

# Генерация перестраиваемого мощного малопериодного терагерцового излучения в органических кристаллах при накачке мультигигаваттными чирпированными лазерными импульсами ближнего ИК диапазона на длине волны 1.24 мкм

Б. В. Румянцев, А. В. Пушкин, Д. З. Сулейманова, Н. А. Жидовцев, Ф. В. Потемкин<sup>1)</sup>

Физический факультет, МГУ имени М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 17 февраля 2023 г.

После переработки 4 марта 2023 г.

Принята к публикации 11 марта 2023 г.

В работе показана возможность управления спектром мощного малопериодного терагерцового излучения, генерируемого в органическом кристалле DAST, путем чирпирования излучения накачки, в качестве которого использовалось фемтосекундное лазерное излучение системы на кристалле хром-форстерита с длиной волны 1.24 мкм. Установлено, что увеличение линейного чирпа генерирующего излучения приводит к обужению спектра терагерцового излучения и его смещению в низкочастотную область. Проведенное моделирование процесса генерации терагерцового излучения в рамках модели трехволнового смешения показывает, что в основе данного эффекта лежит изменение ширины фазового синхронизма вырожденного процесса генерации разностной частоты терагерцового диапазона. Также проведен сравнительный анализ спектров терагерцового излучения, генерируемого в органических кристаллах DAST, DSTMS, OH1 и BNA, свидетельствующий о возможности более грубого управления спектрально-временными свойствами терагерцового излучения путем выбора требуемого кристалла. Продемонстрированный подход к управлению спектром терагерцового излучения путем чирпирования импульса накачки закладывает основу для проведения спектроскопических исследований с использованием мощного терагерцового излучения с управляемыми спектрально-временными свойствами.

DOI: 10.31857/S1234567823080025, EDN: voryue

**Введение.** Терагерцовое (ТГц) излучение (0.1–30 ТГц) находится между микроволновым и инфракрасным диапазонами частот электромагнитных волн, с энергиями фотонов, близкими к уровню Ферми, и пиковыми значениями напряженности электрического и магнитного поля около или выше МВ/см и Тесла соответственно [1, 2]. Кроме того, его пикосекундное/субпикосекундное временное разрешение определяет применение такого излучения в рамках время-разрешенной спектроскопии и имаджинге. В результате ТГц излучение может рассматриваться как уникальный источник “холодного света”, открывая новую область исследований взаимодействия света с веществом.

ТГц частоты соответствуют собственным фоновым и магнонным колебаниям большого числа сильно коррелированных электронных и магнитных систем. Таким образом, интенсивные ТГц поля на определенной частоте могут когерентно и резонансно передавать энергию колебаниям кристаллической

решетки материала, возбуждая тем самым новые электронные конфигурации и открывая возможности для получения новых состояний вещества. Это породило новую область исследований, известную как “*lighthwave quantum electronics*”, которая ориентирована на приложения в области квантовой обработки информации. Кроме того, ТГц импульсы могут ориентировать молекулы и, следовательно, регулировать большое количество каталитических процессов в химических технологиях [3]. Импульсы ТГц диапазона с сильным полем могут переворачивать спин электрона и обеспечивать нелинейное управление спином, закладывая основу для будущих сверхбыстрых устройств спинтроники [4]. В сочетании со сканирующей зондовой микроскопией импульсы сильного поля ТГц излучения могут переворачивать туннельный ток на кончике сканирующего туннельного микроскопа, позволяя преодолевать дифракционный предел световой волны для ТГц диапазона и предоставляя новый мощный инструмент для управления состоянием новых наноразмерных материалов [5, 6]. ТГц-импульсы сильного поля обладают способ-

<sup>1)</sup>e-mail: potemkin@physics.msu.ru

ностью ускорять, сжимать и управлять параметрами электронных сгустков в нескольких измерениях, что, по прогнозам, приведет к разработке настольных миниатюрных ТГц-ускорителей для использования в миниатюрных аттосекундных источниках рентгеновского излучения [7, 8]. Кроме того, интенсивное ТГц излучение используется для установления протоколов биологической безопасности в ТГц диапазоне, что особенно актуально в биологических приложениях [9].

Взаимодействие лазерного излучения с веществом на протяжении многих лет является определяющей темой в лазерной физике и нелинейной оптике. На более низких частотах большинство нелинейных явлений в терагерцовом режиме представляют собой оптические отклики, такие как нелинейное пропускание, отражение и поглощение в материалах, возбуждаемых импульсами сильного поля в терагерцовом диапазоне частот. В этом смысле нелинейные ТГц исследования мало отличаются от исследований, проводимых в оптическом диапазоне частот. Однако, в отличие от оптического диапазона, где нелинейные явления преимущественно связаны с распределением заряда (поляризацией), для ТГц диапазона по причине большей длительности одного периода колебания поляризация среды уже не является определяющим фактором. Из-за того, что определенные частоты ТГц излучения способны управлять низкочастотными движениями, такими как вращение молекул и колебания кристаллической решетки, посредством взаимодействия с ионными, электронными или спиновыми степенями свободы, ТГц излучение может резонансно возбуждать эти специфические моды в условиях возбуждения сильным ТГц полем. Кроме того, когда пиковая амплитуда ТГц поля на частоте 1 ТГц превышает 0.3 МВ/см, пондеромоторная энергия электрона может достигать 1 эВ, что превышает энергию ионизации примесных электронов в полупроводнике и может привести к ударной ионизации [2, 10] и туннельному эффекту [11].

