и свойства ТГц излучения. Из экспериментальных результатов и теоретической модели показано, что для всех исследованных условий фокусировки пространственный профиль и энергия ТГц излучения соответствует вкладу продольного дипольного, а не квадрупольного, тока.

Заключение

В работе проведены исследования оптико-терагерцового преобразования в различных средах. При этом получены следующие основные результаты:

1. На примере жидкого азота экспериментально исследованы свойства оптико-терагерцового преобразования в жидкой среде. Зарегистрирован терагерцовый сигнал для двух схем оптического возбуждения среды (одноцветной и двухцветной) и показан рост коэффициента преобразования энергии лазерного излучения в терагерцовое для двухцветной схемы возбуждения в жидком азоте относительно аналогичной величины в воздухе. Экспериментально показано и теоретически обосновано, что при генерации терагерцового излучения в жидкости существенную роль играет возникающее в ней амбиполярное квазистатическое электрическое поле.
2. Экспериментально показано, что в присутствие мощного оптического излучения состояние поляризации терагерцового импульса может изменяться при прохождении изотропной centrosymmetric среды. Проведены теоретические оценки наблюдаемого эффекта на основе модели четырёхволнового смешения, подтверждающие экспериментальные результаты.
3. Экспериментально показано, что металлическая микрокапля размером много меньше длины волны терагерцового излучения может служить источником терагерцовых импульсов при оптической накачке. Продемонстрировано, что генерация интенсивного терагерцового излучения при двухимпульсном возбуждении микрокапли фемтосекундным лазерным излучением позволяет более чем на 2 порядка увеличить энергию терагерцовых импульсов по сравнению с одноимпульсным режимом возбуждения. Экспериментально показано существенное влияние времен-

ной задержки между оптическими импульсами на величину терагерцового сигнала. Изучены поляризационные, спектральные и энергетические характеристики терагерцового излучения.

4. Исследованы свойства процесса генерации терагерцового излучения при различных режимах оптического возбуждения газовой-кластерной среды. При взаимодействии фемтосекундных лазерных импульсов с газовой-кластерной струей наблюдается вклад в терагерцовую генерацию от кластеров и от некластеризованного газа, причём эти вклады можно разделить по влиянию длительности оптического импульса на эффективность оптико-терагерцового преобразования в среде. Показано, что для вклада от кластеризованного газа существует оптимальная длительность импульса, отличная от спектрально-ограниченной, при которой достигается максимум эффективности преобразования.
5. Экспериментально исследована зависимость эффективности терагерцовой генерации в воздухе и в углекислом газе от их давления. Показано, что существует оптимальное давление газа для оптико-терагерцового преобразования.
6. Экспериментально показано, что при терагерцовой генерации в газовых средах при увеличении числовой апертуры фокусирующей системы происходит увеличения энергии и угла раскрытия конической диаграммы направленности терагерцового излучения.

Таким образом, показана возможность увеличения эффективности и изменения частотно-угловых свойств ТГц сигнала при оптико-терагерцовом преобразовании, и изучены возможные механизмы терагерцовой генерации в различных средах.

Благодарности

Автор выражает благодарность и большую признательность научному руководителю Шкуринову А. П. за поддержку, помощь, обсуждение результатов

и научное руководство. Автор благодарит коллектив кафедры общей физики и волновых процессов физического факультета МГУ и коллектив лаборатории ТГц фотоники Физического факультета МГУ за бесценный экспериментальный опыт и ценные советы. Автор благодарен всем его соавторам, благодаря которым стала возможна публикация результатов работы, а также теоретическая интерпретация результатов.

Список литературы

1. *Mocker H. W., Collins R.* Mode competition and self-locking effects in aq-switched ruby laser // *Applied Physics Letters*. — 1965. — т. 7, № 10. — с. 270—273.
2. *Smith P. R., Auston D. H.* [и др.]. Subpicosecond photoconducting dipole antennas // *IEEE Journal of Quantum Electronics*. — 1988. — т. 24, № 2. — с. 255—260.
3. *Moulton P. F.* Spectroscopic and laser characteristics of Ti: Al₂O₃ // *JOSA B*. — 1986. — т. 3, № 1. — с. 125—133.
4. *Strickland D., Mourou G.* Compression of amplified chirped optical pulses // *Optics communications*. — 1985. — т. 56, № 3. — с. 219—221.
5. *Zhang X.-C., Xu J.* Introduction to THz wave photonics. т. 29. — Springer, 2010.
6. *Blank V., Thomson M.* [и др.]. 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. — т. 15, № 7. — с. 075023.
7. *Lui K., Hegmann F.* Ultrafast carrier relaxation in radiation-damaged silicon on sapphire studied by optical-pump-terahertz-probe experiments // *Applied Physics Letters*. — 2001. — т. 78, № 22. — с. 3478—3480.
8. *Hebling J., Yeh K.-L.* [и др.]. High-power THz generation, THz nonlinear optics, and THz nonlinear spectroscopy // *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*. — 2008. — т. 14, № 2. — с. 345—353.
9. *Ozheredov I., Prokopchuk M.* [и др.]. In vivo THz sensing of the cornea of the eye // *Laser Physics Letters*. — 2018. — т. 15, № 5. — с. 055601.

10. *Taylor Z. D., Garritano J.* [и др.]. THz and mm-wave sensing of corneal tissue water content: in vivo sensing and imaging results // IEEE transactions on terahertz science and technology. — 2015. — т. 5, № 2. — с. 184—196.
11. *Taday P. F.* Applications of terahertz spectroscopy to pharmaceutical sciences // Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences. — 2004. — т. 362, № 1815. — с. 351—364.
12. *Nagel M., Först M.* [и др.]. THz biosensing devices: fundamentals and technology // Journal of Physics: Condensed Matter. — 2006. — т. 18, № 18. — S601.
13. *Kaatze U., Feldman Y.* Broadband dielectric spectrometry of liquids and biosystems // Measurement Science and Technology. — 2005. — т. 17, № 2. — R17.
14. *Balakrishnan J., Fischer B. M.* [и др.]. Sensing the hygroscopicity of polymer and copolymer materials using terahertz time-domain spectroscopy // Applied optics. — 2009. — т. 48, № 12. — с. 2262—2266.
15. *Ospald F., Zouaghi W.* [и др.]. Aeronautics composite material inspection with a terahertz time-domain spectroscopy system // Optical Engineering. — 2013. — т. 53, № 3. — с. 031208.
16. *Lopato P., Chady T.* Terahertz detection and identification of defects in layered polymer composites and composite coatings // Nondestructive Testing and Evaluation. — 2013. — т. 28, № 1. — с. 28—43.
17. *Kuroo K., Hasegawa R.* [и др.]. Terahertz Application for non-destructive inspection of coated Al electrical conductive wires // Journal of Imaging. — 2017. — т. 3, № 3. — с. 27.
18. *Jepsen P. U., Jensen J. K.* [и др.]. Characterization of aqueous alcohol solutions in bottles with THz reflection spectroscopy // Optics express. — 2008. — т. 16, № 13. — с. 9318—9331.

19. *Federici J. F., Schulkin B.* [и др.]. THz imaging and sensing for security applications—explosives, weapons and drugs // Semiconductor Science and Technology. — 2005. — т. 20, № 7. — S266.
20. *Yamamoto K., Yamaguchi M.* [и др.]. Noninvasive inspection of C-4 explosive in mails by terahertz time-domain spectroscopy // Japanese journal of applied physics. — 2004. — т. 43, 3B. — с. L414.
21. *Dobroiu A., Sasaki Y.* [и др.]. THz-wave spectroscopy applied to the detection of illicit drugs in mail // Proceedings of the IEEE. — 2007. — т. 95, № 8. — с. 1566—1575.
22. *Liu T.-A., Lin G.-R.* [и др.]. Wireless audio and burst communication link with directly modulated THz photoconductive antenna // Optics express. — 2005. — т. 13, № 25. — с. 10416—10423.
23. *Pálfalvi L., Fülöp J.* [и др.]. Evanescent-wave proton postaccelerator driven by intense THz pulse // Physical Review Special Topics-Accelerators and Beams. — 2014. — т. 17, № 3. — с. 031301.
24. *Nanni E. A., Huang W. R.* [и др.]. Terahertz-driven linear electron acceleration // Nature communications. — 2015. — т. 6, № 1. — с. 1—8.
25. *Blanchard F., Razzari L.* [и др.]. Generation of 1.5 μJ single-cycle terahertz pulses by optical rectification from a large aperture ZnTe crystal // Optics Express. — 2007. — т. 15, № 20. — с. 13212—13220.
26. *Aoki K., Savolainen J.* [и др.]. Broadband terahertz pulse generation by optical rectification in GaP crystals // Applied Physics Letters. — 2017. — т. 110, № 20. — с. 201103.
27. *Schneider A., Neis M.* [и др.]. Generation of terahertz pulses through optical rectification in organic DAST crystals: theory and experiment // JOSA B. — 2006. — т. 23, № 9. — с. 1822—1835.
28. *Fülöp J. A., Ollmann Z.* [и др.]. Efficient generation of THz pulses with 0.4 mJ energy // Optics express. — 2014. — т. 22, № 17. — с. 20155—20163.

29. *Gallot G., Zhang J.* [и др.]. Measurements of the THz absorption and dispersion of ZnTe and their relevance to the electro-optic detection of THz radiation // Applied Physics Letters. — 1999. — т. 74, № 23. — с. 3450—3452.
30. *Unferdorben M., Szaller Z.* [и др.]. Measurement of refractive index and absorption coefficient of congruent and stoichiometric lithium niobate in the terahertz range // Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves. — 2015. — т. 36, № 12. — с. 1203—1209.
31. *Saito K., Tanabe T.* [и др.]. Terahertz-wave absorption in GaP crystals with different carrier densities // Journal of Physics and Chemistry of Solids. — 2008. — т. 69, № 2-3. — с. 597—600.
32. *Saraceno C. J., Sutter D.* [и др.]. The amazing progress of high-power ultrafast thin-disk lasers // Journal of the European Optical Society-Rapid Publications. — 2019. — т. 15, № 1. — с. 15.
33. *Oh T., You Y.* [и др.]. Scaling and saturation of high-power terahertz radiation generation in two-color laser filamentation // Applied Physics Letters. — 2013. — т. 102, № 20. — с. 201113.
34. *Chen Y., Yamaguchi M.* [и др.]. Terahertz pulse generation from noble gases // Applied Physics Letters. — 2007. — т. 91, № 25. — с. 251116.
35. *Boyd R. W.* Nonlinear optics. — Academic press, 2019.
36. *Einstein A.* Über einen die Erzeugung und Verwandlung des Lichtes betreffenden heuristischen Gesichtspunkt // Annalen der physik. — 1905. — т. 322, № 6. — с. 132—148.
37. *Auguste T., Monot P.* [и др.]. Multiply charged ions produced in noble gases by a 1 ps laser pulse at $\lambda = 1053$ nm // Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics. — 1992. — т. 25, № 20. — с. 4181.
38. *Krainov V. P., Smirnov B. M.* [и др.]. Femtosecond excitation of cluster beams // Physics-Uspekhi. — 2007. — т. 50, № 9. — с. 907—931.

