

УДК 535 : 33

МАЛОГАБАРИТНЫЙ ТЕРАГЕРЦОВЫЙ СПЕКТРОМЕТР С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ ВТОРОЙ ГАРМОНИКИ ФЕМТОСЕКУНДНОГО ВОЛОКОННОГО ЛАЗЕРА*

В. Д. Анцыгин¹, А. А. Мамрашев^{1,2}, Н. А. Николаев¹,
О. И. Потатуркин^{1,2}

¹ Учреждение Российской академии наук

Институт автоматизации и электрометрии Сибирского отделения РАН,
630090, г. Новосибирск, просп. Академика Коптюга, 1

² Государственное образовательное учреждение высшего профессионального образования
«Новосибирский государственный университет»,
630090, г. Новосибирск, ул. Пирогова, 2
E-mail: mamrashev@iae.nsk.su

Рассмотрены варианты реализации малогабаритного терагерцового спектрометра с субпикосекундным разрешением на базе фемтосекундного волоконного лазера. Создан экспериментальный образец спектрометра, использующего метод оптического выпрямления в нелинейном кристалле ZnTe и эффект Дембера на поверхности полупроводника InAs для генерации терагерцового излучения и поляризационно-оптический метод для его детектирования. Продемонстрирована работоспособность системы на примере измерения терагерцового спектра поглощения воды и определения показателей преломления кристалла β -ВВО. Установлены основные параметры спектрометра: спектральный диапазон, спектральное разрешение, динамический диапазон амплитуды терагерцового спектра.

Ключевые слова: терагерцовая спектроскопия, оптическое выпрямление, поляризационно-оптическая регистрация.

Введение. Освоение терагерцового диапазона частот (0,3–10 ТГц) является одним из новых и бурно развивающихся направлений современной физики. Активность в этой области обусловлена перспективами широких практических применений терагерцового излучения, в частности в системах терагерцовой спектроскопии [1]. Колебательные и вращательные моды и соответственно спектры поглощения многих важных органических молекул, таких как аминокислоты, полипептиды, белки, ДНК и РНК, лежат в данном диапазоне, поэтому становятся возможными их идентификация и получение информации об их структуре. Спектральные особенности взрывчатых, отравляющих и наркотических веществ в терагерцовом диапазоне позволяют создать системы обеспечения безопасности, в том числе экологической.

Актуальным направлением в освоении терагерцового диапазона является исследование быстропротекающих процессов методом pump-probe. С помощью фемтосекундных лазерных импульсов возможно создание сильнонеравновесных состояний быстрорелаксирующих возбуждений (с временем релаксации 10^{-12} – 10^{-14} с), например электронных возбуждений в полупроводниках, металлах, наноструктурах, многоатомных молекулах и т. п. Релаксация таких возбуждений зондируется пробными импульсами с меньшей мощностью и регулируемой задержкой относительно возбуждающего либо люминесцентным методом. При исследовании быстропротекающих процессов крайне важно иметь данные не только

*Работа выполнена при поддержке Президиума РАН (программа № 27 «Основы фундаментальных исследований нанотехнологий и наноматериалов»).

об излучательных механизмах передачи и релаксации энергии возбуждений, но и о безызлучательных переходах (внутризонных, внутриэкситонных, электрон-фононных, между внутренними состояниями квантовых систем и др.). В переходах участвуют состояния, отстоящие друг от друга по энергии на 10^{-2} – 10^{-3} эВ, что соответствует квантам энергии электромагнитного излучения терагерцового диапазона. Поэтому для получения информации об энергетическом положении таких состояний, их заселённости и эффективности участия в исследуемых процессах целесообразно использовать излучение терагерцового диапазона как для накачки, так и для их зондирования. Это даёт возможность реализовать прямые экспериментальные методы изучения динамики генерации, трансформации и релаксации возбуждений (электронов, фононов, экситонов, плазмонов, поляронов, куперовских пар и др.) в конденсированных средах и сложных (в том числе биологически активных) молекулах.