Однако отсутствие экономичных и высокоэффективных источников интенсивного ТГц излучения с управляемой поляризацией сдерживает развитие нелинейной терагерцовой фотоники. По сравнению с ультракороткими и сверхмощными фемтосекундными лазерными источниками, работающими в видимом и ближнем ИК диапазонах, энергия одиночного импульса, пиковая напряженность поля и пиковая мощность ТГц излучения остаются значительно ниже. Эффективность генерации мощных ТГц импульсов можно значительно повысить при использовании

излучения ближнего и среднего ИК диапазона при генерации в специально ориентированных нелинейных органических кристаллах [1, 12], в одночастотных полях по ионизационному механизму возмущения низкочастотных фототоков [13], а также в условиях нарушения симметрии процесса в двухцветной схеме генерации разностной частоты в воздухе [14]. В первом случае, генерация ТГц излучения является наиболее эффективной при использовании излучения с накачкой 1.2–1.5 мкм. Во втором случае, использование излучения с длинами волн от 2 до 3 мкм увеличивает на несколько порядков (до 5–7%) эффективность двухцветной генерации ТГц излучения [15, 16].

Таким образом, в связи с актуальностью развития методов эффективной генерации мощного ТГц излучения с управляемыми спектрально-временными свойствами в данной работе осуществлена генерация мощного ТГц излучения при накачке органических кристаллов фемтосекундным лазерным излучением системы на кристалле хром-форстерита (длина волны 1.24 мкм), проведен анализ получаемых спектрально-временных распределений поля излучения, а также продемонстрирована возможность управления спектральным составом ТГц излучения путем chirпирования импульса накачки и приведено объяснение данного эффекта на основе численного моделирования процесса генерации.

**Моделирование процесса генерации ТГц излучения.** Для описания полученных экспериментальных результатов по генерации терагерцевого излучения при накачке органического кристалла DAST chirпированным лазерным излучением было проведено численное моделирование, основанное на решении системы укороченных уравнений, описывающих трехволновое взаимодействие. Процессы генерации суммарной и разностной частот рассматривались в приближениях медленно меняющихся амплитуд (ММА) [17–19] и плоских волн с учетом материальной дисперсии и поглощения в органическом кристалле DAST. Используемая модель учитывает нелинейные процессы второго порядка, отвечающие за генерацию разностной частоты (оптическое выпрямление), в том числе каскадный эффект, а также расстройку и дисперсию групповых скоростей взаимодействующих импульсов. Также учитывается линейное и трехфотонное поглощение оптического излучения накачки и линейное поглощение ТГц излучения в кристалле [20].

В приближении ММА оптическое и ТГц поля представимы в следующем виде:

$$\begin{cases} E_{\text{оп}}(\omega, z) = A_{\text{оп}}(\omega, z) \cdot e^{-ik(\omega)z}, \\ E_{\text{ТГц}}(\Omega, z) = A_{\text{ТГц}}(\Omega, z) \cdot e^{-ik(\Omega)z}. \end{cases} \quad (1)$$

В таком случае процесс генерации ТГц излучения в органическом кристалле DAST на основе оптического выпрямления описывается системой укороченных уравнений:

$$\begin{cases} \frac{dA_{\text{оп}}(\omega, z)}{dz} = -\frac{\alpha_{\text{оп}}(\omega)A_{\text{оп}}(\omega, z)}{2} - P_1(\omega, z) - P_2(\omega, z), \\ \frac{dA_{\text{ТГц}}(\Omega, z)}{dz} = -\frac{\alpha_{\text{ТГц}}(\Omega)A_{\text{ТГц}}(\Omega, z)}{2} - P_3(\Omega, z), \end{cases} \quad (2)$$

где слагаемые, описывающие нелинейное взаимодействие волн оптического и ТГц диапазона, имеют вид:

$$\begin{cases} P_1(\omega, z) = \frac{i\omega d_{\text{эф}}(\omega_0)}{n_{\text{оп}}c} \times \\ \times \int_0^\infty A_{\text{оп}}(\omega + \Omega, z) A_{\text{ТГц}}^*(\Omega, z) \times \\ \times e^{-i(k(\omega+\Omega) - k(\omega) - k(\Omega))z} d\Omega \\ P_2(\omega, z) = \frac{i\omega d_{\text{эф}}(\omega_0)}{n_{\text{оп}}c} \times \\ \times \int_0^\infty A_{\text{оп}}(\omega - \Omega, z) A_{\text{ТГц}}(\Omega, z) \times \\ \times e^{-i(k(\omega-\Omega) - k(\omega) + k(\Omega))z} d\Omega, \\ P_3(\Omega, Z) = \frac{i\Omega d_{\text{эф}}(\omega_0)}{n_{\text{ТГц}}c} \times \\ \times \int_0^\infty A_{\text{оп}}(\omega + \Omega, z) A_{\text{оп}}^*(\omega, z) \times \\ \times e^{-i(k(\omega+\Omega) - k(\omega) - k(\Omega))z} d\omega, \end{cases} \quad (3)$$

где  $A_{\text{оп}}$ ,  $A_{\text{ТГц}}$  – амплитуды волны накачки оптического диапазона и разностной частоты ТГц диапазона,  $\alpha_{\text{ТГц}}$  и  $\alpha_{\text{оп}}$  – коэффициенты поглощения ТГц излучения и излучения накачки оптического диапазона соответственно,  $n_{\text{оп}}$  и  $n_{\text{ТГц}}$  – показатели преломления волн ТГц и оптического диапазона соответственно,  $d_{\text{эф}}$  – коэффициент эффективной нелинейности,  $\omega$  и  $\Omega$  – частоты волны накачки оптического диапазона и разностной частоты ТГц диапазона соответственно,  $k(\omega)$  и  $k(\Omega)$  – соответствующие им волновые числа,  $c$  – скорость света в вакууме,  $z$  – продольная координата вдоль оси распространения излучения.

