

УДК 530.182+535-14

## О ГЕНЕРАЦИИ ТЕРАГЕРЦОВОГО ИЗЛУЧЕНИЯ В РЕЖИМЕ САМОИНДУЦИРОВАННОЙ ПРОЗРАЧНОСТИ В СИСТЕМЕ ПРИМЕСЕЙ, ОБЛАДАЮЩИХ ПОСТОЯННЫМ ДИПОЛЬНЫМ МОМЕНТОМ

*А.Н. Бугай, С.В. Сазонов*

### Аннотация

Рассмотрен резонансный механизм генерации терагерцового излучения, основанный на взаимодействии лазерного импульса с двухуровневыми квантовыми частицами, обладающими постоянным дипольным моментом. В случае, когда постоянный дипольный момент превосходит по величине дипольный момент перехода, резонансный механизм превосходит по эффективности нерезонансное оптическое выпрямление.

**Ключевые слова:** терагерцовое излучение, самоиндуцированная прозрачность, постоянный дипольный момент.

---

### Введение

Развитие методов генерации излучения терагерцового диапазона частот в последнее время происходит весьма интенсивно. Не в последнюю очередь это связано с нуждами растущего числа приложений, требующих источников интенсивного широкополосного излучения в субмиллиметровом диапазоне [1]. Большинство лазерных методов генерации терагерцового излучения без участия движения свободных носителей заряда является нерезонансными [2]. В качестве примера можно привести широко распространенный метод оптического выпрямления, основанный на генерации терагерцового излучения как разности крайних частот спектра фемтосекундного лазерного импульса в квадратично-нелинейном кристалле. Условием эффективного протекания данного процесса является равенство групповой скорости лазерного импульса и фазовой скорости терагерцового сигнала.

Явление самоиндуцированной прозрачности [3] является одним из наиболее хорошо изученных резонансных эффектов взаимодействия оптических импульсов с двухуровневой квантовой системой. В анизотропном случае, когда отсутствует симметрия относительно пространственной инверсии, диагональные матричные элементы оператора дипольного момента отличны от нуля. В этих условиях соответствующие частицы (полярные молекулы, несимметричные квантовые ямы и т. п.) обладают постоянным дипольным моментом, находясь в собственнo-энергетических состояниях. Оптический импульс здесь вызывает не только квантовые переходы между уровнями, но и динамически сдвигает их частоту за счет эффекта Штарка.

Резонансное взаимодействие импульсов с такими анизотропными частицами в последние годы интенсивно исследовалось как с теоретической стороны на предмет интегрируемости и наличия солитонных режимов распространения [4, 5], так и с прикладной, например, для осуществления генерации второй гармоники [6].

В настоящей работе рассмотрена возможность генерации терагерцового излучения за счет резонансного взаимодействия фемтосекундного лазерного импульса в среде с примесными центрами, обладающими постоянным дипольным моментом. В качестве основной среды рассмотрен квадратично-нелинейный кристалл, в котором возможна генерация по нерезонансному механизму оптического выпрямления. Таким образом, возможно изучение одновременного конкурирующего действия обоих механизмов (резонансного и нерезонансного) на процесс генерации терагерцовых импульсов.

## 1. Модельные уравнения

Пусть на входе лазерный импульс поляризован в плоскости необыкновенной волны, а его распространение происходит вдоль оси  $z$  в плоскости, перпендикулярной к оптической оси одноосного кристалла. При такой геометрии в кристалле будет присутствовать только необыкновенная волна. Волновое уравнение для импульсного поля  $E$  примет вид

$$\frac{\partial^2 E}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 P}{\partial t^2}, \quad (1)$$

где  $c$  – скорость света в вакууме,  $P$  – поляризационный отклик среды.

Представим электрическое поле импульса в виде суммы его оптической  $E_o$  и терагерцовой  $E_T$  компонент:

$$E = E_o + E_T. \quad (2)$$

Поляризационный отклик включает в себя четыре основные составляющие:

$$P = P_o + P_T + P_{nl} + P_R. \quad (3)$$

где  $P_o$  и  $P_T$  – линейные части нерезонансных поляризационных откликов в оптическом и терагерцовом диапазонах частот соответственно,  $P_{nl}$  – часть нерезонансного поляризационного отклика, соответствующая квадратичной нелинейности, а  $P_R$  отвечает за резонансное взаимодействие с двухуровневой системой.

Линейную восприимчивость в области оптической прозрачности можно с хорошей точностью представить в виде

$$\chi_o(\omega) = \chi + \frac{\alpha\omega^2}{2\pi} + \frac{\beta\omega^4}{2\pi} - \frac{\delta}{2\pi\omega^2}, \quad (4)$$

где  $\chi$  – безынерционная часть оптической восприимчивости;  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\delta$  – эмпирические константы.

Аналогично запишем выражение для терагерцовой восприимчивости вне области поглощения;

$$\chi_T(\Omega) = \chi_t - i \frac{\gamma\Omega}{4\pi} + \frac{g\Omega^2}{4\pi}. \quad (5)$$

Здесь  $\chi_t$  – безынерционная часть восприимчивости на терагерцовых частотах;  $\gamma$  и  $g$  – эмпирические константы.