39. *Delone N. B., Krainov V. P.* Tunneling and barrier-suppression ionization of atoms and ions in a laser radiation field // *Physics-Uspekhi*. — 1998. — т. 41, № 5. — с. 469.
40. *Krainov V. P., Smirnov M. B.* Cluster beams in the super-intense femtosecond laser pulse // *Physics reports*. — 2002. — т. 370, № 3. — с. 237—331.
41. *Augst S., Meyerhofer D. D.* [и др.]. Laser ionization of noble gases by Coulomb-barrier suppression // *JOSA B*. — 1991. — т. 8, № 4. — с. 858—867.
42. *Кикоин И.* Таблицы физических величин. — 1976.
43. *Thomson J. J.* XLII. Ionization by moving electrified particles // *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science*. — 1912. — т. 23, № 136. — с. 449—457.
44. *Gamaly E. G.* The physics of ultra-short laser interaction with solids at non-relativistic intensities // *Physics Reports*. — 2011. — т. 508, № 4-5. — с. 91—243.
45. *Gavrila M.* Atoms in intense laser fields. — 1992.
46. *Jung R.* Laser-plasma interaction with ultra-short laser pulses. — VDM-Verlag Dr. Müller, 2008.
47. *Kalashnikov M., Andreev A.* [и др.]. Limits of the temporal contrast for CPA lasers with beams of high aperture // *International Conference on Ultrafast and Nonlinear Optics 2009*. т. 7501. — International Society for Optics, Photonics. 2009. — с. 750104.
48. *Кандидов В. П., Шленов С. А.* [и др.]. Филаментация мощного фемтосекундного лазерного излучения // *Квантовая электроника*. — 2009. — т. 39, № 3. — с. 205—228.
49. *Арцимович Л. А., Сагдеев Р. З.* Физика плазмы для физиков. — Атомиздат, 1979.
50. *Xie X., Dai J.* [и др.]. Coherent control of THz wave generation in ambient air // *Physical review letters*. — 2006. — т. 96, № 7. — с. 075005.

51. *Houard A., Liu Y.* [и др.]. Strong enhancement of terahertz radiation from laser filaments in air by a static electric field // Physical review letters. — 2008. — т. 100, № 25. — с. 255006.
52. *D'Amico C., Houard A.* [и др.]. Conical forward THz emission from femtosecond-laser-beam filamentation in air // Physical review letters. — 2007. — т. 98, № 23. — с. 235002.
53. *Buccheri F., Zhang X.-C.* Terahertz emission from laser-induced microplasma in ambient air // Optica. — 2015. — т. 2, № 4. — с. 366—369.
54. *Zhang X.-C., Buccheri F.* Terahertz photonics of microplasma and beyond // Lithuanian Journal of Physics. — 2018. — т. 58, № 1.
55. *Thiele I., Alaiza Martinez P. G. de* [и др.]. Broadband terahertz emission from two-color femtosecond-laser-induced microplasmas // Physical Review A. — 2017. — т. 96, № 5. — с. 053814.
56. *Ushakov A., Panov N.* [и др.]. Waveform, spectrum, and energy of backward terahertz emission from two-color femtosecond laser induced microplasma // Applied Physics Letters. — 2019. — т. 114, № 8. — с. 081102.
57. *Jin Q., E Y.* [и др.]. Observation of broadband terahertz wave generation from liquid water // Applied Physics Letters. — 2017. — т. 111, № 7. — с. 071103.
58. *Jin Q., Dai J.* [и др.]. Terahertz wave emission from a liquid water film under the excitation of asymmetric optical fields // Applied Physics Letters. — 2018. — т. 113, № 26. — с. 261101.
59. *Ditmire T., Donnelly T.* [и др.]. Interaction of intense laser pulses with atomic clusters // Physical Review A. — 1996. — т. 53, № 5. — с. 3379.
60. *Kadlec F., Kužel P.* [и др.]. Optical rectification at metal surfaces // Optics letters. — 2004. — т. 29, № 22. — с. 2674—2676.
61. *Tian Y., Liu J.* [и др.]. Femtosecond-laser-driven wire-guided helical undulator for intense terahertz radiation // Nature Photonics. — 2017. — т. 11, № 4. — с. 242—246.

62. *Dey I., Jana K.* [и др.]. Highly efficient broadband terahertz generation from ultrashort laser filamentation in liquids // Nature communications. — 2017. — т. 8, № 1. — с. 1—7.
63. *He B., Nan J.* [и др.]. Terahertz Generation Enhanced by Nonlinear Filaments Interaction in Liquids // IEEE Photonics Technology Letters. — 2019. — т. 31, № 16. — с. 1369—1372.
64. *Ramanandan G., Ramakrishnan G.* [и др.]. Emission of terahertz pulses from nanostructured metal surfaces // Journal of Physics D: Applied Physics. — 2014. — т. 47, № 37. — с. 374003.
65. *Woldegeorgis A., Kurihara T.* [и др.]. Multi-MV/cm longitudinally polarized terahertz pulses from laser-thin foil interaction // Optica. — 2018. — т. 5, № 11. — с. 1474—1477.
66. *Nagashima T., Hirayama H.* [и др.]. Terahertz pulse radiation from argon clusters irradiated with intense femtosecond laser pulses // Optics express. — 2009. — т. 17, № 11. — с. 8907—8912.
67. *Jahangiri F., Hashida M.* [и др.]. Intense terahertz emission from atomic cluster plasma produced by intense femtosecond laser pulses // Applied Physics Letters. — 2011. — т. 99, № 26. — с. 261503.
68. *Jahangiri F., Hashida M.* [и др.]. Enhancing the energy of terahertz radiation from plasma produced by intense femtosecond laser pulses // Applied Physics Letters. — 2013. — т. 102, № 19. — с. 191106.
69. *Oh T., You Y.* [и др.]. Intense terahertz generation in two-color laser filamentation: energy scaling with terawatt laser systems // New Journal of Physics. — 2013. — т. 15, № 7. — с. 075002.
70. *Kumar M., Tripathi V.* Terahertz generation by nonlinear mixing of laser pulses in a clustered gas // Physics of Plasmas. — 2011. — т. 18, № 5. — с. 053105.
71. *Malik R., Uma R.* [и др.]. Two color laser driven THz generation in clustered plasma // Physics of Plasmas. — 2017. — т. 24, № 7. — с. 073109.

72. *Bhasin L., Tripathi D.* [и др.]. Laser beat wave terahertz generation in a clustered plasma in an azimuthal magnetic field // *Physics of Plasmas*. — 2011. — т. 18, № 5. — с. 053109.
73. *Andreev A. V., Angeluts A. A.* [и др.]. THz Generation in Laser-Induced Breakdown in Carbon Dioxide at Different Levels of Gas Pressure // *IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology*. — 2020. — т. 10, № 1. — с. 85—92.
74. *Solyankin P. M., Nikolaeva I. A.* [и др.]. THz generation from laser-induced breakdown in pressurized molecular gases: on the way to terahertz remote sensing of the atmospheres of Mars and Venus // *New Journal of Physics*. — 2020. — т. 22, № 1. — с. 013039.
75. *Nazarov M., Mitrofanov A.* [и др.]. High-intensity THz pulse generation by TW laser radiation in ionized gas and nonlinear crystals // *Journal of Physics: Conference Series*. т. 1556. — IOP Publishing. 2020. — с. 012008.
76. *Balakin A. V., Coutaz J.-L.* [и др.]. Terahertz wave generation from liquid nitrogen // *Photonics Research*. — 2019. — т. 7, № 6. — с. 678—686.
77. *Balakin A. V., Garnov S. V.* [и др.]. “Terhune-like” transformation of the terahertz polarization ellipse “mutually induced” by three-wave joint propagation in liquid // *Optics letters*. — 2018. — т. 43, № 18. — с. 4406—4409.
78. *Shkurinov A. P., Sinko A. S.* [и др.]. Impact of the dipole contribution on the terahertz emission of air-based plasma induced by tightly focused femtosecond laser pulses // *Physical Review E*. — 2017. — т. 95, № 4. — с. 043209.
79. *Solyankin P. M., Lakatosh B. V.* [и др.]. Single Free-Falling Droplet of Liquid Metal as a Source of Directional Terahertz Radiation // *Physical Review Applied*. — 2020. — т. 14, № 3. — с. 034033.
80. *Balakin A. V., Dzhidzhoev M. S.* [и др.]. Interaction of high-intensity femtosecond radiation with gas cluster beam: effect of pulse duration on

- joint terahertz and x-ray emission // IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology. — 2017. — т. 7, № 1. — с. 70—79.
81. *Balakin A., Borodin A.* [и др.]. Terahertz emission during interaction of ultrashort laser pulses with gas cluster beam // J. Phys., Conf. Series. т. 735. — 2016.
 82. *Balakin A., Dzhidzhoev M.* [и др.]. THz and X-ray emission as a tool for study of ionization dynamics in gas clusters // 2016 41st International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz waves (IRMMW-THz). — IEEE. 2016. — с. 1—3.
 83. *Balakin A., Bunkin A.* [и др.]. Terahertz wave generation from liquid gas // 2018 International Conference Laser Optics (ICLO). — IEEE. 2018. — с. 302—302.
 84. *Shkurinov A. P., Sinko A. S.* [и др.]. Impact of the dipole and quadrupole contributions into the THz emission of air-based plasma in the mode of micro-focusing // 2017 42nd International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz). — IEEE. — с. 1—2.
 85. *Esaulkov M., Borodin A.* [и др.]. Terahertz radiation from the plasma of optical breakdown of air: From filament to microplasma // 2016 41st International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz waves (IRMMW-THz). — IEEE. 2016. — с. 1—2.
 86. *Balakin A., Dzhidzhoev M.* [и др.]. Interaction of high-intensity femtosecond laser pulses with gas clusters: simultaneous generation of THz and X-ray radiation // Журнал прикладной спектроскопии. — 2017. — т. 83, № 6-16. — с. 189—189.
 87. *Balakin A., Dzhidzhoev M.* [и др.]. Terahertz and X-Ray Emission from Clustered Plasma and Dynamics of the Cluster Formation in the Expanding Jet // Progress in Photon Science. — Springer, 2019. — с. 321—341.
 88. *Shkurinov A. P., Solyankin P. M.* [и др.]. Efficient terehertz generation with two pulse photoexcitation of metal microdroplet // AIP Conference Proceedings. т. 2299. — AIP Publishing LLC. 2020. — с. 030003.