В рамках моделирования считалось, что на вход кристалла подается гауссов импульс и соблюдаются следующие начальные и граничные условия:

$$\begin{cases} E_{\text{оп}}(z=0, t) = \frac{1}{2} E_{0\text{оп}} e^{-2\ln(2)\left(\frac{t}{\Delta t_{\text{оп}}}\right)^2} + \text{к.с.}, \\ E_{\text{оп}}(t = -T/2) = 0, \\ E_{\text{оп}}(t = T/2) = 0, \end{cases} \quad (4)$$

где  $E_{\text{оп}}$  – поле волны накачки оптического диапазона,  $\Delta t_{\text{оп}}$  – длительность импульса,  $T$  – размер временного окна. Численное решение уравнений проводилось с помощью метода Рунге–Кутты 4-го порядка с пространственным разрешением 1 мкм [18].

Основные характеристики кристалла DAST, используемые в моделировании, рассчитывались следующим образом. Показатель преломления для волны накачки (1.24 мкм) [21] рассчитывался на основе формулы Селмейера, а показатель преломления для волны разностной частоты ТГц диапазона – с использованием модели осцилляторов Лоренца [22]. Используемый в моделировании коэффициент эффективной нелинейности  $d_{\text{эф}}$  выражался через показатель преломления и электрооптический коэффициент. В случае использования излучения накачки хром-форстеритового лазера на длине волны 1.24 мкм значение  $d_{\text{эф}}$  составляет 314 пм/В. Значение электрооптического коэффициента, отвечающего за оптическое выпрямление, было взято из работы [23]. Считалось, что кристалл ориентирован на максимум генерации, поэтому значение электрооптического коэффициента  $r_{\text{эф}}$  принималось равным  $r_{\text{эф}} = r_{111}$ .

Для исследования влияния чирпа генерирующего импульса на параметры ТГц излучения в рамках данной модели была возможность чирпировать исходный импульс накачки за счет внесения дисперсии групповой задержки (ДГЗ) в спектральную фазу импульса, что соответствует случаю линейного чирпирования [24]. В этом случае гауссов импульс на входе в кристалл во временном представлении имел вид:

$$E(t) = \frac{E_0}{2\gamma^{1/4}} e^{-\frac{t^2}{4\beta\gamma}} e^{i(\omega_0 t + at^2 - \varepsilon)}, \quad (5)$$

где  $\Delta t$  – начальная длительность спектрально-ограниченного импульса,  $\phi''$  – дисперсия групповой задержки (ДГЗ),  $a$  – линейный чирп и

$$\begin{cases} \beta = \frac{\Delta t^2}{8\ln(2)}, \\ \gamma = 1 + \frac{\phi''^2}{4\beta^2}, \\ a = \frac{\phi''}{8\beta^2\gamma}, \\ \varepsilon = \frac{1}{2} \text{atan}\left(\frac{\phi''}{2\beta}\right). \end{cases} \quad (6)$$

Таким образом, для моделирования процесса генерации ТГц излучения в органическом кристалле входными параметрами являлись параметры импульса накачки – энергия, длительность, диаметр пучка, чирп импульса и его центральная частота, а также параметры исследуемого кристалла DAST – коэффициент эффективной нелинейности  $d_{\text{эф}}$ , показатели преломления, рассчитываемые на основе формулы Селмейера и модели осцилляторов Лоренца, а также толщина кристалла. Выходным параметром являлся спектр генерируемого ТГц излучения, получаемый посредством преобразования Фурье рассчитанного поля ТГц импульса.

**Результаты и обсуждение.** Для генерации ТГц излучения использовался мультитигаваттный хром-форстеритовый лазерный комплекс (длина волны 1.24 мкм, энергия 3.5 мДж, длительность 100 фс по уровню FWHM по интенсивности). Эксперименты выполнялись с использованием кристаллов DAST (размер  $0.5 \times 10$  мм – толщина и диаметр соответственно), DSTMS ( $0.12 \times 6$  мм), OH1 ( $0.87 \times 6$  мм) и BNA ( $0.8 \times 6$  мм). Для регистрации ТГц излучения использовался пироэлектрический детектор Gentec QE8SP-B-BC-D0 с размером приемной апертуры  $\sim 8 \times 8$  мм, что гарантировало регистрацию полной энергии ТГц излучения при фокусировке на приемную часть в пятно диаметром  $\sim 300$ – $1000$  мкм по уровню  $1/e^2$ . ТГц излучение отсекалось от оптического с помощью фильтра Tydex LPF23.4. Регистрация спектра ТГц излучения осуществлялась с помощью схемы интерферометра Майкельсона, где в качестве светоделителя использовалась пластина из высокоомного кремния (Tydex HRFZ-Si).