Использование малогабаритных терагерцовых систем позволит реализовать в одном эксперименте исследование объекта, находящегося, например, в камере ростовой установки молекулярно-лучевой эпитаксии, атомно-силового или туннельного микроскопа, криостата и других, совмещая методы терагерцовой спектроскопии и видения с оптическим методом *rimpr-probe*, электронной спектроскопией для химического анализа, электронным парамагнитным резонансом и т. д.

При создании малогабаритных систем терагерцовой спектроскопии возможно применение волоконных лазеров [2], для чего необходимы исследования эффективности использования различных методов и материалов для генерации и регистрации терагерцового излучения, подбор параметров материалов, экспериментальная апробация на основе измерения типичных спектров в терагерцовом диапазоне.

Методы генерации и регистрации. В настоящее время для генерации терагерцового излучения с помощью ультракоротких (порядка 10^{-13} с) лазерных импульсов применяются три основных подхода: оптическое выпрямление в нелинейных кристаллах, генерация на поверхности полупроводников, возбуждение импульсного фототока в фотопроводящей антенне.

Метод оптического выпрямления основан на создании импульсов поляризации импульсами света фемтосекундной длительности в нелинейно-оптических средах. Релаксация этих импульсов приводит к излучению широкополосного электромагнитного поля в терагерцовом диапазоне частот. Можно показать, что напряжённость поля и эффективность преобразования оптического импульса в терагерцовый в зависимости от частоты описывается формулами [3]

$$E_{\text{ТГц}}(\omega) \sim \frac{\chi\omega I(\omega)}{n(\omega)n_g} L_{\text{gen}}, \quad (1)$$

$$\eta(\omega) \sim \frac{\chi^2\omega^2 I(\omega)}{n(\omega)n_g^2} L_{\text{gen}}^2, \quad (2)$$

где χ — нелинейная оптическая восприимчивость второго порядка; $n(\omega)$ — показатель преломления на терагерцовых частотах; $n_g = n(\omega_0) - \omega_0 dn/d\omega$ — групповой показатель преломления на частоте накачки ω_0 ; L_{gen} — длина генерации, которая определяется наименьшей из следующих величин: глубиной проникновения лазерного излучения и терагерцового поля в материал (величиной, обратной коэффициенту поглощения на соответствующей частоте) и длиной когерентности терагерцового поля и поля накачки L_c :

$$L_c = \frac{\pi c}{\omega(n(\omega) - n_g)}. \quad (3)$$

Как видно из выражений (1) и (3), напряжённость генерируемого терагерцового поля определяется следующими параметрами материала: оптической нелинейностью второго порядка, поглощением на частоте излучения накачки и в терагерцовом спектре, длиной когерентности. Для достижения эффективного преобразования оптического излучения в терагерцовое необходимо, чтобы нелинейно-оптический материал обладал высокой нелинейностью, малым поглощением на лазерной и терагерцовой частотах, большой длиной когерентности (фазового синхронизма) и высокой лучевой прочностью.

Когерентная регистрация (регистрация напряжённости электрического поля) импульсного терагерцового излучения в электрооптических кристаллах основана на линейном эффекте Поккельса. Электрическое поле терагерцового импульса, проходящего через кристалл, вызывает изменение эллипсоида показателей преломления, что, в свою очередь, фиксируется по изменению эллиптичности регистрирующего лазерного импульса. Эта процедура реализуется путём преобразования эллиптичности излучения в поворот плоскости поляризации с последующим разложением на две ортогональные компоненты и дифференциальной регистрацией двумя фотоприёмниками [4].

Генерация терагерцового излучения возможна также при поглощении лазерного импульса в узкозонном полупроводнике, в котором из-за большого коэффициента поглощения ($\sim 10^5 \text{ см}^{-1}$) в приповерхностном слое создаётся большой градиент концентрации фотоносителей. Релаксация фотоносителей за счёт диффузии или движения во встроенном поле за времена порядка 10^{-12} с приводит к излучению электромагнитной волны терагерцового диапазона [5]. При этом когерентная регистрация импульсного терагерцового излучения осуществляется аналогично предыдущему случаю.