89. *Solyankin P., Lakatosh B.* [и др.]. Terahertz radiation emission as a result of femtosecond laser beam interaction with liquid metal droplets // 2020 International Conference Laser Optics (ICLO). — IEEE. 2020. — с. 1—1.
90. *Solyankin P. M., Balakin A. V.* [и др.]. Transformation of the Terahertz Polarization During Three-Wave Joint Propagation in Liquid Nitrogen // 2019 44th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz). — IEEE. 2019. — с. 1—2.
91. *Xu J., Plaxco K. W.* [и др.]. Absorption spectra of liquid water and aqueous buffers between 0.3 and 3.72 THz // The Journal of chemical physics. — 2006. — т. 124, № 3. — с. 036101.
92. *Ronne C., Åstrand P.-O.* [и др.]. THz spectroscopy of liquid H₂O and D₂O // Physical review letters. — 1999. — т. 82, № 14. — с. 2888.
93. *Kindt J., Schmuttenmaer C.* Far-infrared dielectric properties of polar liquids probed by femtosecond terahertz pulse spectroscopy // The Journal of Physical Chemistry. — 1996. — т. 100, № 24. — с. 10373—10379.
94. *Thrane L., Jacobsen R. H.* [и др.]. THz reflection spectroscopy of liquid water // Chemical Physics Letters. — 1995. — т. 240, № 4. — с. 330—333.
95. *Ronne C., Thrane L.* [и др.]. Investigation of the temperature dependence of dielectric relaxation in liquid water by THz reflection spectroscopy and molecular dynamics simulation // The Journal of chemical physics. — 1997. — т. 107, № 14. — с. 5319—5331.
96. *Yomogida Y., Sato Y.* [и др.]. Dielectric study of normal alcohols with THz time-domain spectroscopy // Journal of Molecular Liquids. — 2010. — т. 154, № 1. — с. 31—35.
97. *Flanders B., Cheville R.* [и др.]. Pulsed terahertz transmission spectroscopy of liquid CHCl₃, CCl₄, and their mixtures // The Journal of Physical Chemistry. — 1996. — т. 100, № 29. — с. 11824—11835.
98. *Llanta E., Rey R.* Collision-induced absorption in liquid carbon tetrachloride // Chemical physics letters. — 2001. — т. 340, № 1-2. — с. 173—178.

99. *Nymand T. M., Rønne C.* [и др.]. The temperature dependent dielectric function of liquid benzene: Interpretation of THz spectroscopy data by molecular dynamics simulation // The Journal of Chemical Physics. — 2001. — т. 114, № 12. — с. 5246—5255.
100. *Kim K.-Y., Glowacki J. H.* [и др.]. Terahertz emission from ultrafast ionizing air in symmetry-broken laser fields // Optics Express. — 2007. — т. 15, № 8. — с. 4577—4584.
101. *Yiwen E., Jin Q.* [и др.]. Terahertz wave generation from liquid water films via laser-induced breakdown // Appl. Phys. Lett. — 2018. — т. 113. — с. 181103.
102. *Zhang L.-L., Wang W.-M.* [и др.]. Strong terahertz radiation from a liquid-water line // Physical Review Applied. — 2019. — т. 12, № 1. — с. 014005.
103. *Тсупкин А. Н., Пonomareva E. A.* [и др.]. Flat liquid jet as a highly efficient source of terahertz radiation // Optics express. — 2019. — т. 27, № 11. — с. 15485—15494.
104. *Wang T., Klarskov P.* [и др.]. Ultrabroadband THz time-domain spectroscopy of a free-flowing water film // IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology. — 2014. — т. 4, № 4. — с. 425—431.
105. *Kildal H., Brueck S.* Orientational and electronic contributions to the third-order susceptibilities of cryogenic liquids // The Journal of Chemical Physics. — 1980. — т. 73, № 10. — с. 4951—4958.
106. *Samios J., Mittag U.* [и др.]. The far infrared absorption spectrum of liquid nitrogen: a molecular dynamics simulation study // Molecular Physics. — 1985. — т. 56, № 3. — с. 541—556.
107. *Dolgaleva K., Materikina D. V.* [и др.]. Prediction of an extremely large nonlinear refractive index for crystals at terahertz frequencies // Physical Review A. — 2015. — т. 92, № 2. — с. 023809.
108. *Hoffmann M. C., Brandt N. C.* [и др.]. Terahertz kerr effect // Applied Physics Letters. — 2009. — т. 95, № 23. — с. 231105.

109. *Freysz E., Degert J.* Terahertz Kerr effect // Nature photonics. — 2010. — т. 4, № 3. — с. 131–132.
110. *Feil T., Allen S.* Terahertz/optical sum and difference frequency generation in liquids // Applied Physics Letters. — 2011. — т. 98, № 6. — с. 061106.
111. *Bodrov S. B., Murzanev A. A.* [и др.]. Optical depolarization in liquids and second harmonic generation from the surface induced by intense THz pulses // 2015 40th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz waves (IRMMW-THz). — IEEE. 2015. — с. 1–2.
112. *Elsaesser T., Reimann K.* [и др.]. Focus: Phase-resolved nonlinear terahertz spectroscopy—From charge dynamics in solids to molecular excitations in liquids // The Journal of chemical physics. — 2015. — т. 142, № 21. — с. 212301.
113. *Sajadi M., Wolf M.* [и др.]. Transient birefringence of liquids induced by terahertz electric-field torque on permanent molecular dipoles // Nature communications. — 2017. — т. 8, № 1. — с. 1–9.
114. *Bodrov S., Sergeev Y.* [и др.]. Terahertz induced optical birefringence in polar and nonpolar liquids // The Journal of chemical physics. — 2017. — т. 147, № 8. — с. 084507.
115. *Zalden P., Song L.* [и др.]. Molecular polarizability anisotropy of liquid water revealed by terahertz-induced transient orientation // Nature communications. — 2018. — т. 9, № 1. — с. 1–7.
116. *Тсупкин А. Н., Мельник М. В.* [и др.]. High Kerr nonlinearity of water in THz spectral range // Optics express. — 2019. — т. 27, № 8. — с. 10419–10425.
117. *Zhukova M. O., Melnik M. V.* [и др.]. High cubic nonlinearity of liquids in the broadband THz spectral range // 2019 44th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz). — IEEE. 2019. — с. 1–2.
118. *Maker P., Terhune R.* [и др.]. Intensity-dependent changes in the refractive index of liquids // Physical Review Letters. — 1964. — т. 12, № 18. — с. 507.

119. *Balakin A., Koroteev N.* [и др.]. Polarization characteristics of the “forbidden” second optical harmonic of femtosecond laser pulses in a bacteriorhodopsin solution // Journal of Experimental and Theoretical Physics. — 1997. — т. 85, № 1. — с. 52—60.
120. *Akhmanov S., Lyakhov G.* [и др.]. Theory of nonlinear optical activity in isotropic media and liquid crystals // Optica Acta: International Journal of Optics. — 1982. — т. 29, № 10. — с. 1359—1369.
121. *Svirko Y. P., Zheludev N. I.* Polarization of light in nonlinear optics // Polarization of Light in Nonlinear Optics. — 2000. — с. 240.
122. *Golubkov A., Makarov V.* Spectroscopy of nonlinear gyrotropic medium and surface diagnostics based on polarization effects due to self-action of light // Journal of Modern Optics. — 1990. — т. 37, № 9. — с. 1531—1543.
123. *Kovrighin A., Yakovlev D.* [и др.]. Self-induced optical activity in crystals // Optics Communications. — 1980. — т. 35, № 1. — с. 92—95.
124. *Popov S., Svirko Y. P.* [и др.]. Susceptibility tensors for nonlinear optics. — CRC Press, 1995.
125. *Wen B., Xue Y.* [и др.]. Radial-variant nonlinear ellipse rotation // Optics letters. — 2017. — т. 42, № 19. — с. 3988—3991.
126. *Kanda N., Konishi K.* [и др.]. Light-induced terahertz optical activity // Optics letters. — 2009. — т. 34, № 19. — с. 3000—3002.
127. *Alshershby M., Hao Z.* [и др.]. Guiding microwave radiation using laser-induced filaments: the hollow conducting waveguide concept // Journal of Physics D: Applied Physics. — 2012. — т. 45, № 26. — с. 265401.
128. *Siegman A. E.* Lasers university science books // Mill Valley, CA. — 1986. — т. 37, № 208. — с. 169.
129. *Cook D., Hochstrasser R.* Intense terahertz pulses by four-wave rectification in air // Optics letters. — 2000. — т. 25, № 16. — с. 1210—1212.
130. *Zhao J., Zhang Y.* [и др.]. Propagation of terahertz wave inside femtosecond laser filament in air // Laser Physics Letters. — 2014. — т. 11, № 9. — с. 095302.

131. *Grun J., McQuillan A.* [и др.]. Intensity and gain measurements on the stimulated Raman emission in liquid O₂ and N₂ // *Physical Review*. — 1969. — т. 180, № 1. — с. 61.
132. *Beattie I., Gilson T.* [и др.]. Low frequency coherent anti-Stokes Raman spectroscopy of air // *Nature*. — 1978. — т. 276, № 5686. — с. 378—379.
133. *Oxtoby D. W.* Vibrational relaxation in liquids // *Annual Review of Physical Chemistry*. — 1981. — т. 32, № 1. — с. 77—101.
134. *Johns H. E., Wilhelm J.* The refractive indices of liquid oxygen, nitrogen, and hydrogen // *Canadian Journal of Research*. — 1937. — т. 15, № 7. — с. 101—108.
135. *Kim K.-Y., Taylor A.* [и др.]. Coherent control of terahertz supercontinuum generation in ultrafast laser-gas interactions // *Nature photonics*. — 2008. — т. 2, № 10. — с. 605—609.
136. *Balakin A. V., Borodin A. V.* [и др.]. Terahertz emission from a femtosecond laser focus in a two-color scheme // *JOSA B*. — 2010. — т. 27, № 1. — с. 16—26.
137. *Vvedenskii N., Korytin A.* [и др.]. Two-color laser-plasma generation of terahertz radiation using a frequency-tunable half harmonic of a femtosecond pulse // *Physical Review Letters*. — 2014. — т. 112, № 5. — с. 055004.
138. *Kostin V., Laryushin I.* [и др.]. Ionization-induced multiwave mixing: terahertz generation with two-color laser pulses of various frequency ratios // *Physical review letters*. — 2016. — т. 117, № 3. — с. 035003.
139. *Wang W.-M., Sheng Z.-M.* [и др.]. Strong terahertz pulse generation by chirped laser pulses in tenuous gases // *Optics Express*. — 2008. — т. 16, № 21. — с. 16999—17006.
140. *Barnett C. F., Harrison M. F. A.* *Applied Atomic Collision Physics, Volume 2: Plasmas* // *Applied Atomic Collision Physics, Volume 2: Plasmas*. т. 2. — 1984.