**Сравнение спектров ТГц излучения при генерации в органических кристаллах.** На рисунках 1 и 2 изображены корреляционная функ-

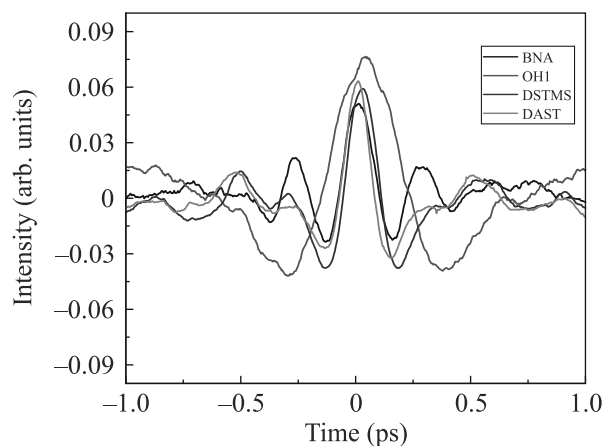


Рис. 1. (Цветной онлайн) Корреляционные функции ТГц излучения, полученного в органических кристаллах при их накачке мультитигаваттной хром-форстеритовой лазерной системой

ция первого порядка (корреляционная функция поля, полученная в схеме интерферометра Майкельсона) и спектр ТГц излучения, полученный путем преобразования Фурье корреляционной функции. Как свидетельствует рис. 2, кристаллы DAST, DSTMS и BNA позволяют получить существенно более широкий спектр ТГц излучения (вплоть до 5–6 ТГц) по сравнению со спектром излучения из кристалла OH1, который локализован преимущественно в окрестности 1 ТГц. Следует отметить, что в спектрах

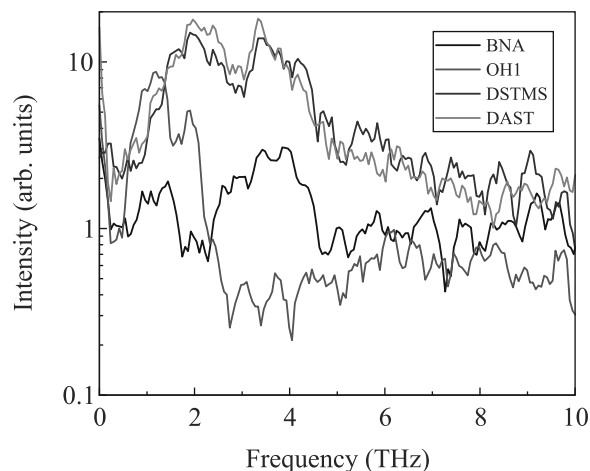


Рис. 2. (Цветной онлайн) Спектры ТГц излучения, полученного в органических кристаллах при их накачке мультитигаваттной хром-форстеритовой лазерной системой

ТГц излучения, полученного из кристаллов DAST и DSTMS, характерный провал в области 1 ТГц, обусловленный фоновым поглощением, практически не виден, что может быть следствием ограниченного спектрального разрешения. Более явно данный провал выражен в спектрах для кристалла DAST, приведенных в следующем разделе статьи. Также можно отметить, что ширины спектров, полученных в кристаллах DAST, DSTMS и OH1, больше ширин, полученных в работе [12] для данных кристаллов при накачке хром-форстеритовым лазерным излучением – примерно 2.5 против 2 ТГц, 2.8 против 0.6 ТГц, 1.2 против 0.8 ТГц соответственно. Данный эффект может объясняться, как следует из результатов ниже, большей величиной остаточного чирпа излучения накачки в указанной работе.

Аппроксимация автокорреляционной функции поля ТГц излучения гауссовой огибающей позволила установить ее ширину по уровню FWHM, которая для кристаллов DAST и DSTMS составила  $\Delta t_{ACF} \sim 750$  фс и  $\sim 670$  фс соответственно, что при условии отсутствия чирпа в ТГц импульсе соответствует длительности ТГц импульса  $\Delta t_{THz} = \Delta t_{ACF}/1.41 \sim 530$  фс и  $\sim 470$  фс соответственно (табл. 1). Оценка длительности одного цикла поля для ТГц излучения с центральной частотой  $\sim 3$  ТГц, генерируемого в данных кристаллах, дает значение  $\sim 330$  фс, что говорит о генерации в органических кристаллах DAST и DSTMS ТГц излучения предельно короткой длительности, близкой к одной осцилляции поля. Оценка длительности ТГц импульса, полученного в кристалле OH1, составляет 1.1 пс, при этом центральная частота в спектре

**Таблица 1.** Сводная таблица с эффективностью преобразования и временными характеристиками генерируемого ТГц излучения для кристаллов DAST, DSTMS, OH1, BNA

| Кристалл                                      | DAST<br>0.5 × 10 мм | DSTMS<br>0.12 × 6 мм | OH1<br>0.87 × 6 мм | BNA<br>0.8 × 6 мм |
|-----------------------------------------------|---------------------|----------------------|--------------------|-------------------|
| Эффективность преобразования, %               | 2.00                | 0.8                  | 1.00               | 0.7               |
| Ширина спектра FWHM, ТГц                      | 2.5                 | 2.8                  | 1.2                | 2                 |
| Длительность импульса FWHM, фс                | 530                 | 470                  | 1100               | 660               |
| Центральная частота, ТГц                      | 3                   | 3                    | 1.5                | 3.5               |
| Длительность периода поля, фс                 | 330                 | 330                  | 670                | 290               |
| Количество периодов поля в импульсе FWHM, шт. | 1.61                | 1.42                 | 1.64               | 2.28              |

ТГц излучения для данного кристалла составляет 1.5 ТГц, что соответствует периоду осцилляций поля на уровне 670 фс. Как и для кристаллов DAST и DSTMS, это свидетельствует о генерации в кристалле OH1 излучения с длительностью, близкой к одной осцилляции поля, однако с большим периодом осцилляций. Оценка длительности ТГц импульса, полученного в кристалле BNA, составляет 660 фс, что с учетом центральной частоты спектра на 3.5 ТГц и соответствующего периода поля 290 фс свидетельствует о генерации малопериодного импульса длительностью в примерно 2 цикла поля.