При воздействии фемтосекундного лазерного импульса на полупроводниковую структуру фотопроводящей антенны, к которой приложено постоянное напряжение смещения, возникает импульс тока [6]:

$$J = en(t)v(t), \quad (4)$$

$$\frac{d}{dt} n(t) = -\frac{1}{\tau_1} n(t) + G(t), \quad G(t) = \frac{I(t)}{h\nu}, \quad (5)$$

$$\frac{d}{dt} v(t) = -\frac{1}{\tau_2} v(t) + \frac{e}{m^*} E(t), \quad E(t) = E_s - E_{\text{ТГц}}(t), \quad (6)$$

$$E_{\text{ТГц}} \sim \frac{\partial J}{\partial t} = ev \frac{\partial n}{\partial t} + en \frac{\partial v}{\partial t}, \quad (7)$$

где J — возникающий фототок; I — интенсивность лазерного излучения; e , n , v , m^* , τ_1 — заряд, концентрация, скорость, эффективная масса и время жизни носителя заряда соответственно; τ_2 — время релаксации импульса носителя; E_s — напряжённость внешнего приложенного поля; $E_{\text{ТГц}}$ — напряжённость возникающего терагерцового поля; $h\nu$ — квант энергии лазерного излучения.

Релаксация импульса тока (4)–(7) за времена τ_1 , τ_2 порядка 10^{-12} с приводит к излучению в терагерцовом диапазоне. Из выражения (7) следует, что для эффективного преобразования лазерного излучения в терагерцовое фотопроводящий материал должен обладать большой подвижностью и малым временем жизни носителей заряда, высокими квантовой эффективностью фотовозбуждения, лучевой и электрической прочностью.

Регистрация терагерцового излучения с помощью фотопроводящих антенн производится аналогично генерации. Однако в этом случае к антенне не прикладывается внешнее напряжение смещения, а его роль выполняет терагерцовое поле при протекании фототока, обусловленного засветкой лазерными импульсами. Поэтому возникающая разность потенциалов на электродах антенны пропорциональна напряжённости терагерцового поля.

Перечисленные выше методы импульсной генерации и регистрации могут сочетаться друг с другом в одной системе терагерцовой спектроскопии.

Перспективными нелинейными материалами для преобразования оптического импульсного излучения в терагерцовое методом оптического выпрямления являются органические кристаллы (электрооптический коэффициент ~ 700 пм/В в плёнках DAST) [7] и полимерные плёнки (электрооптический коэффициент более 300 пм/В для недавно синтезированных материалов) [8]. Кристаллы InAs [5] и InSb [9] в магнитном поле целесообразно использовать для приповерхностной генерации терагерцового излучения. При реализации оптического метода генерации терагерцового излучения с помощью фотопроводящих антенн на частотах излучения волоконных лазеров в качестве материалов рассматривается низкотемпературный InGaAs [10], имплантированный железом InGaAs [11], а также сверхрешётки ErAs:InGaAs [12] и InGaAs:InAlAs [13].

Терагерцовая спектроскопия, экспериментальные результаты. Для генерации и регистрации терагерцового излучения в малогабаритном спектрометре на основе двухканального волоконного лазера могут применяться как оба канала, так и один из них в варианте деления на два пучка. При помощи линии задержки регулируется временной сдвиг между регистрирующим лазерным и генерируемым терагерцовым импульсами, таким образом восстанавливается форма терагерцового сигнала во времени. Часть оптического излучения накачки может быть отведена и использована для предварительного возбуждения исследуемого объекта. Добавление в систему оптической линии задержки (ОЛЗ) возбуждающего импульса даёт возможность исследования динамики свойств материалов (с субпикосекундным разрешением) в различные моменты времени после возбуждения.