141. *Mori K., Hashida M.* [и др.]. Directional linearly polarized terahertz emission from argon clusters irradiated by noncollinear double-pulse beams // Applied Physics Letters. — 2017. — т. 111, № 24. — с. 241107.
142. *Panov N. A., Kosareva O. G.* [и др.]. Angular distribution of the terahertz radiation intensity from the plasma channel of a femtosecond filament // JETP letters. — 2011. — т. 93, № 11. — с. 638.
143. *Schottky W.* Diffusionstheorie der positiven Säule // Phys. Zeits. — 1924. — т. 25, № 23. — с. 635.
144. *Lifschitz E., Pitajewski L.* Physical kinetics // Textbook of theoretical physics. 10. — 1983.
145. *Sipe J., So V.* [и др.]. Analysis of second-harmonic generation at metal surfaces // Physical Review B. — 1980. — т. 21, № 10. — с. 4389.
146. *Janz S., Van Driel H.* Second-harmonic generation from metal surfaces // Quantum Electronics and Laser Science Conference. — Optical Society of America. 1992. — QTuF2.
147. *Stockman M. I., Bergman D. J.* [и др.]. Enhanced second-harmonic generation by metal surfaces with nanoscale roughness: nanoscale dephasing, depolarization, and correlations // Physical review letters. — 2004. — т. 92, № 5. — с. 057402.
148. *Polyushkin D. K., Márton I.* [и др.]. Mechanisms of THz generation from silver nanoparticle and nanohole arrays illuminated by 100 fs pulses of infrared light // Physical Review B. — 2014. — т. 89, № 12. — с. 125426.
149. *Oladyshkin I., Fadeev D.* [и др.]. Thermal mechanism of laser induced THz generation from a metal surface // Journal of Optics. — 2015. — т. 17, № 7. — с. 075502.
150. *Wagner C., Harned N.* Lithography gets extreme // Nature Photonics. — 2010. — т. 4, № 1. — с. 24—26.

151. *Fomenkov I., Brandt D.* [и др.]. Light sources for high-volume manufacturing EUV lithography: technology, performance, and power scaling // Advanced Optical Technologies. — 2017. — т. 6, № 3-4. — с. 173—186.
152. *Burdtt R. A., Tao Y.* [и др.]. Laser wavelength effects on the charge state resolved ion energy distributions from laser-produced Sn plasma // Journal of Applied Physics. — 2010. — т. 107, № 4. — с. 043303.
153. *Tanaka H., Matsumoto A.* [и др.]. Comparative study on emission characteristics of extreme ultraviolet radiation from CO₂ and Nd: YAG laser-produced tin plasmas // Applied Physics Letters. — 2005. — т. 87, № 4. — с. 041503.
154. *Huang H.-h., Nagashima T.* [и др.]. Dual THz wave and X-ray generation from a water film under femtosecond laser excitation // Nanomaterials. — 2018. — т. 8, № 7. — с. 523.
155. *Cao Y., E Y.* [и др.]. Broadband terahertz wave emission from liquid metal // Applied Physics Letters. — 2020. — т. 117, № 4. — с. 041107.
156. *Mori K., Hashida M.* [и др.]. Increased energy of THz waves from a cluster plasma by optimizing laser pulse duration // AIP Advances. — 2019. — т. 9, № 1. — с. 015134.
157. *Zhang L.-L., Wang W.-M.* [и др.]. Observation of terahertz radiation via the two-color laser scheme with uncommon frequency ratios // Physical review letters. — 2017. — т. 119, № 23. — с. 235001.
158. *Savinov V., Delfanazari K.* [и др.]. Giant nonlinearity in a superconducting sub-terahertz metamaterial // Applied Physics Letters. — 2016. — т. 108, № 10. — с. 101107.
159. *Pershin S. M.* Nonlinear increase in the interaction efficiency of a second pulse with a target upon excitation of a plasma by a train of pulses from a Nd: YAG laser // Quantum Electronics. — 2009. — т. 39, № 1. — с. 63.

160. *Colao F., Lazic V.* [и др.]. A comparison of single and double pulse laser-induced breakdown spectroscopy of aluminum samples // *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*. — 2002. — т. 57, № 7. — с. 1167—1179.
161. *Arumov G. P., Bukharov A. Y.* [и др.]. Effect of the surface irradiation regime on the spectrum of laser plasma luminescence // *Pisma v Zhurnal Tekhnicheskoi Fiziki*. — 1987. — т. 13, № 14. — с. 870—873.
162. *Vinokhodov A., Krivokorytov M.* [и др.]. Stable droplet generator for a high brightness laser produced plasma extreme ultraviolet source // *Review of Scientific Instruments*. — 2016. — т. 87, № 10. — с. 103304.
163. *Basko M., Krivokorytov M.* [и др.]. Fragmentation dynamics of liquid-metal droplets under ultra-short laser pulses // *Laser Physics Letters*. — 2017. — т. 14, № 3. — с. 036001.
164. *Vinokhodov A. Y., Koshelev K. N.* [и др.]. Formation of a fine-dispersed liquid-metal target under the action of femto-and picosecond laser pulses for a laser-plasma radiation source in the extreme ultraviolet range // *Quantum Electronics*. — 2016. — т. 46, № 1. — с. 23.
165. *Das J., Yamaguchi M.* Terahertz wave excitation from preexisting air plasma // *JOSA B*. — 2013. — т. 30, № 6. — с. 1595—1600.
166. *Wen H., Daranciang D.* [и др.]. High-speed all-optical terahertz polarization switching by a transient plasma phase modulator // *Applied Physics Letters*. — 2010. — т. 96, № 16. — с. 161103.
167. *Minami Y., Nakajima M.* [и др.]. Effect of preformed plasma on terahertz-wave emission from the plasma generated by two-color laser pulses // *Physical Review A*. — 2011. — т. 83, № 2. — с. 023828.
168. *Vaičaitis V., Ivanov M.* [и др.]. Influence of laser-preformed plasma on thz wave generation in air by bichromatic laser pulses // *Laser Physics*. — 2018. — т. 28, № 9. — с. 095402.
169. *Manceau J.-M., Massaouti M.* [и др.]. Strong terahertz emission enhancement via femtosecond laser filament concatenation in air // *Optics letters*. — 2010. — т. 35, № 14. — с. 2424—2426.

170. *Borodin A. V., Esaulkov M. N.* [и др.]. On the role of photoionization in generation of terahertz radiation in the plasma of optical breakdown // JOSA B. — 2012. — т. 29, № 8. — с. 1911—1919.
171. *Andreeva V., Kosareva O.* [и др.]. Ultrabroad terahertz spectrum generation from an air-based filament plasma // Physical review letters. — 2016. — т. 116, № 6. — с. 063902.
172. *Cunningham P. D., Valdes N. N.* [и др.]. Broadband terahertz characterization of the refractive index and absorption of some important polymeric and organic electro-optic materials // Journal of Applied Physics. — 2011. — т. 109, № 4. — с. 043505—043505.
173. *Соколов А. В.* Оптические свойства металлов. — Гос. изд-во физико-математической лит-ры, 1961.
174. *Bekshaev A. Y., Bliokh K. Y.* [и др.]. Mie scattering and optical forces from evanescent fields: A complex-angle approach // Optics express. — 2013. — т. 21, № 6. — с. 7082—7095.
175. *Fisher D., Fraenkel M.* [и др.]. Interband and intraband (Drude) contributions to femtosecond laser absorption in aluminum // Physical Review E. — 2001. — т. 65, № 1. — с. 016409.
176. *Price D., More R.* [и др.]. Absorption of ultrashort laser pulses by solid targets heated rapidly to temperatures 1–1000 eV // Physical review letters. — 1995. — т. 75, № 2. — с. 252.
177. *Pauly H.* The Role of Molecular Beams in the 20th Century // Atom, Molecule, and Cluster Beams I. — Springer, 2000. — с. 1—34.
178. *Hagena O., Obert W.* Cluster formation in expanding supersonic jets: Effect of pressure, temperature, nozzle size, and test gas // The Journal of Chemical Physics. — 1972. — т. 56, № 5. — с. 1793—1802.
179. *Gordienko V. M., Dzhidzhoev M. S.* [и др.]. Hard X-ray generation and plasma filament formation under interaction of femtosecond laser pulses with large molecular clusters // The European Physical Journal D. — 2013. — т. 67, № 3. — с. 55.

180. *Chen L., Liu F.* [и др.]. Intense high-contrast femtosecond K-shell x-ray source from laser-driven Ar clusters // Physical review letters. — 2010. — т. 104, № 21. — с. 215004.
181. *Donnelly T. D., Ditmire T.* [и др.]. High-order harmonic generation in atom clusters // Physical review letters. — 1996. — т. 76, № 14. — с. 2472.
182. *Tiwari P. K., Tripathi V.* Stimulated Raman scattering of a laser in a plasma with clusters // Physics of Plasmas. — 2004. — т. 11, № 4. — с. 1674—1679.
183. *Alexeev I., Antonsen T.* [и др.]. Self-focusing of intense laser pulses in a clustered gas // Physical review letters. — 2003. — т. 90, № 10. — с. 103402.
184. *Kundu M., Bauer D.* Optimizing the ionization and energy absorption of laser-irradiated clusters // Physics of Plasmas. — 2008. — т. 15, № 3. — с. 033303.
185. *Geritz S. A., Metz J. A.* [и др.]. Dynamics of adaptation and evolutionary branching // Physical Review Letters. — 1997. — т. 78, № 10. — с. 2024.
186. *Faenov A. Y., Skobelev I. Y.* [и др.]. X-ray spectroscopy diagnoses of clusters surviving under prepulses of ultra-intense femtosecond laser pulse irradiation // Laser and Particle Beams. — 2012. — т. 30, № 3. — с. 481—488.
187. *Dorchies F., Blasco F.* [и др.]. Spatial distribution of cluster size and density in supersonic jets as targets for intense laser pulses // Physical review A. — 2003. — т. 68, № 2. — с. 023201.
188. *Chen G., Geng X.* [и др.]. Understanding of cluster size deviation by measuring the dimensions of cluster jet from conical nozzles // AIP Advances. — 2013. — т. 3, № 3. — с. 032133.
189. *Gao X., Wang X.* [и др.]. Characterization of cluster/monomer ratio in pulsed supersonic gas jets // Applied Physics Letters. — 2012. — т. 100, № 6. — с. 064101.