Отметим, что лазерное излучение на длине волны 1.24 мкм мультигигаваттного уровня мощности использовалось для накачки кристалла BNA впервые, достигнутая эффективность преобразования составила 0.7 %. Измеренный спектр излучения кристалла BNA (рис. 2) находится в хорошем согласии с результатами работы [25], где в качестве накачки использовалась сигнальная волна параметрического усилителя.

Таким образом, грубое спектрально-временное управление полем ТГц излучения может быть реализовано путем использования для генерации набора органических кристаллов DAST, DSTMS, OH1 и BNA.

**Управление спектром ТГц излучения путем чирпирования импульса накачки.** В качестве более прецизионного способа управления спектрально-временной формой поля ТГц излучения, генерируемого в кристаллах, может выступать изменение чирпа излучения накачки. Для подтверждения указанного подхода в рамках данной работы проведены эксперименты по

генерации ТГц излучения в кристалле DAST чирпированным фемтосекундным излучением лазерной системы на кристалле хром-форстерита. Выбор кристалла DAST для проведения эксперимента с чирпированием импульса накачки обусловлен одновременно большой шириной спектра и наибольшей эффективностью преобразования среди использованных кристаллов, что позволяло максимизировать соотношение сигнал-шум при измерениях.

Использование кристалла с широкой апертурой (10 мм) позволило добиться коэффициента преобразования на уровне 2 % в режиме насыщения эффективности, что с учетом поглощения части энергии в фильтре Tydex LPF23.4 (~50 %) соответствовало энергии ТГц импульса на уровне 70 мкДж (рис. 3) сразу после кристалла.

Расширение пучка ТГц излучения с помощью внеосевых парабол и последующая его фокусировка позволили получить пучок в перетяжке диаметром 330 мкм по уровню  $1/e^2$  по интенсивности (см. рис. 4), что свидетельствует о возможности достижения электрического поля на уровне 15 МВ/см в перетяжке пучка при использовании полной (70 мкДж) энергии ТГц импульса. С учетом поглощения энергии ТГц импульса в фильтре Tydex LPF23.4 (пропускание ~50 % для генерируемого спектра частот) и поглощения на осушенной (влажность 30 %) воздушной трассе длиной ~0.5 м (пропускание ~45 %) энергия импульса в перетяжке составила ~15 мкДж, что соответствует достигаемой величине поля ~7 МВ/см.

Достижение указанного сильного поля ТГц излучения также было подтверждено экспериментально – путем регистрации эффекта просветления об-

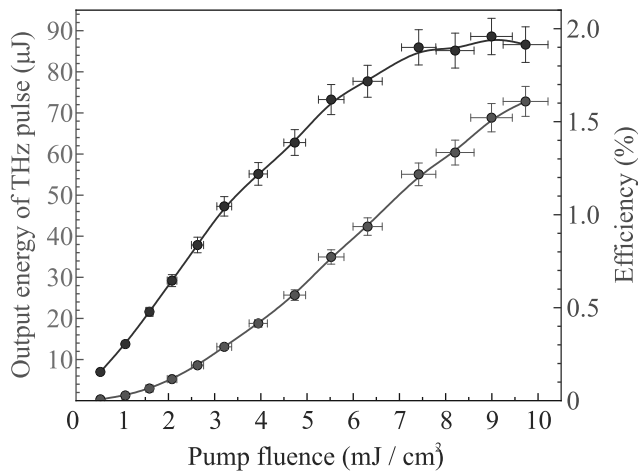


Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимость выходной энергии и эффективности преобразования от плотности энергии накачки на длине волны 1.24 мкм для кристалла DAST

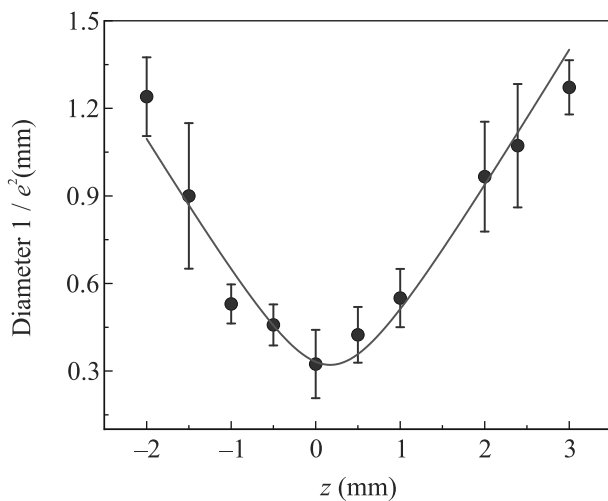


Рис. 4. (Цветной онлайн) Зависимость диаметра пучка ТГц излучения от продольной координаты  $z$  при фокусировке. Измерение производилось методом “ножа” [26]

разца кремния толщиной  $\sim 300$  мкм с электронным типом проводимости с концентрацией носителей заряда  $\sim 5 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-3}$  (рис. 5). Эффект регистрировался с помощью техники  $z$ -scan [10], в рамках которой образец перемещался в продольном направлении в окрестности перетяжки с помощью микрометрической подвижки, при каждом положении образца регистрировалась прошедшая через него энергия ТГц излучения. Как свидетельствует график на рис. 5, при расположении образца в перетяжке пропускание увеличивалось в  $\sim 2$  раза: с 4.5 до 10 %. Таким образом, зарегистрированный эффект просветления

