УДК 535-14 + 621.373.8 + 681.785

С. Л. Микерин¹, К. Д. Потешкина^{1,2}, А. И. Плеханов¹

¹ Институт автоматики и электрометрии СО РАН пр. Акад. Коптюга, 1, Новосибирск, 630090, Россия

² Новосибирский государственный технический университет пр. К. Маркса, 20, Новосибирск, 630073, Россия

mikerinsl@iae.sbras.ru; pkd1990@yandex.ru; fractal@iae.nsk.su

ТЕРАГЕРЦОВЫЙ СПЕКТРОМЕТР НА ОСНОВЕ ФЕМТОСЕКУНДНОГО ЛАЗЕРА ДЛЯ НАУЧНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ ^{*}

Разработан спектрометр терагерцового частотного диапазона, использующий фемтосекундный титансапфировый лазер, и на его основе реализован экспериментальный стенд многоцелевого использования: как для получения спектров комплексного показателя преломления широкоапертурных образцов, так и для исследования эффективности генерации терагерцового излучения в нелинейно-оптических средах. Предложен способ абсолютной калибровки спектрометра по напряженности терагерцового поля при помощи внешнего контроля поляризации пробного излучения. Проведено измерение пороговой чувствительности к изменению поляризации, которая составила $1,4 \pm 0,5$ мкрад, что позволило оценить минимальную регистрируемую напряженность терагерцового поля в спектрометре ~ 0,1 В/см при использовании для регистрации кристалла теллурида цинка. Ширина аппаратной функции спектрометра, оцененная по узким линиям поглощения паров воды в воздухе, составила 9 ГГц, что согласуется с теоретической оценкой.

Ключевые слова: терагерцовый частотный диапазон, нелинейно-оптические среды, метод электрооптического стробирования, спектроскопия во временной области, титан-сапфировый фемтосекундный лазер.

Введение

Терагерцовое излучение принято относить к интервалу частот от 0,1 до 10 ТГц. Такие его особенности, как низкая энергия кванта (~ 10^{-2} эВ), возможность просвечивать диэлектрические материалы, идентифицировать органические молекулы по их уникальным спектрам поглощения [1] вызывают большой интерес к практическому применению терагерцового излучения [2–7] и стимулируют развитие методов его генерации, регистрации, спектральных методов исследования различных веществ [8–10]. Возможность регистрации терагерцовых колебаний электрического поля во временной области, продемонстрированная в работе [11] с помощью фотоуправляемых ключей и лазерных импульсов субпикосекундной длительности, заложила основу когерентной амплитудной спектроскопии во временной области в терагерцовом диапазоне (Terahertz Time-Domain Spectroscopy)¹.

Впоследствии были предложены различные физические основы для генерации и регистрации терагерцового излучения, в том числе генерация в оптической среде с квадратичной нелинейностью и регистрация

^{*} Работа выполнена при финансовой поддержке программы фундаментальных исследований Президиума РАН (№ 01201261917); работа К. Д. Потешкиной поддержана грантом НГТУ (№ 011-НСТ-13).

¹ RP Photonics Encyclopedia. URL: http://www.rp-photonics.com/spectroscopy.html

Микерин С. Л., Потешкина К. Д., Плеханов А. И. Терагерцовый спектрометр на основе фемтосекундного лазера для научных исследований // Вестн. Новосиб. гос. ун-та. Серия: Физика. 2014. Т. 9, вып. 2. С. 6–12.

в электрооптическом кристалле (см., например, обзоры [1-3; 12])². Рассмотрим их подробнее.

Широкополосное терагерцовое излучение в нелинейной оптической среде возникает в результате эффекта оптического выпрямления (появление постоянного электрического поля, пропорционального интенсивности оптического излучения). Под воздействием мощного оптического импульса в среде возникает импульс нелинейной поляризации, повторяющий форму огибающей интенсивности импульса накачки. Импульс тока, который является производной по времени импульса поляризации, приводит к излучению терагерцовых колебаний. По мере распространения в среде оптического и терагерцового импульсов интенсивность последнего может возрастать за счет накопления мощности в излучаемой волне (синхронизм). При длительности оптического импульса ~ 100 фс всплеск тока будет иметь соответствующую длительность $\tau \sim 1$ пс, а характерная ширина частотной полосы излучения составит ~ $2/\tau = 2$ ТГц [12. C. 36].