Для получения информации о свойствах исследуемого материала проводятся две процедуры измерения: с образцом и без образца. Полученные временные формы терагерцовых импульсов применяются при вычислении показателя преломления и коэффициента поглощения материала образца в терагерцовом диапазоне частот [14]:

$$H(\omega) = \frac{E_{\text{sam}}(\omega)}{E_{\text{ref}}(\omega)}, \quad (8)$$

$$n(\omega) = 1 - \frac{c}{\omega l} \arg H(\omega), \quad (9)$$

$$\alpha(\omega) = -\frac{2}{l} \ln \left(|H(\omega)| \frac{(1 + n(\omega))^2}{4n(\omega)} \right), \quad (10)$$

где ω — частота; $E_{\text{sam}}(\omega)$ и $E_{\text{ref}}(\omega)$ — преобразование Фурье временного терагерцового сигнала при наличии образца и без него; $n(\omega)$ — показатель преломления; $\alpha(\omega)$ — коэффициент поглощения; l — толщина образца.

В данной работе в качестве генератора фемтосекундных импульсов использована двухканальная волоконная лазерная система фирмы "ТОРТИСА Photonics" (Германия) (частота следования импульсов 76,845 МГц, первый канал: центральная длина волны 1550 нм, длительность импульса 90 фс, средняя мощность 260 мВт; второй канал: длина волны 775 нм, длительность импульса 100 фс, средняя мощность 100 мВт). Временной сдвиг

между импульсами двух каналов устанавливается в диапазоне $-250 \dots 250$ пс посредством блока электронной синхронизации ECOPS (Electrically Controlled OPTical Sampling) с погрешностью 60 фс.

Схема разработанного и созданного экспериментального образца малогабаритного терагерцового спектрометра с субпикосекундным разрешением в варианте генерации терагерцового излучения на поверхности кристалла InAs в магнитном поле (на отражение) представлена на рис. 1. Использован только канал второй гармоники волоконного лазера, излучение которого делилось на два пучка: один применяется для накачки терагерцового генератора, а другой — для регистрации терагерцового излучения. Пучок накачки модулируется акустооптическим модулятором (АОМ) МЛ-201 на частоте 25 кГц. Остаточное излучение накачки на длине волны 775 нм после генерации отфильтровывается пластинкой высокоомного кремния толщиной 400 мкм. Потери терагерцового излучения минимизированы, поскольку кремний практически прозрачен в этой области спектра, а пластинка установлена под углом Брюстера $\sim 70^\circ$. Регистрация осуществляется поляризационно-оптическим методом в кристаллах ZnTe ориентации $\langle 110 \rangle$. Разностный сигнал фотоприёмников регистрируется с помощью синхронного усилителя SR844 фирмы "Stanford Research Systems" (США) на частоте модуляции АОМ 25 кГц с временной константой фильтра ~ 100 мс. Сканирование всего терагерцового сигнала производится с помощью ОЛЗ, которая представляет собой линейный позиционер 8MT173-50-20 фирмы "Standa" (Литва) с установленным на нём уголковым отражателем. Диапазон перемещения позиционера составляет 50 мм с шагом 0,16 мкм, что соответствует интервалу 333 пс и разрешению 1 фс во временной области.

Типичная процедура сканирования содержит 6000 точек в интервале 60 пс и занимает время ~ 30 мин для достижения приемлемого уровня шумов. Этот интервал соответствует спектральному разрешению 15 ГГц. Увеличение интервала сканирования повышает спектральное разрешение, но уменьшает динамический диапазон [15]. Типичная форма