190. *Mendham K., Tisch J.* [и др.]. Control of laser heating in clusters through variation in temporal pulse shape // Optics express. — 2003. — т. 11, № 12. — с. 1357—1364.
191. *Borodin A. V., Esaulkov M. N.* [и др.]. Possibility of direct estimation of terahertz pulse electric field // Optics letters. — 2014. — т. 39, № 14. — с. 4092—4095.
192. *Fukuda Y., Kishimoto Y.* [и др.]. Structure and dynamics of cluster plasmas created by ultrashort intense laser fields // Physical Review A. — 2006. — т. 73, № 3. — с. 031201.
193. *Dine M., Feng J. L.* [и др.]. Retrofitting O’Raifeartaigh models with dynamical scales // Physical Review D. — 2006. — т. 74, № 9. — с. 095012.
194. *Hamster H., Sullivan A.* [и др.]. Subpicosecond, electromagnetic pulses from intense laser-plasma interaction // Physical review letters. — 1993. — т. 71, № 17. — с. 2725.
195. *Sun W.-F., Zhou Y.-S.* [и др.]. External electric field control of THz pulse generation in ambient air // Optics express. — 2008. — т. 16, № 21. — с. 16573—16580.
196. *Clerici M., Peccianti M.* [и др.]. Wavelength scaling of terahertz generation by gas ionization // Physical Review Letters. — 2013. — т. 110, № 25. — с. 253901.
197. *Oh T., You Y.* [и др.]. Two-dimensional plasma current and optimized terahertz generation in two-color photoionization // Optics express. — 2012. — т. 20, № 18. — с. 19778—19786.
198. *Dai J., Zhang X.-C.* Terahertz wave generation from gas plasma using a phase compensator with attosecond phase-control accuracy // Applied Physics Letters. — 2009. — т. 94, № 2. — с. 021117.
199. *Rodriguez G., Dakovski G. L.* Scaling behavior of ultrafast two-color terahertz generation in plasma gas targets: energy and pressure dependence // Optics express. — 2010. — т. 18, № 14. — с. 15130—15143.

200. *Löffler T., Roskos H.* Gas-pressure dependence of terahertz-pulse generation in a laser-generated nitrogen plasma // Journal of applied physics. — 2002. — т. 91, № 5. — с. 2611—2614.
201. *Babushkin I., Kuehn W.* [и др.]. Ultrafast spatiotemporal dynamics of terahertz generation by ionizing two-color femtosecond pulses in gases // Physical review letters. — 2010. — т. 105, № 5. — с. 053903.
202. *Yoo Y.-J., Jang D.* [и др.]. Highly enhanced terahertz conversion by two-color laser filamentation at low gas pressures // Optics express. — 2019. — т. 27, № 16. — с. 22663—22673.
203. *Zhao H., Zhang L.* [и др.]. Terahertz wave generation from noble gas plasmas induced by a wavelength-tunable femtosecond laser // IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology. — 2018. — т. 8, № 3. — с. 299—304.
204. *Manceau J.-M., Massaouti M.* [и др.]. Coherent control of THz pulses polarization from femtosecond laser filaments in gases // Optics express. — 2010. — т. 18, № 18. — с. 18894—18899.
205. *Karpowicz N., Lu X.* [и др.]. Terahertz gas photonics // Journal of Modern Optics. — 2009. — т. 56, № 10. — с. 1137—1150.
206. *Чекалин С. В., Компанец В. О.* [и др.]. Световые пули и спектр супер-континуума при филаментации фемтосекундного импульса в условиях аномальной дисперсии групповой скорости в плавленом кварце // Квантовая электроника. — 2013. — т. 43, № 4. — с. 326—331.
207. *Romanov D., Compton R.* [и др.]. Dynamics of strong-field laser-induced microplasma formation in noble gases // Physical Review A. — 2010. — т. 81, № 3. — с. 033403.
208. *Bukin V. V., Vorob'ev N. S.* [и др.]. Formation and development dynamics of femtosecond laser microplasma in gases // Quantum Electronics. — 2006. — т. 36, № 7. — с. 638.

209. *Brownell J., Nerukh A.* [и др.]. Terahertz sensing of non-equilibrium microplasmas // Journal of Physics D: Applied Physics. — 2005. — т. 38, № 11. — с. 1658.
210. *Gao R., Yuan C.* [и др.]. The terahertz characteristics of a sandwich type microplasma structure // Journal of Applied Physics. — 2013. — т. 114, № 12. — с. 123302.
211. *Yuan C., Zhou Z.* [и др.]. Propagation of terahertz waves in an atmospheric pressure microplasma with Epstein electron density profile // Journal of Applied Physics. — 2011. — т. 109, № 6. — с. 063305.
212. *Buccheri F., Liu K.* [и др.]. Terahertz radiation enhanced emission of fluorescence from elongated plasmas and microplasmas in the counter-propagating geometry // Applied Physics Letters. — 2017. — т. 111, № 9. — с. 091103.
213. *Thiele I., Nuter R.* [и др.]. Theory of terahertz emission from femtosecond-laser-induced microplasmas // Physical Review E. — 2016. — т. 94, № 6. — с. 063202.
214. *Alirezaee H., Sharifian M.* [и др.]. Numerical Study of the Effect of Pre-Pulse on THz Generation by Two-Color Laser-Induced Microplasma // IEEE Transactions on Plasma Science. — 2020. — т. 48, № 2. — с. 576—580.
215. *Yi L., Fülöp T.* Coherent Diffraction Radiation of Relativistic Terahertz Pulses from a Laser-Driven Microplasma Waveguide // Physical review letters. — 2019. — т. 123, № 9. — с. 094801.
216. *Koroteev N. I.* Interference phenomena in coherent active spectroscopy of light scattering and absorption: holographic multidimensional spectroscopy // Soviet Physics Uspekhi. — 1987. — т. 30, № 7. — с. 628.
217. *Shkurinov A., Dubrovskii A.* [и др.]. Second harmonic generation in an optically active liquid: Experimental observation of a fourth-order optical

- nonlinearity due to molecular chirality // Physical review letters. — 1993. — т. 70, № 8. — с. 1085.
218. *Mareev E., Aleshkevich V.* [и др.]. Anomalous behavior of nonlinear refractive indexes of CO₂ and Xe in supercritical states // Optics express. — 2018. — т. 26, № 10. — с. 13229—13238.
 219. *Peng Y., Qi B.* [и др.]. Frequency-dependent absorbance of broadband terahertz wave in dense plasma sheet // Applied Physics B. — 2018. — т. 124, № 5. — с. 1—5.
 220. *Talebpour A., Abdel-Fattah M.* [и др.]. Spectroscopy of the gases interacting with intense femtosecond laser pulses // laser physics-lawrence. — 2001. — т. 11, № 1. — с. 68—76.
 221. *Théberge F., Liu W.* [и др.]. Plasma density inside a femtosecond laser filament in air: Strong dependence on external focusing // Physical Review E. — 2006. — т. 74, № 3. — с. 036406.
 222. *Houard A., Liu Y.* [и др.]. Calorimetric detection of the conical terahertz radiation from femtosecond laser filaments in air // Applied Physics Letters. — 2007. — т. 91, № 24. — с. 241105.
 223. *Amico C., Houard A.* [и др.]. Forward THz radiation emission by femtosecond filamentation in gases: theory and experiment // New Journal of Physics. — 2008. — т. 10, № 1. — с. 013015.
 224. *Zheng J., Yu C.* [и др.]. Cherenkov radiation generated by a beam of electrons revisited // Physics of plasmas. — 2005. — т. 12, № 9. — с. 093105.
 225. *Gorbunov L. M., Mora P.* [и др.]. Quasistatic magnetic field generated by a short laser pulse in an underdense plasma // Physics of Plasmas. — 1997. — т. 4, № 12. — с. 4358—4368.
 226. *Wu H.-C., Meyer-ter-Vehn J.* [и др.]. Terahertz radiation from a laser plasma filament // Physical Review E. — 2011. — т. 83, № 3. — с. 036407.
 227. *Jackson J. D.* Classical electrodynamics. — 1999.

Список сокращений и условных обозначений

FWHM	full width half maximum, полная ширина на половине высоты
ТГц	терагерцовый
ЖА	жидкий азот
ГВГ	генерация второй гармоники
ФЭУ	фото-электронный умножитель
ИТС	импульсная терагерцовая спектроскопия
ВВО	нелинейный кристалл β -бората бария

Список иллюстраций

1.1	Схема экспериментальной установки для исследования ТГц генерации в жидкостях.	26
1.2	Кювета для измерения спектральных свойств ЖА.	29
1.3	Спектр показателя преломления и поглощения для ЖА в ТГц диапазоне частот, полученный методом THz-TDS	30
1.4	Зависимость энергии терагерцового импульса от положения перегородки h по отношению к уровню поверхности ЖА.	31
1.5	Зависимость затухания терагерцового сигнала в ЖА от его первоначальной мощности.	32
1.6	Излучаемая ТГц энергия в зависимости от энергии лазерных импульсов	33
1.7	Влияние длительности импульса на выход ТГц излучения для двух типов лазерных систем.	34
1.8	Зависимость ТГц сигнала от временной задержки между лазерными импульсами.	36
1.9	Схематическое представление влияния амбиполярного поля на ТГц сигнал.	38
1.10	Зависимость эффективности ТГц генерации от угла поворота нелинейного кристалла.	39
1.11	Состояния поляризации импульсов накачки и ТГц излучения для точек максимальной эффективности преобразования.	40
1.12	Система координат для поляризационных измерений. Обозначения углов см. в тексте.	41
1.13	Вращение эллипса поляризации ТГц излучения после распространения через ЖА.	42

2.1	Схема экспериментальной установки для исследования ТГц генерации при взаимодействии лазерного излучения с одиночными микрокаплями.	56
2.2	Фотография экспериментальной установки для генерации ТГц излучения в микрокаплях.	57
2.3	Микрофотографии капель, выполненные методом тенеграфии. . .	58
2.4	Варианты оптического возбуждения капельной мишени.	59
2.5	Амплитуда ТГц сигнала для различных задержек между лазерными импульсами.	62
2.6	Зависимость ТГц сигнала от задержки между импульсами. Схема Б.	63
2.7	Зависимость интенсивности ТГц сигнала от энергии лазерных импульсов, задержанных относительно друг друга.	64
2.8	Зависимость интенсивности ТГц сигнала от длительности лазерного импульса для микрокапельных мишеней.	65
2.9	Полная ТГц мощность и $\epsilon^2 = b^2/a^2$ в зависимости от угла поляризации лазерного излучения ψ	66
2.10	ТГц мощность в зависимости от угла поворота ТГц поляризатора. .	67
2.11	Схема используемой системы координат и углов.	68
2.12	Спектр ТГц излучения.	69
2.13	Теоретические расчёты суммарного поглощения (а) в зависимости от угла между вектором электрического поля оптического импульса и горизонтальной плоскостью и пример распределения поглощенной энергии по поверхности капли (б) для нулевого угла. . . .	71
2.14	Схематическая иллюстрация стадий взаимодействия капли с субпикосекундными лазерными импульсами.	72
2.15	Численное моделирование плотности и электронной температуры вблизи поверхности капли.	73
3.1	Экспериментальная установка для изучения ТГц генерации в газовой-кластерных струях.	79
3.2	ТГц и рентгеновский сигнал из струи аргоновых кластеров как функция длительности лазерных импульсов.	81