Метод электрооптического стробирования позволяет измерить волновую форму терагерцового импульса, т. е. измерить амплитуду и фазу поля. Термин «стробирование» означает, что напряженность поля измеряется на участке перекрытия терагерцовых колебаний со сверхкоротким оптическим импульсом, который задает временной строб, т. е. «ворота» для измерений, в пределах которых поле меняется медленно по сравнению с длительностью пробного импульса и может считаться квазипостоянным. При распространении в электрооптическом кристалле пробного и терагерцового импульсов с близкими скоростями их взаимное расхождение невелико. Поэтому можно считать, что пробный импульс оказывается под действием практически постоянного электрического поля терагерцовых колебаний на одном и том же участке терагерцового импульса при их распространении через всю толщину кристалла. Это поле изменяет показатели преломления для обыкновенной и необыкновенной оптических волн (эффект Поккельса), и между ними возникает разность фаз, пропорциональная напряженности терагерцового поля. Таким образом, измерение поляризации пробного импульса после кристалла-детектора дает информацию о напряженности терагерцового поля. Благодаря воспроизведению колебаний поля в каждом оптическом импульсе фемтосекундного лазера терагерцовые колебания оказываются когерентными с ними и воспроизводятся от импульса к импульсу. Многократные измерения воспроизводящихся колебаний позволяют промерить их волновую форму сканированием задержки между ними и пробными импульсами.

В некоторых случаях, например при изучении нелинейных свойств материалов, важно знать напряженность электрического поля в терагерцовом пучке. Абсолютную калибровку системы регистрации по напряженности поля можно провести двумя способами [12. С. 70]: измеряя среднюю мощность терагерцового излучения и калибруя чувствительность фотодиодов к изменению светового потока.

Основное практическое ограничение первого способа заключается в трудности измерения мощности терагерцового излучения на уровне 10 нВт, типичной для оптического выпрямления с помощью фемтосекундного лазера без усилителя. Также требуется знать радиус перетяжки терагерцового пучка на кристалле регистрации, измерение которого – отдельная экспериментальная задача; теоретическая оценка радиуса снижает достоверность калибровки.

При калибровке вторым способом с помощью отдельной процедуры выходные сигналы с фотодатчиков сопоставляются со средней мощностью пробного пучка и с изменением мошности в присутствии терагерцового поля. Затем напряженность поля вычисляется из теории электрооптического эффекта для идеального кристалла с известными электрооптическими коэффициентами. Реальные кристаллы из-за несовершенств технологии роста имеют встроенное двулучепреломление, которое варьируется от образца к образцу и приводит к систематической погрешности калибровки. Однако, как будет показано ниже, калибровку, связанную с электрооптическим эффектом, можно провести без специальной калибровки фотодатчиков и не использовать формулы для идеального кристалла.

² См. также: RP Photonics Encyclopedia. URL: http:// www.rp-photonics.com/electro_optic_sampling.html

Оптическая схема спектрометра

Для осуществления генерации и электрооптического стробирования использовались импульсы лазера на сапфире с титаном длительностью менее 100 фс и длиной волны 750 нм. Средняя мощность излучения составляла 210 мВт при частоте следования импульсов 110 МГц. Кристаллы теллурида цинка (ZnTe) с ориентацией <110> толщиной 0,5 мм использовались и как нелинейная среда для генерации, и как электрооптическая среда для детектирования терагерцовых колебаний.

На рис. 1 представлена оптическая схема спектрометра, в которой выполнены следующие требования: длины путей от точки деления лазерного импульса до кристалладетектора должны быть приблизительно одинаковыми по ветвям генерации и детектирования; пробный и терагерцовый импульсы должны быть сведены в пространстве и распространяться в кристалле детектора соосно. При разработке схемы также учитывалось, что минимальное количество оптических элементов уменьшает потери мощности терагерцового излучения и искажения фемтосекундного импульса.