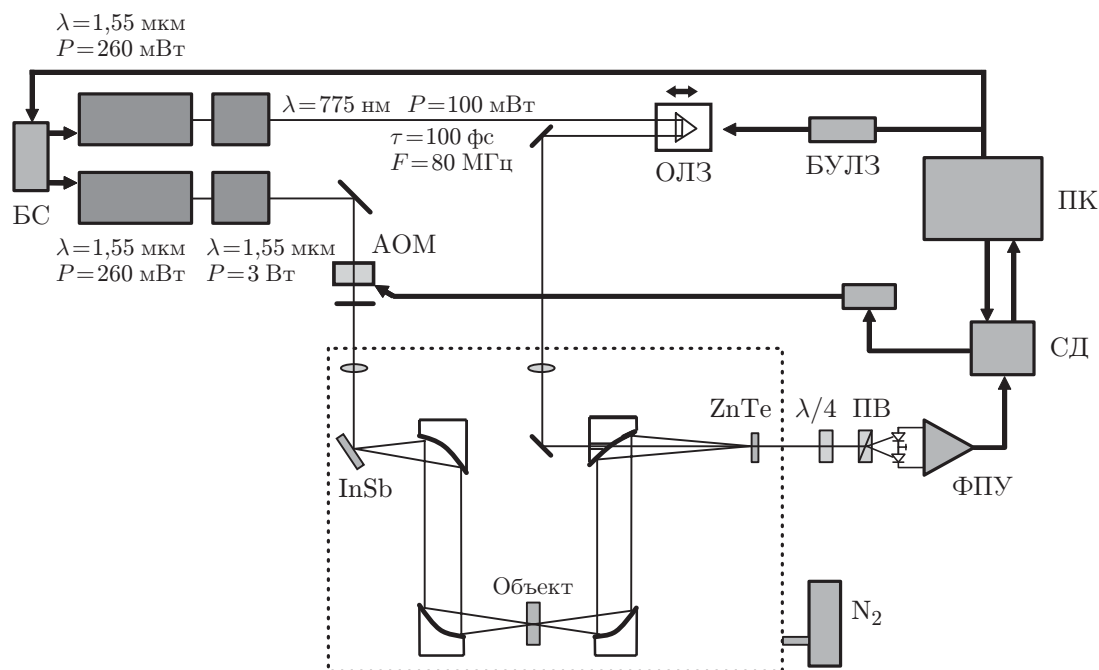


Рис. 1. Схема терагерцового спектрометра: ПВ — призма Волластона, БУЛЗ — блок управления линией задержки, БС — блок синхронизации, СД — синхронный детектор, ФПУ — фотоприёмное устройство

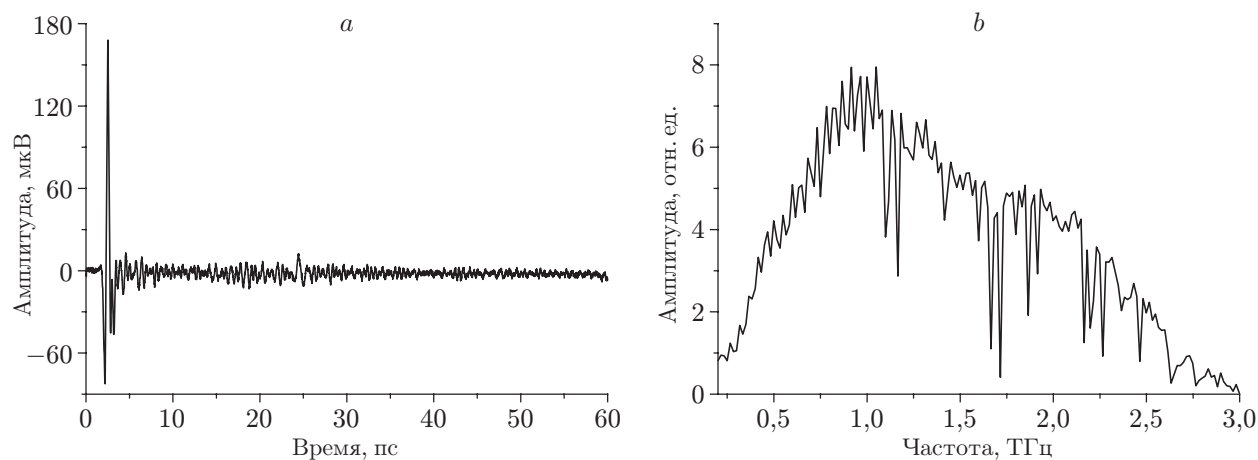


Рис. 2. Терагерцовый импульс: *a* — временная форма, *b* — спектр

терагерцового импульса и его спектра представлена на рис. 2, *a, b*.