3.3	ТГц сигнал от струи аргоновых кластеров как функция длительности лазерных импульсов при различных энергиях импульсов.	82
3.4	ТГц сигнал от струи аргоновых кластеров как функция длительности лазерных импульсов для двухцветной накачки.	83
3.5	Зависимость ТГц сигнала от энергии накачки для одноцветной (а) и двухцветной (б) схем возбуждения.	85
4.1	Кюветы, использованные для проведения экспериментов по ТГц генерации в газах при различном давлении.	95
4.2	Экспериментальная установка, использованная в исследованиях по ТГц генерации при изменении давления газа.	96
4.3	Зависимость ТГц сигнала от задержки между оптическими импульсами накачки.	97
4.4	Фотография экспериментальной установки для регистрации зависимости ТГц сигнала от давления газа.	98
4.5	Спектральный состав ТГц сигнала при генерации в воздухе и углекислом газе.	99
4.6	Зависимость ТГц сигнала от давления для различных газов.	100
4.7	Схема экспериментальной установки, используемой для изучения угловой диаграммы направленности излучения (вид сверху).	102
4.8	Фотография экспериментальной установки для регистрации углового распределения ТГц излучения при генерации в воздухе.	103
4.9	Фильтры, использованные для выделения ТГц излучения.	104
4.10	(а) Схема, показывающая снижение эффективности светосбора ТГц для широких конусов излучения. (б) Значения поправочного коэффициента для используемых экспериментальных параметров.	106
4.11	Угловые зависимости энергии ТГц излучения для сферической линзы с фокусным расстоянием 7 мм при разных энергиях падающего излучения.	106
4.12	Расходимость ТГц излучения (половина угла раскрытия конуса в зависимости от энергии оптического излучения, сферическая линза с $F=7$ мм.	107

4.13	Зависимость энергии ТГц излучения в направлении максимума от энергии оптического излучения, сферическая линза с $F=7$ мм. . . .	107
4.14	Измерения углового распределения ТГц излучения $dW/d\Omega$ для разных условий фокусировки и теоретическое аппроксимация. . . .	108
4.15	ПЗС-изображения фотоиндуцированной флуоресценции плазмы (вид сбоку), полученные при разных условиях фокусировки. . . .	109
4.16	Зависимость угла θ_{max} , для которого наблюдается максимум интенсивности ТГц излучения от фокусного расстояния.	110
4.17	Зависимость эффективности оптико-ТГц преобразования и различных вкладов в ТГц сигнал от фокусного расстояния линз. . . .	111
4.18	Зависимости энергии прошедшего ТГц излучения от угла поворота ТГц анализатора для линзы с $F=8$ мм.	113
4.19	(а) Усреднённая интерферограмма излучения. Одноцветная на- качка, линза $F=7$ мм, угол $\theta=20^\circ$. (б) Спектр сигнала.	114
4.20	Угловые диаграммы $dW/d\Omega$, нормированные по своим миниму- мам для $a = c\tau$ и различных соотношений $L/c\tau$	115
4.21	Сравнение экспериментально измеренной полной энергии dW , из- лучаемой в телесный угол $d\Omega$ с численной аппроксимацией. . . .	117
A.1	Характерная функция отклика ТГц детекторов	153
A.2	Схема интерферометра Майкельсона.	154
A.3	Схема ИТС.	155

Список таблиц

0.1	Характерные интенсивности ионизации различных веществ	7
0.2	Максимальная интенсивность лазерного излучения	8
0.3	Различные среды ТГц генерации	13
4.1	Экспериментальные и аппроксимированные параметры областей плазмы; значения L и a нормированы по длине лазерного импульса $\sigma\tau = 39$ мкм.	116
A.1	Лазерные системы.	151
A.2	Детекторы ТГц излучения	153

Приложения

Приложение А

Экспериментальное оборудование и методы, использованные в работе

А.1 Лазерные источники

Экспериментальные исследования по оптико-ТГц преобразованию в данной работе были выполнены с использованием импульсного лазерного излучения суб-пикосекундной длительности от нескольких лазерных систем. Все лазерные системы были построены на титан-сапфировых лазерах и усилителях с центральной длиной волны $\lambda \approx 800$ нм, но имели различную длительность импульсов, частоту их повторения и энергию в импульсе. Основные параметры использованных систем приведены в таблице А.1. В столбце $\Delta\tau$ приведена длительность спектрально-ограниченного импульса для данной лазерной системы (полная ширина на половине высоты, FWHM), F_{rep} - частота повторения импульсов, ΔE - максимальная энергия импульса.

Таблица А.1. Лазерные системы.

N	Название	$\Delta\tau$, фс	F_{rep} , Гц	ΔE , мДж	λ , нм
1	Spectra Physics Spitfire MSU	120	1000	2.5	797
2	Spectra Physics Spitfire IOFAN	30	1000	2.5	797
3	MSU CPA	50	10	30	810
4	Coherent Legend Elite Duo	90	1000	8.5	800

Все системы имели возможность внесения линейной фазовой модуляции в лазерный импульс (чирпирования) путём перестройки компрессора. При этом менялась длительность лазерного импульса, однако его энергия сохранялась неизменной. Длительность импульсов измерялась автокорреляционным ме-

тодом, автокоррелятор был установлен за одним из заводящих зеркал оптической системы и позволял контролировать параметры лазерной системы в процессе эксперимента.

Для фокусировки оптического излучения в вещество применялись двояковыпуклые линзы из ультрафиолетового кварца (кроме ряда экспериментов с микрофокусировкой) во избежание оптического пробоя оптики излучением второй гармоники. Для заведения оптического излучения применялись зеркала с диэлектрическим покрытием, что позволяло минимизировать потери лазерной энергии в установках.

А.2 Детекторы ТГц излучения

В работе использовались как когерентные детекторы ТГц излучения, основанные на ИТС, так и некогерентные, регистрирующие интегральную по спектру мощность терагерцового излучения, попавшего во входное окно детектора. Основные характеристики некогерентных детекторов приведены в таблице А.2. Ключевой параметр такого рода устройств - NEP - показывает минимальную мощность сигнала, которую может зарегистрировать детектор при ширине частотного диапазона в 1 Гц, при этом соотношение сигнал/шум будет равно единице. Следует отметить, что в таблице величина NEP приведена к ширине спектра электрического сигнала на выходе детектора. Характеристика P_{max} показывает максимальную мощность, которую может измерить детектор до вхождения в режим насыщения, F_{rep} - максимально допустимую частоту повторения лазерных импульсов, а Ω_{THz} - диапазон ТГц частот, в которых чувствительность детектора больше 0,5 от максимально достижимой.

В работе использовалось два метода регистрации электрического сигнала на выходе детекторов. При малой частоте повторения лазерных импульсов (< 10 Гц) регистрировался временной профиль каждого импульса при помощи АЦП. Поскольку время отклика детекторов много больше длительности лазерных и ТГц импульсов, отклик детектора на одиночный импульс имеет характерную форму, представленную на рис. А.1. Проводилось интегрирование данной функции отклика и её пересчёт в суммарный ТГц сигнал.

Таблица А.2. Детекторы ТГц излучения

N	Название	NEP, пВт/Гц ^{0.5}	P_{max} , Вт	F_{rep} , Гц	Ω_{THz} , ТГц
1	Ячейка Голея GC-1 (TYDEX)	$1,12 \cdot 10^2$	10^{-5}	20	$0,1 \div 6$
2	Болометр с криогенным охлаждением (Infrared Laboratories)	$1,22 \cdot 10^{-1}$	$2 \cdot 10^{-8}$	1000	$0,1 \div 3$
3	Болометр (QMC)	5,7	$1 \cdot 10^{-8}$	1000	$0,1 \div 18$

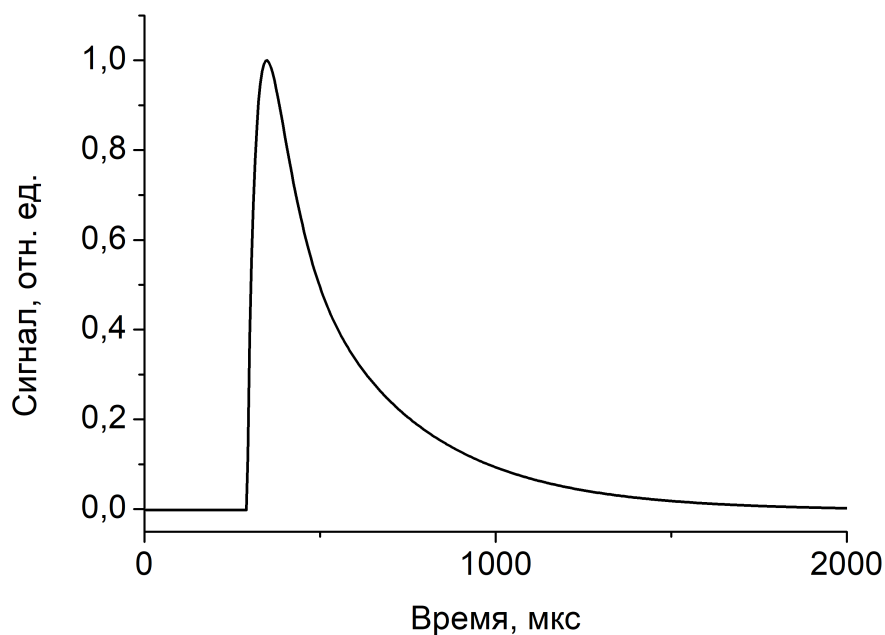
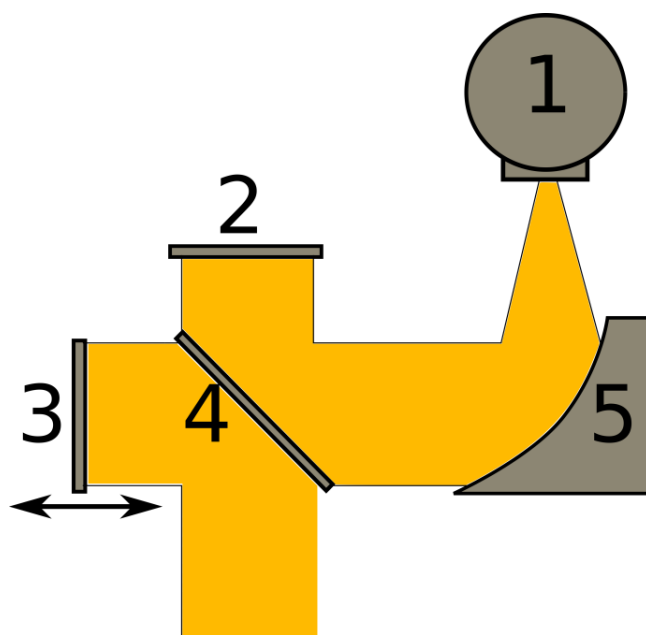


Рисунок А.1. Характерная функция отклика ТГц детекторов (временной профиль электрического сигнала на выходе детектора при воздействии одиночным ТГц импульсом).