В качестве делителя лазерного пучка *l* на пучок накачки (70%) и пробный пучок



Рис. 1. Оптическая схема терагерцового спектрометра: 1 - излучение фемтосекундного титан-сапфировоголазера; 2 – делитель пучка; 3 – поворотное зеркало;<math>4 - положительная линза; 5а – кристалл-генератор;56 – кристалл-детектор; 6а и 66 – параболическиезеркала; 7 – уголковый отражатель на подвижке; 8 –зеркало, совмещающее пучки; 9 – поляризатор; 10 –блок измерения поляризации; 11 – четвертьволноваяпластинка; 12 – призма Волластона; 13 – балансныйфотодетектор; 14 – синхронный детектор; 15 – компьютер для сбора данных и управления временнойзадержкой; 16 – прерыватель; 17 – область для размещения образцов

(30 %) используется плоское диэлектрическое зеркало 2 на тонкой подложке с просветляющим покрытием для предотвращения паразитных отражений. Линза 4 фокусирует излучение накачки в нелинейно-оптический кристалл 5а. Два внеосевых параболических зеркала ба и бб служат для сбора и коллимации терагерцового излучения в пучок диаметром 20 мм, определяемый апертурой зеркала, и для фокусировки его и пробного пучка в электрооптический кристалл-детектор 56. Заданный сдвиг по времени между пробным и терагерцовым импульсами обеспечивает оптическая линия задержки 7, состоящая из двух плоских зеркал с высоким коэффициентом отражения, расположенных под прямым углом друг к другу, установленных на подвижке, перемещающейся соосно с пучком. Сведение пучков осуществляется металлическим плоским зеркалом 8 размером 3 × 2 мм. Размер зеркала был выбран минимально возможным, чтобы как можно больший поток терагерцового излучения попадал в кристалл-детектор. Поляризатор 9 устанавливает линейную поляризацию пробного пучка.

Измерение поляризации в спектрометре с целью детектирования напряженности терагерцового поля осуществляется блоком 10 следующим образом. Поляризация пробного пучка после прохождения совместно с терагерцовым пучком через кристалл-детектор 56 становится эллиптической. Четвертьволновая пластинка 11 преобразует эллиптическую поляризацию в линейную. Угол между ее плоскостью и плоскостью исходной поляризации пропорционален амплитуде терагерцового поля. При противоположном знаке поля этот угол соответственно сменит знак. Чтобы зарегистрировать знак и величину этого угла поляризатор 12 разделяет пучок на два с взаимно перпендикулярными линейными поляризациями. Пучки попадают в балансный фотодетектор 13, выходное напряжение которого пропорционально разности фототоков. Когда терагерцовое поле отсутствует, оба пучка имеют одинаковую интенсивность и выходной сигнал равен нулю. Когда терагерцовое поле отлично от нуля, выходное напряжение принимает значение, пропорциональное его напряженности. Для измерения слабых сигналов применялся синхронный детектор 14 Unipan и прерыватель пучка накачки 16, который задавал опорный сигнал.

Пороговая чувствительность регистрирующей схемы измерения терагерцовых колебаний и калибровка спектрометра

Пороговая чувствительность по амплитуде сигнала не только характеризует уровень шумов в системе регистрации, но также может быть использована для определения абсолютной калибровки системы.

Электрооптический эффект терагерцового поля приводит к относительному сдвигу фаз между обыкновенной и необыкновенной волнами пробного излучения в кристалле регистрации. Связывая отклики фотодатчиков с изменением состояния поляризации пробного излучения с помощью вспомогательной калибровки, обычно вычисляют напряженность электрического поля [12]. Однако можно упростить вспомогательную калибровку, перенеся ее с энергетических на поляризационные характеристики, поскольку состояние поляризации пробного излучения измеряется регистрирующей схемой не зависимо от факторов, которые его изменяют. Таким образом, используя точный контроль поляризации пробного излучения, можно измерить пороговую чувствительность блока 10 к ее изменению. Далее оценка чувствительности к напряженности терагерцового поля рассчитывается по справочному значению полуволнового напряжения ZnTe.