Проведено сравнение эффективности генерации терагерцового излучения в кристалле ZnTe методом оптического выпрямления (на пропускание) и генерации на поверхности кристалла InAs в магнитном поле (на отражение). Для этого в одинаковых условиях, т. е. при одинаковых мощностях накачки, измерены напряжённости генерируемого терагерцового поля во времени и вычислено их преобразование Фурье. Сравнение показало, что применение кристаллов InAs предпочтительнее при используемых мощностях накачки (рис. 3, *a*).

Исследована зависимость формы спектра от толщины регистрирующего кристалла ZnTe (0,5, 1,0 и 2,0 мм) (рис. 3, *b*). Большой динамический диапазон в низких терагерцовых частотах наблюдался для более толстого кристалла и, наоборот, эффективность регистрации высоких терагерцовых частот возрастала в тонком кристалле. Это объясняется разницей условий фазового синхронизма для различных терагерцовых частот. При использовании кристалла InAs для генерации и кристалла ZnTe (толщиной 1 мм) для регистрации достигнут динамический диапазон 400 и ширина спектра 3 ТГц.

С помощью формул (8)–(10) можно определить коэффициент поглощения и показатель преломления исследуемого материала. Так, например, сравнение спектров, полученных

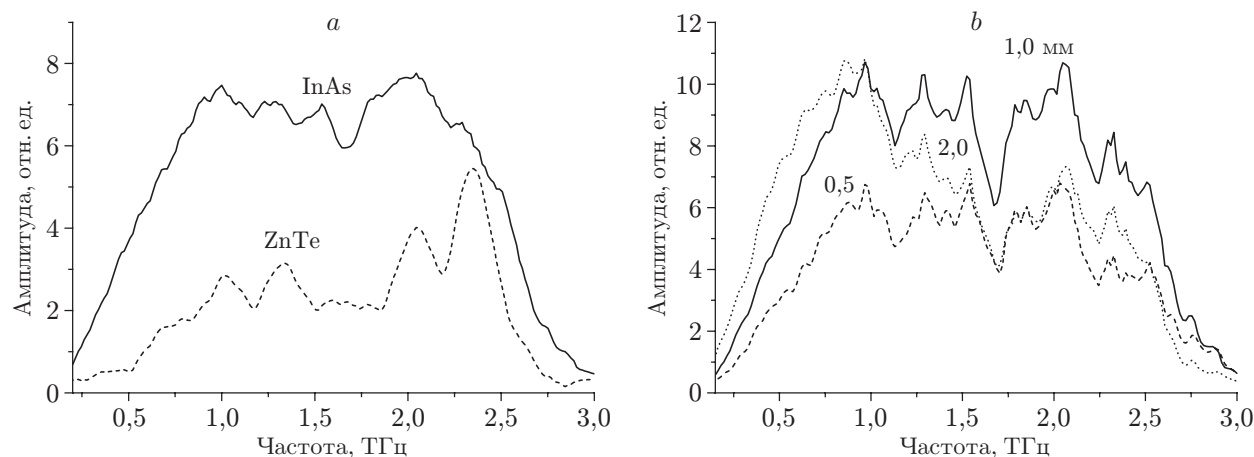


Рис. 3. Сравнение эффективности генерации и регистрации терагерцового излучения: *a* — генерация в кристаллах ZnTe (2 мм) и InAs, *b* — регистрация в кристаллах ZnTe различной толщины