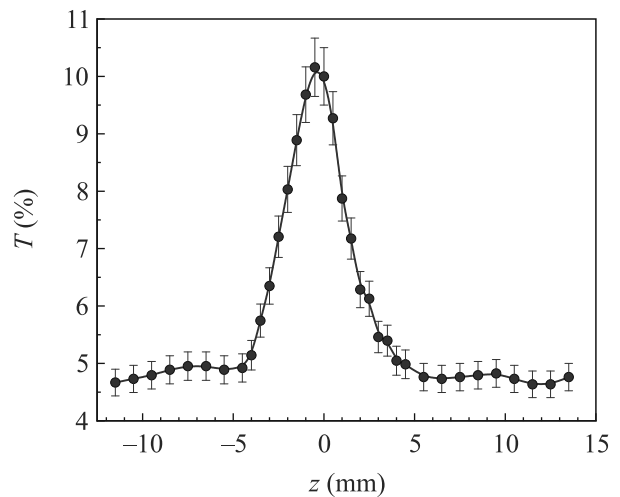


Рис. 5. (Цветной онлайн) График зависимости пропускания образца кремния с электронным типом проводимости от продольной координаты  $z$  расположения образца в окрестности перетяжки

подтверждает получение в кристалле DAST сильного поля ТГц излучения, достаточного для наблюдения нелинейно-оптических эффектов в ТГц диапазоне длин волн.

Изменение формы спектра ТГц излучения при изменении chirpa импульса накачки на длине волны 1.24 мкм представлено на рис. 6. Как свидетельствуют экспериментальные спектры на рис. 6, chirпиро-

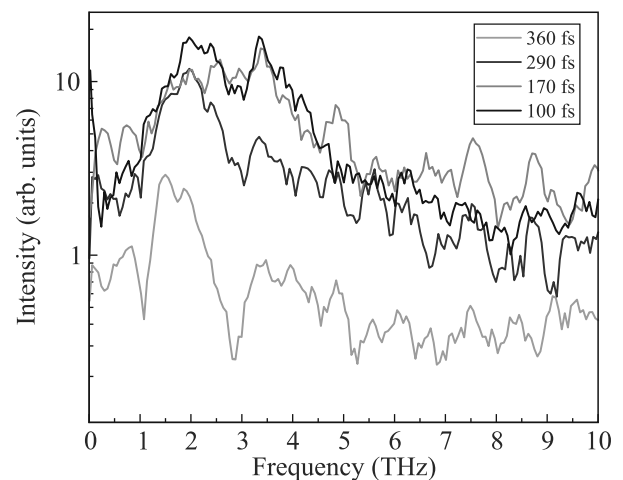


Рис. 6. (Цветной онлайн) Экспериментальные спектры ТГц излучения, генерируемого в процессе оптического выпрямления chirпированного хром-форстеритового лазерного импульса на длине волны 1.24 мкм в кристалле DAST

вание импульса накачки влияет на два параметра в спектре ТГц излучения – на ширину спектра и его центральную длину волны. При внесении положи-

тельного чирпа и соответствующем изменении длительности лазерного импульса от спектрально ограниченного ( $\sim 100$  фс) до чирпированного ( $\sim 360$  фс) центральная длина волны ТГц излучения смещается от 3 до 1.5 ТГц при синхронном изменении ширины спектра от  $\sim 2.5$  ТГц до  $\sim 1$  ТГц. Для объяснения данного эффекта было проведено численное моделирование, основанное на решении системы укороченных уравнений, описывающих процессы трехволнового смешения (рис. 7, подробности см. выше).

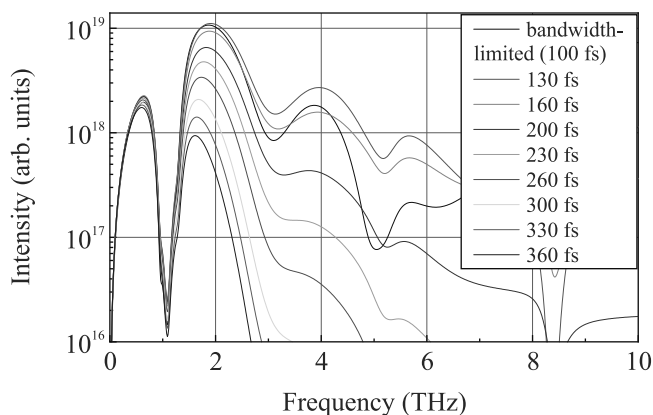


Рис. 7. (Цветной онлайн) Расчетные спектры ТГц излучения, генерируемого в процессе оптического выпрямления чирпированного хром-форстеритового лазерного импульса на длине волны 1.24 мкм в кристалле DAST (расчет на основе системы укороченных уравнений для трехволнового смешения)

Моделирование процесса генерации ТГц излучения показывает, что при накачке кристалла DAST толщиной 500 мкм спектрально-ограниченным импульсом накачки хром-форстеритового лазера ( $\sim 100$  фс) возможна генерация ТГц излучения в диапазоне до 8 ТГц с двумя спектральными максимумами 0.4 и 2 ТГц. Излучение на длинах волн более 6–8 ТГц испытывает значительное поглощение на атмосферных трассах, поэтому результаты моделирования предсказывают большую по сравнению с экспериментом интенсивность генерируемого излучения в данной частотной области. Максимум в области 2 ТГц может быть связан с лучшим согласованием скоростей импульсов накачки и ТГц излучения (2 ТГц), так как в этом случае длина когерентности оказывается равной длине используемого кристалла и составляет  $\sim 500$  мкм, а провал в области 1 ТГц может быть объяснен наличием линии поглощения кристалла DAST в данном частотном диапазоне. При чирпировании импульса накачки ширина спектра генерируемого ТГц излучения уменьшается при одновременном снижении спектральной амплитуды компоненты на

частоте 2 ТГц, что наблюдается как в модельных, так и в экспериментальных спектрах. В случае отрицательного чирпирования (внесения отрицательной дисперсии групповой задержки) до 300 фс наблюдалась аналогичная эволюция спектра генерируемого ТГц излучения. Демонстрируемое согласие теории и эксперимента говорит о том, что в основе наблюдаемых эффектов лежит изменение ширины фазового синхронизма вырожденного процесса генерации разностной частоты, так как при чирпировании импульсов накачки ширина спектра ТГц излучения определяется мгновенными временным перекрытием спектральных компонент импульсов накачки в нелинейном кристалле.