Напряжение на вспомогательном электрооптическом модуляторе *1* (рис. 2) из кристалла бета-бората бария (ВВО) размером $5 \times 5 \times 20$ мм периодически принимало либо нулевое значение, либо U, задаваемое источником 2, при помощи ключа. Ключ управлялся генератором прямоугольных импульсов 3, которые служили также опорным сигналом синхронному детектору 4. Лазерный пучок, проходя сквозь поляризатор 5 и модулятор *1*, направлялся в блок измерения поляризации 6 (тот же, что и 10 на рис. 1). Измеренный средний уровень сигнала U_{вых} пропорционален разности фаз Г обыкновенной и необыкновенной волн, которая возникает в кристалле ВВО под действием напряжения U:

$$\Gamma(U) = \frac{\pi}{2} \frac{U}{U_{\pi/2}},\tag{1}$$

где $U_{\pi/2} = 2.8 \pm 0.1$ кВ – четвертьволновое напряжение модулятора на длине волны 750 нм.



Рис. 2. Схема измерения пороговой чувствительности к напряженности терагерцового поля: 1 – модулятор из ВВО; 2 – источник напряжения; 3 – генератор прямоугольных импульсов; 4 – синхронный детектор; 5 – поляризатор; 6 – блок измерения поляризации; 7 – излучение титан-сапфирового лазера

Для обеспечения одинаковых условий мощность пробного излучения перед блоком *6* устанавливалась равной мощности излучения в спектрометре перед этим блоком.

Постоянная времени синхронного детектора устанавливалась 0,3 с, что соответствует полосе пропускания $\Delta f_c = 0.83$ Гц, поэтому с целью оценки среднего уровня $U_{\rm вых}$ и среднеквадратичной амплитуды шумов *U*_{вых ш} выходной сигнал регистрировался в течение нескольких десятков секунд с помощью цифрового осциллографа TDS-2022. Источниками шумов в этих условиях выступают следующие факторы: нестабильность мощности лазерного излучения, дрейф частоты и флуктуации фазы управляющих импульсов генератора 3, дрейф напряжения на источнике 2, дрейф усиления балансного фотодетектора и другие, менее значимые факторы. По проведенным измерениям $U_{\text{вых ш}} = 2,5 \pm 1,0$ мВ при U = 0, что соответствует приведенной спектральной плотности шума 2,7 \pm 1,1 мВ/Гц^{1/2}. На рис. 3 показан типичный вид осциллограмм выходного сигнала при U = 0 и при $U = U_{\min}$, когда U_{вых} = U_{вых ш}. Измеренное таким способом значение $U_{\min} = 2,5 \pm 0,8$ мВ, а соответствующее ему минимальное значение набега разности фаз, рассчитанное по формуле (1), $\Gamma_{\min} = 1.4 \pm 0.5$ мкрад.

Пользуясь соотношением между набегом разности фаз и напряженностью поля терагерцовых колебаний в кристалле ZnTe, аналогичным выражению (1), можно теперь получить оценку минимальной регистрируемой в спектрометре напряженности поля в перетяжке собирающего зеркала (*66* на рис. 1):



Рис. 3. Типичный вид низкочастотных шумов в выходном сигнале при U = 0 (тонкая линия) и $U = U_{\min}$ (жирная линия) в схеме измерения чувствительности



Рис. 4. Волновая форма терагерцового импульса (*a*) и энергетический спектр (б) терагерцового импульса и шумов в установке при перекрытом терагерцовом излучении (серая линия)

$$E_{\text{THz min}} = \frac{1}{\pi d} \Gamma_{\text{min}} E_{\pi} =$$

= 0,08 ± 0,03 B/cm ~ 0,1 B/cm

где $E_{\pi} = 89,0$ кВ/см – полуволновая напряженность поля для кристалла ZnTe толщиной 1 мм [1. С. 41], d = 0,5 мм – толщина используемого кристалла. Таким образом, полученная оценка чувствительности дает коэффициент пропорциональности между регистрируемым сигналом и величиной терагерцового поля в перетяжке.