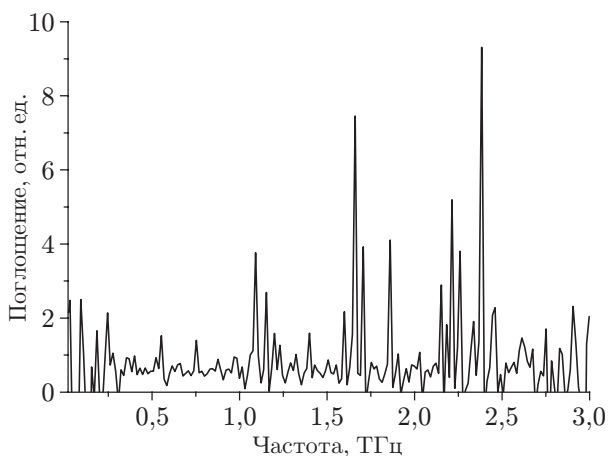
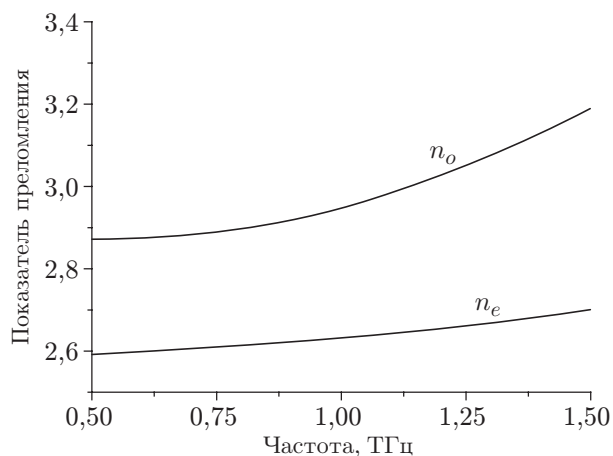


Рис. 4. Спектр поглощения воды

Рис. 5. Показатель преломления β -ВВО

при заполнении спектрометра воздухом и азотом, позволило выделить линии поглощения терагерцового излучения парами воды (рис. 4). Зависимости показателей преломления кристаллов β -ВВО от частоты вдоль оптической оси (n_e) и перпендикулярно ей (n_o) приведены на рис. 5. Полученные результаты показывают, что β -ВВО обладает значительным двулучепреломлением в терагерцовой области спектра и может быть использован для создания поляризационно-оптических устройств в этом диапазоне частот. Отметим, что экспериментальные результаты хорошо согласуются с данными других авторов [16, 17].

Заключение. Разработан малогабаритный терагерцовый спектрометр с накачкой и регистрацией терагерцового излучения на второй гармонике (775 нм) фемтосекундного волоконного лазера. Создан экспериментальный образец такой системы, в которой генерация осуществляется на поверхности кристалла InAs в магнитном поле, а для регистрации напряжённости терагерцового поля поляризационно-оптическим методом применяется кристалл ZnTe с ориентацией $\langle 110 \rangle$.

Спектрометр предназначен для решения задач материаловедения методами стационарной терагерцовой спектроскопии. Он может стать основой малогабаритных систем дистанционной диагностики (в том числе реализующих метод *rimpr-probe*), использующих особенности свойств объектов в терагерцовом диапазоне частот.

Экспериментально показано преимущество генерации терагерцового излучения на поверхности кристаллов на отражение по сравнению с вариантом на пропускание. Определена оптимальная толщина кристаллов ZnTe (1 мм) для регистрации напряжённости терагерцового поля. Эффективность работы спектрометра подтверждена путём сравнения экспериментальных и литературных данных (терагерцовый спектр поглощения воды и показатель преломления кристалла β -ВВО). Определены основные параметры спектрометра: спектральный диапазон 0,2–3,0 ТГц, спектральное разрешение 15 ГГц, динамический диапазон амплитуды терагерцового спектра 400.

Одновременное использование излучения первого канала волоконной лазерной системы (в перспективе усиленного до 3 Вт) для генерации терагерцового излучения и второго канала для регистрации позволит существенно расширить возможности спектрометра за счёт увеличения его динамического диапазона.