При больших частотах повторения импульсов F_{rep} использовались синхронные детекторы (типа SR830 (Stanford Research) или 7230 (Ametec). Это позволяло существенно улучшать отношение сигнал/шум и эффективно подавлять электрические наводки. В качестве частоты модуляции сигнала использовалась или частота следования лазерных импульсов F_{rep} (в том случае, если детектор мог работать с такой частотой повторения), или же в лазерный пучок устанавливался дополнительный механический обтюратор, дополнительно модулирующий последовательность лазерных импульсов.



1 - детектор ТГц излучения, 2 - неподвижное зеркало, 3 - подвижное зеркало, 4 - делитель пучка, 5 - фокусирующее параболическое зеркало.

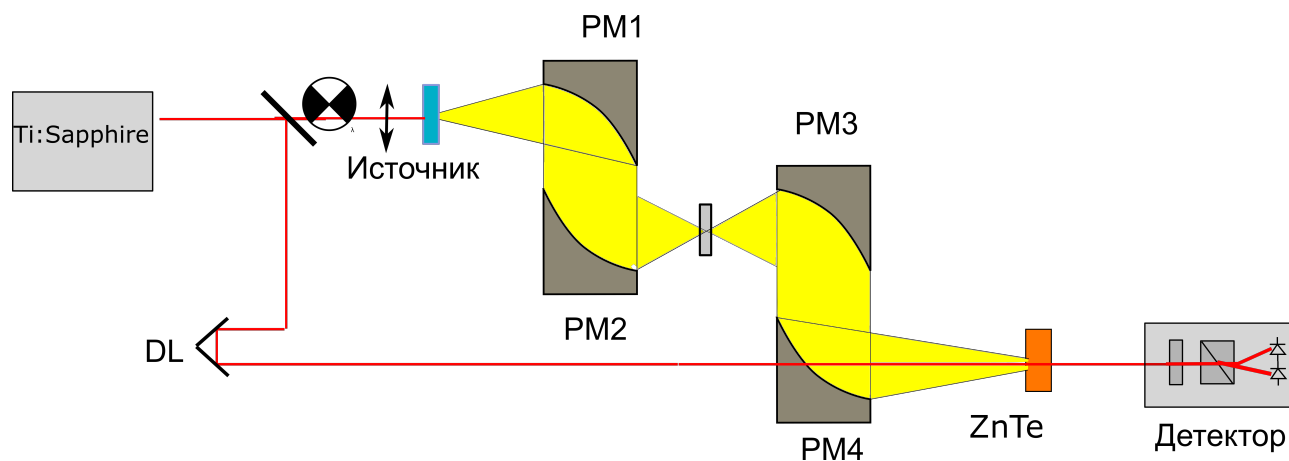
Рисунок А.2. Схема интерферометра Майкельсона.

А.3 Измерение спектрального состава ТГц излучения

Интерферометр Майкельсона

Для измерения спектра ТГц сигнала в работе использовался интерферометр Майкельсона, который был собран на двух ортогонально скрепленных оптических рельсах. Как видно из рис. А.2, коллимированное ТГц излучение, попадающее на вход интерферометра, разделяется на два пучка равной интенсивности при помощи делительной пластинки. Последняя представляет собой специализированный делитель толщиной 3.5 мм из высокоомного кремния (Tydex HRFZ-Si) с пропусканием 54% и с апертурой 50 мм. После отражения от плоских металлизированных зеркал, одно из которых расположено на моторизованном трансляторе 8MT193-100 (изготовитель Standa), два пучка собираются на выходе интерферометра и фокусируются на детектор. Изменяя положение подвижного зеркала, можно менять задержку между импульсами и измерять интерферограмму.

Фурье-преобразование данного временного профиля позволяет получить спектр излучения источника. При этом шаг линии задержки определяет мак-



PM - внеосевые параболические зеркала, DL - линия задержки, ZnTe - электрооптический кристалл, детектор - балансный детектор.

Рисунок А.3. Типичная схема ИТС с электрооптическим детектированием.

симальную регистрируемую частоту ТГц излучения, а диапазон перемещения влияет на спектральное разрешение. В экспериментах был использован шаг линейного транслятора 2.5 мкм, что соответствует задержке 17 фс и максимальной регистрируемой частоте 29 ТГц. Для устранения влияния медленного дрейфа мощности лазерного источника применялось усреднения нескольких временных профилей.

Импульсная ТГц спектроскопия

Вторым методом измерения спектрального состава ТГц излучения, использованным в работе, является Импульсный терагерцовый спектрометр (ИТС). Он позволяет регистрировать профиль электрического поля ТГц импульса в зависимости от времени. Фурье-преобразование такого профиля даёт информацию как об амплитуде спектра сигнала, так и об его фазе.

Типичная схема ИТС приведена на рис. А.3. Лазерные импульсы разделяются на две части при помощи делительной пластинки, и первая (генерационная) часть импульса преобразуется в ТГц излучение. В то же время, вторая (детектирующая) часть проходит через линию задержки и совмещается с ТГц импульсом на электрооптическом кристалле. ТГц поле наводит двулучепреломление в кристалле, что влияет на детектирующий импульс. Изменение поляризации детектирующего импульса производится при помощи баланс-

ного детектора. Таким образом, меняя задержку между импульсами можно зарегистрировать профиль ТГц импульса с разрешением по времени, равным длительности оптического импульса, который значительно короче ТГц.

Важным преимуществом ИТС является когерентный метод регистрации сигнала. Таким образом, в случае мощного некогерентного сигнала, который имеет гораздо большую длительность, чем когерентное импульсное ТГц излучение, его вклад в регистрируемый временной профиль будет несущественным, и он не будет влиять на вычисляемый спектр сигнала.

Приложение Б

Функция отклика

Предположим, что теория позволяет вычислить угловое распределение ТГц излучения в виде

$$\frac{dW}{d\Omega} = f(\theta), \quad (\text{Б.1})$$

где $f(\theta)$ задается, например, правой частью уравнения В.14. Тогда угловое распределение, которое учитывает инструментальную функция отклика $h(\theta, \theta')$ определяется

$$\left(\frac{dW}{d\Omega}\right)_h = \int_0^\pi h(\theta, \theta') f(\theta') d\theta', \quad (\text{Б.2})$$

Чтобы найти $h(\theta, \theta')$, необходимо принять во внимание, что измеренный сигнал из конусообразного углового распределения собирается с помощью апертуры первого параболического зеркала РМ1. Здесь учитывается, что каждая точка апертуры параболического зеркала РМ1 соответствует одной точке круглого «окна детектора», расположенного на расстоянии r (равно фокусному расстоянию РМ1). Запишем декартовы координаты x, y, z произвольной точки на окне детектора через сферические координаты r, α, θ с началом координат в точке фокусировки лазера:

$$\{x, y, z\} = \{r \sin \theta \cos \alpha, r \sin \theta \sin \alpha, r \cos \theta\}. \quad (\text{Б.3})$$

Квадрат расстояния между двумя такими точками (на окне детектора) с координатами r, α, θ и r, α', θ' равен $l^2 = 2r^2[1 - \cos \theta \cos \theta' - \sin \theta \sin \theta' \cos(\alpha - \alpha')]$, тогда

$$\left(\frac{dW}{d\Omega}\right)_h = \int_0^\pi \sin \theta' d\theta' \int_{-\pi}^\pi d\alpha' h_2(\{\theta, \alpha\}, \{\theta', \alpha'\}) f(\theta'), \quad (\text{Б.4})$$

где h_2 - двумерная инструментальная функция отклика. Аппроксимируем её гауссовым распределением

$$h_2(\{\theta, \alpha\}, \{\theta', \alpha'\}) = \frac{A}{\pi \Delta \theta^2} \exp\left(-\frac{l^2}{r^2 \Delta \theta^2}\right). \quad (\text{Б.5})$$

Интегрирование по α в уравнении (Б.4) можно сделать в замкнутой форме. Сравнивая результат с формулой (Б.2) находим одномерную инструментальную функция отклика:

$$h(\theta, \theta') = \frac{2A \sin(\theta')}{\Delta\theta^2} e^{-2(1-\cos\theta\cos\theta')/\Delta\theta^2} I_0\left(\frac{2\sin\theta\sin\theta'}{\Delta\theta^2}\right), \quad (\text{Б.6})$$

где I_0 обозначает функцию Бесселя. В случае $2\sin\theta\sin\theta' \gg \Delta\theta^2$ это выражение преобразуется в

$$h(\theta, \theta') = \frac{A\sqrt{\sin(\theta')}}{\sqrt{\pi}\Delta\theta\sqrt{\sin(\theta)}} e^{-4\sin^2(\frac{\theta-\theta'}{2})/\Delta\theta^2}. \quad (\text{Б.7})$$

Константа A определяется из условия $\int_0^\pi d\theta' h(\theta, \theta') = 1$ и равна $A = \frac{1}{1-e^{-4/\Delta\theta^2}} \approx 1$. Можно взять $\Delta\theta = 6^\circ$, который обеспечивает наилучшее численное соответствие угловых диаграмм в случае протяженных плазменных областей.

Приложение В

Модель ТГц генерации в микроплазме

Для расширения существующих моделей можно предположить, что плотность тока $\mathbf{j} = \mathbf{j}(x, t)$, индуцированная в филаменте импульсом лазера накачки уже вычислена как решение уравнений в работах [225; 226] или оценена с помощью РС кода. Преобразование Фурье $\mathbf{j}_\omega = \int_{-\infty}^{+\infty} \mathbf{j}(x, t) e^{i\omega t} dt$ для тока связано с излучаемым магнитным полем в волновой зоне через интеграл

$$\mathbf{B}_\omega(\mathbf{r}) = ik\mathbf{n} \frac{e^{ikr}}{cr} \int d^3x' \mathbf{j}_\omega(\mathbf{x}') e^{-ik\mathbf{n}\mathbf{x}'}, \quad (\text{B.8})$$

где $\mathbf{n} = \mathbf{r}/r$ и $k = \omega/c$ (см. уравнения (9.13) и (9.39) в работе [227]). Интеграл может быть оценен в аналитической форме для двух моделей профилей плотности тока, представленных ниже. Разница между двумя моделями будет уточнена ниже. Для простоты предположим, что вектор $\mathbf{j}$ имеет только z -компоненты и рассмотрим два профиля, а именно:

$$j_z^{(1)}(x, y, z, t) = j_1 \frac{z - ct}{c\tau} \exp\left(-\frac{x^2 + y^2}{a^2} - \frac{(z - ct)^2}{c^2\tau^2} - \frac{z^2}{L^2}\right), \quad (\text{B.9})$$

$$j_z^{(2)}(x, y, z, t) = j_2 \frac{\partial}{\partial z} \left[(z - ct) \exp\left(-\frac{x^2 + y^2}{a^2} - \frac{(z - ct)^2}{c^2\tau^2} - \frac{z^2}{L^2}\right) \right], \quad (\text{B.10})$$

Функции j_z^1 и j_z^2 моделируют лазерный импульс накачки с радиусом и длиной $c\tau$, распространяющаяся сквозь область плазмы с длиной L ; амплитуды j_1 и j_2 , а также длины L и a варьируются ниже при нахождении численной аппроксимации, показанной на рис. 4.14. Для обоснования этого подхода можно отметить, что авторы [213] также предположили, что ТГц излучение происходит от продольного электронного тока, в то время как часто обсуждаемые кильватерные колебания на плазменной частоте не вносят значительного вклада в спектр ТГц излучения. Пространственные профили токов, заданных уравнениями В.9, В.10 соответствуют найденным в предварительном численном моделировании.