Ширина аппаратной функции спектрометра

Спектральное разрешение Фурье-спектрометров в основном определяется диапазоном задержки τ при сканировании [13]. Для прямоугольной сглаживающей функции ширина аппаратной функции на полувысоте составляет $\Delta v = 1, 21/\tau$ [14]. Однако в экспериментальных условиях информативная часть этого диапазона ограничивается затуханием волновой формы до уровня шумов. Неограниченное увеличение τ уже не будет улучшать спектральное разрешение, а приведенное выражение даст лишь оценку снизу. Более точно спектральное разрешение может быть определено из измерения т, при котором амплитуда регистрируемого сигнала сравнивается с амплитудой шума, а также, например, с использованием узких линий в спектре поглощения веществ.

На рис. 4 приведены волновая форма терагерцового импульса, прошедшего сквозь 50 см воздушный зазор, и вычисленный с помощью преобразования Фурье спектр его мощности (использовалось прямоугольное частотное окно). Колебания поля имеют затухающий характер, что характерно для терагерцовых импульсов, возникающих при оптическом выпрямлении [12. С. 55]. В конце интервала сканирования ($\tau \approx 136$ пс) амплитуда колебаний сравнима с шумами. Спустя ≈ 10 пс после начала импульса наблюдается его ослабленное повторение. Интервал 10 пс хорошо соответствует проходу импульсом накачки двойной толщины кристалла-генератора, т. е. повторный терагерцовый импульс возникает под действием паразитного отражения импульса накачки от выходной, а затем входной грани кристалла. Повторный терагерцовый импульс вносит искажения в спектр мощности в виде модуляции с периодом около 0,1 ТГц.

Основная доля мощности регистрируемого терагерцового импульса заключена в диапазоне частот от 0,5 до 2,5 ТГц. В высокочастотной области спектр ослаблен, в частности, из-за решеточного поглощения в кристаллах теллурида цинка. При этом, как видно, уровень спектра здесь превышает уровень шума на порядок.

В спектре импульса также различимы узкие провалы, соответствующие линиям поглощения паров воды в атмосферном воздухе [10]. Контуры линий поглощения в атмосферных условиях определяются столкновениями и очень близки к лоренцевским (шириной на полувысоте 5–6 ГГц; расчетная ширина аппаратной функции спектрометра по тому же уровню 8,9 ГГц).

Среди линий поглощения в диапазоне 0,5-2,5 ТГц были выделены несколько наиболее сильных (отмечены стрелками), интервал между которыми много больше минимально разрешимого частотного интервала, чтобы сравнить их параметры с табличными данными. Для этих линий аппаратная функция спектрометра в виде $\tau sinc(\pi \tau v)$ подгонялась к экспериментальным спектрам амплитуды. Исходя из известной ширины контура линии³ и используя функцию уширения за счет конечной ширины аппаратной функции, рассчитанную в [15], было определено, что ширина аппаратной функции нашего спектрометра равна ≈ 9 ГГц, что хорошо согласуется с интервалом сканирования.

Заключение

В разработанном спектрометре терагерцового частотного диапазона на основе фемтосекундного титан-сапфирового лазера и кристаллов ZnTe методом внешнего контроля поляризации пробного излучения измерена пороговая чувствительность к изменению поляризации, которая составила $1,4 \pm 0,5$ мкрад, что позволило получить порог чувствительности по амплитуде терагерцового поля ~ 0,1 В/см в перетяжке пучка и абсолютную калибровку по напряженности терагерцового поля. Ширина аппаратной функции спектрометра, оцененная по ширине узких линий паров воды в спектре поглощения воздушного промежутка, составила 9 ГГц, что хорошо согласуется с теоретической оценкой.

Список литературы

1. *Zhang X.-C., Xu J.* Introduction to THz wave photonics. Springer, 2010. 246 p. ISBN 978-1-4419-0977-0. DOI: 10.1007/978-1-4419-0978-7.

2. *Schmuttenmaer C. A.* Exploring Dynamics in the Far-Infrared with Terahertz Spectroscopy // Chem. Rev. 2004. Vol. 104. No. 4. P. 1759–1779.

3. Jepsen P. U., Cooke D. G., Koch M. Terahertz Spectroscopy and Imaging – Modern Techniques and Applications // Laser Photonics Rev. 2011. Vol. 5. No. 1. P. 124–166. DOI: 10.1002/lpor.201000011.