Авторы выражают благодарность Н. В. Жаворонкову и его сотрудникам (НИИ материаловедения, г. Зеленоград) за предоставленные образцы кристалла ZnTe.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Tonouchi M.** Cutting-edge terahertz technology // *Nature Photonics*. 2007. **1**, Is. 2. P. 97–105.
2. **Antsygin V. D., Mamrashev A. A., Nikolaev N. A., Potaturkin O. I.** Compact terahertz spectrometers: principles and applications // http://www.ets.ifmo.ru:8101/tomasov/konferenc/AutoPlay/Docs/Volume_2/5_03.pdf (дата обращения: 5.04.2010).
3. **Hebling J., Stepanov A. G., Almási G. et al.** Tunable THz pulse generation by optical rectification of ultrashort laser pulses with tilted pulse fronts // *Appl. Phys. B: Lasers and Optics*. 2004. **78**, Is. 5. P. 593–599.
4. **Nahata A., Welington A. S., Heinz T. F.** A wideband coherent terahertz spectroscopy system using optical rectification and electro-optic sampling // *Appl. Phys. Lett.* 1996. **69**, Is. 16. P. 2321–2323.
5. **Liu K., Xu J., Yuan T., Zhang X. C.** Terahertz radiation from InAs induced by carrier diffusion and drift // *Phys. Rev. B*. 2006. **73**, Is. 15. P. 155330–155335.
6. **Беспалов В. Г.** Сверхширокополосное импульсное излучение в терагерцовой области спектра: получение и применение // *Оптический журнал*. 2006. **73**, № 11. С. 28–37.
7. **Денисюк И. Ю., Бурункова Ю. Э., Смирнова Т. В.** Электрооптические материалы на основе тонких пленок молекулярных кристаллов. Преимущества и перспективы использования // *Оптический журнал*. 2007. **74**, № 2. С. 63–39.
8. **Kim T.-D., Kang J.-W., Luo J. et al.** Ultralarge and thermally stable electro-optic activities from supramolecular self-assembled molecular glasses // *Journ. Amer. Chemistry Soc.* 2007. **129**, N 3. P. 488–489.
9. **Takahashi H., Suzuki Y., Sakai M. et al.** Significant enhancement of terahertz radiation from InSb by use of a compact fiber laser and an external magnetic field // *Appl. Phys. Lett.* 2003. **82**, N 13. P. 2005–2007.
10. **Takazato A., Kamakura M., Matsui T. et al.** Terahertz wave emission and detection using photoconductive antennas made on low-temperature-grown InGaAs with 1.56 μm pulse excitation // *Appl. Phys. Lett.* 2007. **91**, N 1. 011102.
11. **Suzuki M., Tonouchi M.** Fe-implanted InGaAs terahertz emitters for 1.56 μm wavelength excitation // *Appl. Phys. Lett.* 2005. **86**, N 5. 051104.
12. **Ospald F., Maryenko D., von Klitzing K. et al.** 1.55 μm ultrafast photoconductive switches based on ErAs:InGaAs // *Appl. Phys. Lett.* 2008. **92**, N 13. 131117.
13. **Sartorius B., Roehle H., Kunzel H. et al.** All-fiber terahertz time-domain spectrometer operating at 1.5 μm telecom wavelengths // *Opt. Express*. 2008. **16**, N 13. P. 9560–9570.
14. **Withayachumnankul W., Fischer B. M., Lin H., Abbott D.** Uncertainty in terahertz time-domain spectroscopy measurement // *JOSA B*. 2008. **25**, Is. 6. P. 1059–1072.
15. **Jepsen P. U., Fischer B. M.** Dynamic range in terahertz time-domain transmission and reflection spectroscopy // *Opt. Lett.* 2005. **30**, Is. 1. P. 29–31.
16. **Xin X., Altan H., Saint A. et al.** Terahertz absorption spectrum of para and ortho water vapors at different humidities at room temperature // *Journ. Appl. Phys.* 2006. **100**, Is. 9. 094905.
17. **Liu J., Guo X., Dai J., Zhang X.** Optical property of beta barium borate in terahertz region // *Appl. Phys. Lett.* 2008. **93**, Is. 17. 171102.