Стоит отметить, что, как свидетельствуют спектры на рис. 6, чирпирование приводит к уменьшению спектральной интенсивности на всех частотах спектра излучения. При этом большее уменьшение спектральной интенсивности происходит для высоких частот, что ведет к изменению формы спектра: его обужению и смещению центральной частоты. Иначе говоря, при чирпировании излучения накачки разная степень подавления конверсии на разных частотах ТГц диапазона приводит к изменению формы спектра ТГц излучения, что и позволяет добиться спектральной перестройки.

Несмотря на уменьшение энергии ТГц импульса при подобной перестройке, чирпирование импульса накачки для управления формой спектра ТГц излучения имеет практический смысл даже на фоне возможности управления спектральным составом излучения путем использования ТГц-фильтров. Во-первых, существенным преимуществом спектральной перестройки на основе чирпирования импульса накачки является возможность плавного изменения формы спектра, что трудноосуществимо с использованием ТГц-фильтров. Во-вторых, уменьшение эффективности преобразования при чирпировании импульса накачки может быть меньше, чем при использовании для спектрального управления ТГц-фильтров. Так, чирпирование импульса накачки до 360 фс привело к обужению спектра в  $\sim 2.5$  раза (рис. 6), при этом энергия импульса уменьшилась в  $\sim 6$  раз. Схожее обужение спектра так же в 2.5 раза с использованием коммерчески доступного фильтра низких частот Tydex LPF3.2 с минимальной из доступных частот отсечки 3.2 ТГц (94 мкм) привело бы к уменьшению энергии в  $\sim 2$ –2.5 раза в силу симметричности спектра относительно 3 ТГц, а также дополнительному уменьшению в  $\sim 6$  раз за счет неидеальной спектральной кривой пропускания, что суммарно дает уменьшение энергии ТГц

излучения при подобном обужении спектра в 12–15 раз. По сравнению с этим значением, выигрыш по энергии при использовании chirпированного импульса накачки составляет  $\sim 2$ –2.5 раза. Таким образом, практический смысл chirпирования импульса накачки для перестройки спектра ТГц излучения обусловлен меньшим падением выходной энергии ТГц излучения, чем при использовании коммерчески доступных фильтров низких частот, а также возможностью плавного изменения формы спектра.

**Заключение.** В рамках данной работы проведен сравнительный анализ спектров ТГц излучения, генерируемого в органических кристаллах DAST, DSTMS, OH1 и BNA фемтосекундным лазерным излучением системы на кристалле хром-форстерита с длиной волны 1.24 мкм. При этом генерация ТГц излучения в органическом кристалле BNA в условиях накачки мультитигаваттным излучением на длине волны 1.24 мкм реализована впервые, достигнутая эффективность преобразования составила 0.7 %. Показано, что использование указанного набора кристаллов позволяет осуществлять грубое управление спектрально-временными свойствами генерируемого ТГц излучения и изменять ширину и положение спектра генерируемого излучения, а также длительность и количество осцилляций поля ТГц импульса.

Также показано, что более тонкое управление спектрально-временными свойствами мощного ТГц излучения может быть осуществлено путем chirпирования импульса накачки, что приводит к смещению и обужению спектра генерируемого ТГц излучения за счет изменения ширины фазового синхронизма вырожденного процесса генерации разностной частоты ТГц диапазона.

Таким образом, впервые предложены подходы по генерации мощного перестраиваемого малопериодного ТГц излучения в органических кристаллах, что в сочетании с нелинейно-оптическими методами расширения спектра лазерного излучения [27–29] формирует основу для создания сверхширокополосного источника когерентного излучения от УФ до ТГц диапазона, открывающего путь к время-разрешенной мультиспектральной спектроскопии переходных процессов в веществе в диапазоне от фемтосекундных до аттосекундных масштабов времени. Использование полученного перестраиваемого сильного ТГц поля также открывает возможности для исследования процесса генерации гармоник высокого и низкого порядков фемтосекундным лазерным излучением ближнего и среднего ИК диапазонов [30, 31] в присутствии сильного квазистационарного ТГц поля.

Исследования в части моделирования генерации мощного ТГц излучения в органических кристаллах поддержаны грантом Российского научного фонда # 20-19-00148, исследования в части экспериментальной генерации высокоинтенсивного ТГц излучения для использования в процессе генерации гармоник поддержаны грантом Российского фонда фундаментальных исследований # 19-29-12030, исследования в части генерации перестраиваемого ТГц излучения для время-разрешенной диагностики переходных процессов в веществе поддержано грантом Российского фонда фундаментальных исследований # 21-32-70021. Румянцев Б.В. и Сулейманова Д.З. являются стипендиатами фонда развития теоретической физики и математики “БАЗИС”.