4. Brandt N. N., Chikishev A. Yu., Kargovsky A. V., Nazarov M. M. et al. Terahertz Time-Domain and Raman Spectroscopy of the Sulfur-Containing Peptide Dimers: Low-Frequency Markers of Disulfide Bridges // Vibrational Spectroscopy. 2008. Vol. 47. P. 53–58.

5. Jackson J. B., Mourou M., Whitaker J. F. et al. Terahertz Imaging for Non-Destructive Evaluation of Mural Paintings // Opt. Comm. 2007. Vol. 281. P. 527. DOI: 10.1016/j.optcom. 2007.10.049.

6. Назаров М. М., Шкуринов А. П., Кулешов Е. А. и др. Терагерцовая импульсная спектроскопия биологических тканей // Квантовая электроника. 2008. Т. 38, № 7. 647 с.

7. Вакс В. Л., Домрачева Е. Г., Никифоров С. Д. и др. Применение микроволновой нестационарной спектроскопии для неинвазивной медицинской диагностики // Изв. вузов. Радиофизика. 2008. Т. L1, № 6.

8. *Turchinovich D., Dijkhuis J. I.* Perfomance of Combined <100> – <110> ZnTe Crystals in an Amplified THz Time-Domain Spectrometer // Optics Communications 270. 2007. P. 96–99.

9. Sinyukov A. M., Hayden L. M. Generation and Detection of Terahertz Radiation with Multilayered Electro-Optic Polymer Films // Optics Letters. 2002. Vol. 27. No. 1. P. 55–57.

10. Анцыгин В. Д., Мамрашев А. А., Николаев Н. А. и др. Малогабаритный терагерцовый спектрометр с использованием второй гармоники фемтосекундного волоконного

³ GEISA: spectroscopic database. URL: http://www.pole-ether.fr/geisa/

лазера // Автометрия. 2010. Т. 46, № 3. С. 110–117.

11. Auston D. H., Cheung K. P., Smith P. R. Picosecond Photoconducting Hertzian Dipoles // Appl. Phys. Lett. 1984. Vol. 45, No. 3. P. 284–286.

12. Царёв М. В. Генерация и регистрация терагерцового излучения ультракороткими лазерными импульсами: Учеб. пособие. Н. Новгород, 2011. 74 с.

13. Мерц Л. Интегральные преобразования в оптике. М.: Мир, 1969. 181 с.

14. Белл Р. Дж. Введение в Фурьеспектроскопию. М.: Мир, 1975. 380 с.

15. Hoshina H., Seta T., Iwamoto T. et al. Precise Measurement of Pressure Broadening Parameters for Water Vapor with a Terahertz Time-Domain Spectrometer // J. of Quantitative Spectrosc. & Radiative Transfer 109. 2008. P. 2303–2314.

Материал поступил в редколлегию 08.11.2013

S. L. Mikerin¹, K. D. Poteshkina^{1,2}, A. I. Plekhanov¹

¹Institute of Automation and Electrometry of SB RAS 1 Koptyug Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation

² Novosibirsk State Technical University 20 Karl Marx, Novosibirsk, 630073, Russian Federation

mikerinsl@iae.sbras.ru; pkd1990@yandex.ru; fractal@iae.nsk.su

TERAHERTZ SPECTROMETER BASED ON FEMTOSECOND LASER FOR A SCIENTIFIC RESEARCH

Terahertz (THz) spectrometer using femtosecond titanium-sapphire laser was developed. Experimental stand of the multi-purpose application was realized by using this spectrometer. It was realized to obtaining of the complex refractive index spectra of a large aperture samples and to research of the emission efficiency of THz radiation in a nonlinear optical media. It was proposed a method of spectrometer's absolute calibration by THz electrical field through an external control of polarization of the probe radiation. The threshold sensitivity to polarization changes was measured. It was 1.4 ± 0.5 µrad. It allows to estimate the threshold of THz field strength ~ 0.1 V/cm when zinc telluride crystal is used to detection. Width of the apparatus function of spectrometer was 9 GHz and it was estimated from the width of narrow lines of the water vapor in absorption spectrum of air gap. It well agrees with the theoretical estimation.

Keywords: terahertz frequency range, nonlinear optical media, electro-optical sampling, timedomain spectroscopy, titanium-sapphire femtosecond laser.