Пондеромоторная сила лазерного импульса накачки создает продольную структуру тока, которая распространяется примерно со скоростью света [213;

223]. Интерференция излучения из разных точек вдоль оси распространения приводит к конической эмиссии. Этот механизм ТГц излучения часто называют черенковским, хотя для классического черенковского излучения нужен источник со сверхсветовой скоростью, что не выполняется в данном случае.

Принципиальное отличие профиля, заданного формулой В.9 от В.10 характеризуется значением $\int_{-\infty}^{+\infty} j_z dz$, которое отлично от нуля в случае дипольного типа распределения зарядов в среде и равно нулю в случае более высоких порядков распределения заряда. Состояние $\int j(x, t) d^3z$, что верно для $j_z^{(2)}$, но не для $j_z^{(1)}$, означает, что дипольный момент системы постоянно равен нулю. Таким образом, $j_z^{(1)}$ ответственен за дипольное излучение, тогда как $j_z^{(2)}$ - за квадрупольный. Тип излучения также видно из соответствующих выражений для магнитного поля, излучаемого токами $j_z^{(1)}$ и $j_z^{(2)}$ и наблюдаемого в точке с координатами r во время t . Из-за осевой симметрии магнитное поле имеет только азимутальную α -составляющую:

$$B - \alpha^1 = \frac{\pi^{1/2}}{c^2 r} I_1 L \Delta \omega^3 \tau^2 (2\Delta \omega^2 t'^2 - 1) e^{-\Delta \omega^2 t'^2} \sin(\theta), \quad (\text{В.11})$$

$$B - \alpha^2 = \frac{\pi^{1/2}}{c^2 r} I_2 L \Delta \omega^4 \tau^3 (2\Delta \omega^2 t'^2 - 3) \Delta \omega t' e^{-\Delta \omega^2 t'^2} \sin(2\theta), \quad (\text{В.12})$$

Здесь $I_1 = \pi a^2 j_1$ и $I_2 = \pi a^2 j_2$ - полные токи, $t' = t - r/c$ - запаздывающее время,

$$\Delta \omega = \frac{c}{\sqrt{c^2 \tau^2 + a^2 \sin^2 \theta + L^2 (1 - \cos \theta)^2}} \quad (\text{В.13})$$

- спектральная ширина излучения, а θ - угол между осью филамента и направлением на детектор излучения. В случае короткого филамента ($L \rightarrow 0$) дипольное поле В.11 зависит от θ как $\sin(\theta)$, тогда как квадрупольное поле В.12 пропорционально $\sin(2\theta)$. Отметим, что частотный спектр поля определяется длительностью импульса накачки τ , длиной филамента L и углом наблюдения θ . Длительность излучаемого ТГц импульса приблизительно оценивается как $T = \frac{1}{\Delta \omega}$. В прямом направлении ($\theta = 0$) оно совпадает с длительностью импульса лазера накачки τ . Оно достигает максимального значения $T \approx L/c$ для импульса, излучаемого под прямым углом к оси филаменту.

Общая энергия $\frac{dW}{d\Omega} = r^2 \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{B^2}{4\pi} dt$, излучаемая в заданный телесный угол $d\Omega = \sin\theta d\theta d\alpha$ также может быть рассчитан в замкнутой форме. Как видно из результата расчета

$$\frac{dW}{d\Omega} = \frac{3\pi^{3/2}}{16\sqrt{2}} c^2 L^2 \Delta\omega^5 \tau^4 [I_1^2 + 5I_2^2 \Delta\omega^2 \tau^2 \cos^2\theta] \sin^2\theta, \quad (\text{B.14})$$

ток $j_z^{(2)}$ не интерферирует с $j_z^{(1)}$ (поскольку нет члена, пропорционального $I_1 I_2$). Мгновенное значение B^2 содержит произведение $I_1 I_2$, но оно исчезает после интеграции по времени.

Приложение Г

Моделирование преобразования состояния поляризации ТГц импульса при прохождении нелинейной среды

Поляризацию среды $P_i(\Omega)$, наведённую импульсами ТГц частоты, а также первой и второй гармоник лазерного излучения в нелинейной среде, можно записать как

$$P_i(\Omega) = P_i^\omega + P_i^{2\omega} = \chi_{ijkl}^{(3)}(\Omega; \Omega, \omega, -\omega) E_j(\Omega) E_k(\omega) E_l^*(\omega) + \chi_{ijkl}^{(3)}(\Omega; \Omega, 2\omega, -2\omega) E_j(\Omega) E_k(2\omega) E_l^*(2\omega) = P_i^{(1)} + P_i^{(2)}. \quad (\text{Г.15})$$

Ввиду малой интенсивности ТГц излучения относительно интенсивностей оптических, самовоздействием на ТГц частоте и его влиянием на распространение оптические импульсы можно пренебречь. Можно записать тензоры нелинейности для изотропной среды как:

$$\chi_{ijkl}^{(3)}(\Omega; \Omega, \omega, -\omega) = \chi_1 \delta_{ij} \delta_{kl} + \chi_2 \delta_{ik} \delta_{jl} + \chi_3 \delta_{il} \delta_{jk}, \quad (\text{Г.16})$$

$$\chi_{ijkl}^{(3)}(\Omega; \Omega, 2\omega, -2\omega) = \chi_1 \delta_{ij} \delta_{kl} + \chi_2 \delta_{ik} \delta_{jl} + \chi_3 \delta_{il} \delta_{jk}, \quad (\text{Г.17})$$

где $\chi_{1...6}$ - реальные числа. Тогда, подставляя Г.16 и Г.17 в Г.15, получаем:

$$E_x(n\omega) = \frac{\sqrt{I_{n\omega}}}{2} [(1 - M_{n\omega})^{0.5} \exp(-i\Psi_{n\omega}) + (1 + M_{n\omega})^{0.5} \exp(i\Psi_{n\omega})], \quad (\text{Г.18})$$

$$E_y(n\omega) = \frac{\sqrt{I_{n\omega}}}{2i} [-(1 - M_{n\omega})^{0.5} \exp(-i\Psi_{n\omega}) + (1 + M_{n\omega})^{0.5} \exp(i\Psi_{n\omega})], \quad (\text{Г.19})$$

где

$$M_{n\omega} = \frac{|E_+(n\omega)|^2 - |E_-(n\omega)|^2}{|E_+(n\omega)|^2 + |E_-(n\omega)|^2} \quad (\text{Г.20})$$

-степень эллиптичности, а $\Psi_{n\omega} = 0.5 \arg(E_+(n\omega) E_-^*(n\omega))$ - углы поворота главной оси эллипса поляризации. Тогда можно записать систему линейных

уравнений для циркулярно-поляризованных компонентов электрического поля сигнальной волны:

$$\frac{\partial E_{\pm}(\Omega)}{\partial z} \approx -\frac{2\pi i \Omega^2}{c^2 k_{THz}} [P_{\pm}^{(1)}(\Omega) + P_{\pm}^{(2)}(\Omega)], \quad (\Gamma.21)$$

где

$$P_{\pm}^{(1)}(\Omega) = \frac{I_{\omega}}{2} [(2\chi_1 + \chi_2 + \chi_3) + (\chi_2 - \chi_3)M_{\omega}] E_{\pm}(\Omega) + (\chi_2 + \chi_3)(1 - M_{\omega}^2)^{0.5} \exp(\pm 2i\Psi_{\omega}) E_{\mp}(\Omega), \quad (\Gamma.22)$$

$$P_{\pm}^{(2)}(\Omega) = \frac{I_{2\omega}}{2} [(2\chi_4 + \chi_5 + \chi_6) + (\chi_5 - \chi_6)M_{2\omega}] E_{\pm}(\Omega) + (\chi_5 + \chi_6)(1 - M_{2\omega}^2)^{0.5} \exp(\pm 2i\Psi_{2\omega}) E_{\mp}(\Omega). \quad (\Gamma.23)$$

Решая эту систему, можно получить значения эллиптичности и угла поворота главной оси эллипса поляризации в точке регистрации:

$$M_{\Omega}(L) = M_0 \cos(2\mu L) + (1 - M_0^2)^{0.5} \sin(2\mu L) \cos(2\Psi_0 + \nu), \quad (\Gamma.24)$$

$$\Psi_{\Omega}(L) = 0.5 \arctg \frac{\sin(\Psi_0 - \alpha L) - \eta \tg(\mu L) \sin(\Psi_0 + \alpha L + \nu)}{\cos(\Psi_0 - \alpha L) + \eta \tg(\mu L) \cos(\Psi_0 + \alpha L + \nu)} + 0.5 \arctg \frac{\eta \sin(\Psi_0 + \alpha L) + \tg(\mu L) \sin(\Psi_0 - \alpha L + \nu)}{\eta \cos(\Psi_0 + \alpha L) - \tg(\mu L) \cos(\Psi_0 - \alpha L + \nu)}, \quad (\Gamma.25)$$

где введены обозначения: $M_0 = M_{\Omega}(z = 0)$, $\Psi_0 = \Psi_{\Omega}(z = 0)$, $\eta = (1 - M_0^2)^{0.5} / (1 + M_0^2)^{0.5}$,

$$\alpha = \frac{\pi \Omega^2}{c^2 k_{THz}} [(2\chi_1 + \chi_2 + \chi_3)I_{\omega} + (\chi_2 - \chi_3)M_{\omega}I_{\omega} + (2\chi_4 + \chi_5 + \chi_6)I_{2\omega} + (\chi_5 - \chi_6)M_{2\omega}I_{2\omega}], \quad (\Gamma.26)$$

$$\mu = \frac{\pi \Omega^2}{c^2 k_{THz}} [(\chi_2 + \chi_3)^2 (1 - M_{\Omega}^2) I_{\omega}^2 + (\chi_5 + \chi_6)^2 (1 - M_{2\omega}^2)^{0.5} I_{\omega} I_{2\omega} \cos(2(\Psi_{2\omega} - \Psi_{\omega}))]^{0.5}, \quad (\Gamma.27)$$

$$\nu = \arctg\left(\frac{I_\omega \cos(2\Psi_\omega) + \beta I_{2\omega} \cos(2\Psi_{2\omega})}{I_\omega \sin(2\Psi_\omega) + \beta I_{2\omega} \sin(2\Psi_{2\omega})}\right), \quad (\Gamma.28)$$

$$\beta = \frac{(\chi_5 + \chi_6)(1 - M_{2\omega}^2)^{0.5}}{(\chi_2 + \chi_3)(1 - M_\omega^2)^{0.5}} \quad (\Gamma.29)$$