1. C. Vicario, A. V. Ovchinnikov, S. I. Ashitkov, M. B. Agranat, V. E. Fortov, and C. P. Hauri, *Opt. Lett.* **39**(23), 6632 (2014).
2. X. Ch. Zhang, A. Shkurinov, and Y. Zhang, *Nat. Photonics* **11**(1), 16 (2017).
3. Sh. Fleischer, Y. Zhou, R. W. Field, and K. A. Nelson, *Phys. Rev. Lett.* **107**(16), 163603 (2011).
4. D. Afanasiev, J. R. Hortensius, B. A. Ivanov, A. Sasani, E. Bousquet, Y. M. Blanter, R. V. Mikhaylovskiy, A. V. Kimel, and A. D. Caviglia, *Nat. Mater.* **20**(5), 607 (2021).
5. T. L. Cocker, V. Jelic, R. Hillenbrand, and F. A. Hegmann, *Nat. Photonics* **15**(8), 558 (2021).
6. M. Plankl, P. E. Faria Junior, F. Mooshammer, T. Siday, M. Zizlsperger, F. Sandner, F. Schiegl, S. Maier, M. A. Huber, M. Gmitra, J. Fabian, J. L. Bolland, T. L. Cocker, and R. Huber, *Nat. Photonics* **15**(8), 594 (2021).
7. E. A. Nanni, W. R. Huang, K.-H. Hong, K. Ravi, A. Fallahi, G. Moriena, R. J. Dwayne Miller, and F. X. Kärtner, *Nat. Commun.* **6**(1), 8486 (2015).
8. H. Tang, L. Zhao, P. Zhu, X. Zou, J. Qi, Y. Cheng, J. Qiu, X. Hu, W. Song, D. Xiang, and J. Zhang, *Phys. Rev. Lett.* **127**(7), 074801 (2021).
9. I. V. Il'ina, D. S. Sitnikov, and M. B. Agranat, *High Temperature* **56**, 789 (2018).
10. O. V. Chefonov, A. V. Ovchinnikov, S. A. Romashevskiy, X. Chai, T. Ozaki, A. B. Savel'ev, M. B. Agranat, and V. E. Fortov, *Opt. Lett.* **42**(23), 4889 (2017).
11. V. Jelic, K. Iwaszczuk, P. H. Nguyen, Ch. Rathje, G. J. Hornig, H. M. Sharum, J. R. Hoffman, M. R. Freeman, and F. A. Hegmann, *Nat. Phys.* **13**(6), 591 (2017).
12. C. Vicario, M. Jazbinsek, A. V. Ovchinnikov, O. V. Chefonov, S. I. Ashitkov, M. B. Agranat, and C. P. Hauri, *Opt. Express* **23**(4), 4573 (2015).

13. M. Clerici, M. Peccianti, B.E. Schmidt, L. Caspani, M. Shalaby, M. Giguere, A. Lotti, A. Couairon, F. Légaré, T. Ozaki, D. Faccio, and R. Morandotti, *Phys. Rev. Lett.* **110**(25), 253901 (2013).
14. V.Y. Fedorov and S. Tzortzakis, *Phys. Rev. A* **97**(6), 063842 (2018).
15. K. Shibuya, K. Nawata, Y. Nakajima, Y. Fu, E.J. Takahashi, K. Midorikawa, T. Yasui, and H. Minamide, *Appl. Phys. Express* **14**(9), 092004 (2021).
16. C. Gollner, M. Shalaby, C. Brodeur, I. Astrauskas, R. Jutas, E. Constable, L. Bergen, A. Baltuška, and A. Pugžlys, *APL Photonics* **6**(4), 046105 (2021).
17. J. Li, R. Rana, L. Zhu, C. Liu, H. Schneider, and A. Pashkin, *Opt. Express* **29**(14), 22494 (2021).
18. T. Hattori and K. Takeuchi, *Opt. Express* **15**(13), 8076 (2007).
19. K. Ravi, W.R. Huang, S. Carbajo, X. Wu, and F. Kärtner, *Opt. Express* **22**(17), 20239 (2014).
20. A. Schneider, M. Neis, M. Stillhart, B. Ruiz, R.U.A. Khan, and P. Günter, *JOSA B* **23**(9), 1822 (2006).
21. Ch. Bosshard, R. Spreiter, L. Degiorgi, and P. Günter, *Phys. Rev. B* **66**(20), 205107 (2002).
22. P.D. Cunningham and L.M. Hayden, *Opt. Express* **18**(23), 23620 (2010).
23. M. Stillhart, A. Schneider, and P. Günter, *JOSA B* **25**(11), 1914 (2008).
24. E.A. Migal, D.Z. Suleimanova, and F.V. Potemkin, *Quantum Electron.* **51**(7), 601 (2021).
25. H. Zhao, Y. Tan, T. Wu, G. Steinfeld, Y. Zhang, C. Zhang, L. Zhang, and M. Shalaby, *Appl. Phys. Lett.* **114**(24), 241101 (2019).
26. J.M. Khosroffian and B.A. Garetz, *Appl. Opt.* **22**(21), 3406 (1983).
27. E.A. Migal, F.V. Potemkin, and V.M. Gordienko, *Laser Phys. Lett.* **16**(4), 045401 (2019).
28. E.A. Migal, S.Yu. Stremoukhov, and F.V. Potemkin, *Phys. Rev. A* **101**(2), 021401 (2020).
29. E. Migal, A. Pushkin, N. Minaev, B. Bravy, and F. Potemkin, *Opt. Lett.* **47**(4), 985 (2022).
30. B.V. Rumiantsev, K.E. Mikheev, A.V. Pushkin, E.A. Migal, S.Yu. Stremoukhov, and F.V. Potemkin, *JETP Lett.* **115**(7), 390 (2022).
31. B.V. Rumiantsev, A.V. Pushkin, K.E. Mikheev, and F.V. Potemkin, *JETP Lett.* **116**(10), 683 (2022).