Соответствующие выражения для поляризации во временной области легко получить согласно известному правилу  $\omega, \Omega \rightarrow -i\partial/\partial t$ .

Оптический импульс, содержащий достаточно много колебаний, обладает хорошо выраженными несущей частотой  $\omega$ , волновым числом  $k$  и огибающей  $\psi$ , так что можно записать:

$$E_o = \psi(z, t)e^{i(\omega t - kz)} + \text{к.с.} \quad (6)$$

Нерезонансную часть нелинейной поляризации представим в виде

$$P_{nl} = 2\chi_2(\omega, -\omega)|\psi|^2 + \chi_2(0, 0)E_T^2 + 2\chi_2(\omega, 0)[E_T\psi e^{i(\omega t - kz)} + \text{к.с.}], \quad (7)$$

где  $\chi_2(\omega, -\omega)$ ,  $\chi_2(0, 0)$ ,  $\chi_2(\omega, 0)$  – соответствующие частотные компоненты тензора нелинейной восприимчивости второго порядка. Здесь и далее мы пренебрегаем эффектом генерации второй гармоники ввиду того, что соответствующий синхронизм не выполняется.

Резонансная часть поляризационного отклика  $P_R$ , описывающая взаимодействие с двухуровневой системой, имеет вид

$$P_R = Nd_{12}(\rho_{12} + \rho_{21}) + Nd_{11}\rho_{11} + Nd_{22}\rho_{22}, \quad (8)$$

где  $N$  – концентрация примесей,  $d_{ij}$  и  $\rho_{ij}$  – соответствующие элементы операторов дипольного момента и матрицы плотности.

Для оптического импульса и поляризационного отклика на соответствующих частотах воспользуемся приближением медленно меняющихся огибающих. В этих условиях, пренебрегая быстро осциллирующими слагаемыми, волновое уравнение можно расщепить на две части, соответствующие оптическим и терагерцовым (близким к нулевым) частотам. Кроме того, для поля терагерцового сигнала применим приближение квазиоднонаправленного распространения [7].

Система нелинейных волновых уравнений, описывающая динамику импульсов и состояние среды, примет вид:

$$i \left( \frac{\partial \psi}{\partial t} + (v_g - v_T) \frac{\partial \psi}{\partial \zeta} \right) - bE_T\psi + \frac{\omega_2}{2} \frac{\partial^2 \psi}{\partial \zeta^2} - q\omega R = 0, \quad (9)$$

$$\frac{\partial E_T}{\partial t} - \eta \frac{\partial^2 E_T}{\partial \zeta^2} + \sigma \frac{\partial^3 E_T}{\partial \zeta^3} - b_T \frac{\partial}{\partial \zeta} |\psi|^2 + qv_T \frac{D}{d} \frac{\partial}{\partial \zeta} W = 0. \quad (10)$$

$$\frac{\partial R}{\partial t} - v_T \frac{\partial R}{\partial \zeta} = i \left( \Delta + \frac{DE_T}{\hbar} \right) R + i \frac{2d\psi W}{\hbar}, \quad (11)$$

$$\frac{\partial W}{\partial t} - v_T \frac{\partial W}{\partial \zeta} = \frac{id}{\hbar} (\psi^* R - \psi R^*), \quad (12)$$

Здесь  $\zeta = z - v_T t$ ;  $q = 2\pi N d n_g / n_0$ ;  $v_T$  – линейная скорость терагерцового импульса;  $v_g$ ,  $n_g$  и  $\omega_2 = -\partial^2 \omega / \partial k^2$  – групповая скорость, групповой показатель преломления и коэффициент дисперсии групповой скорости (ДГС) оптического импульса в случае отсутствия примесей, определяемые законом дисперсии  $k(\omega) = n_0 \omega (1 + \alpha \omega^2 + \beta \omega^4 - \delta \omega^{-2}) / c$ , где  $n_0 = \sqrt{1 + 4\pi \chi_e}$ . Постоянные  $\eta = \gamma v_T^2 / 2$ ,  $\sigma = g v_T^3 / 2$  задают поглощение и дисперсию в терагерцовом диапазоне, а коэффициенты  $b = 4\pi \chi_2(\omega, 0) \omega n_g / n_0$ ,  $b_T = 4\pi \chi_2(\omega, -\omega) v_g$  описывают нелинейное взаимодействие между обеими компонентами.

В уравнениях Блоха (11), (12)  $R = \rho_{12} \exp[i(\omega t - kz)]$ ,  $W = \rho_{22} - \rho_{11}$  – инверсия населенностей,  $\Delta = \omega_0 - \omega$  – отстройка от резонанса, а также введены обозначения  $d_{12} \equiv d$ ,  $D = d_{11} - d_{22}$ , где  $D$  – постоянный дипольный момент. Кроме того учтено, что длительность импульса намного меньше всех характерных времен релаксации. Неоднородным уширением пренебрегаем.

В условиях самоиндуцированной прозрачности форма импульса сохраняется при распространении, а его групповая скорость испытывает замедление. Таким образом, условие синхронизма для генерации терагерцового излучения можно записать в виде

$$v_g / (1 + q\tau_p^2 / (\Delta^2 \tau_p^2 + 1)) = v_{ph}, \quad (13)$$

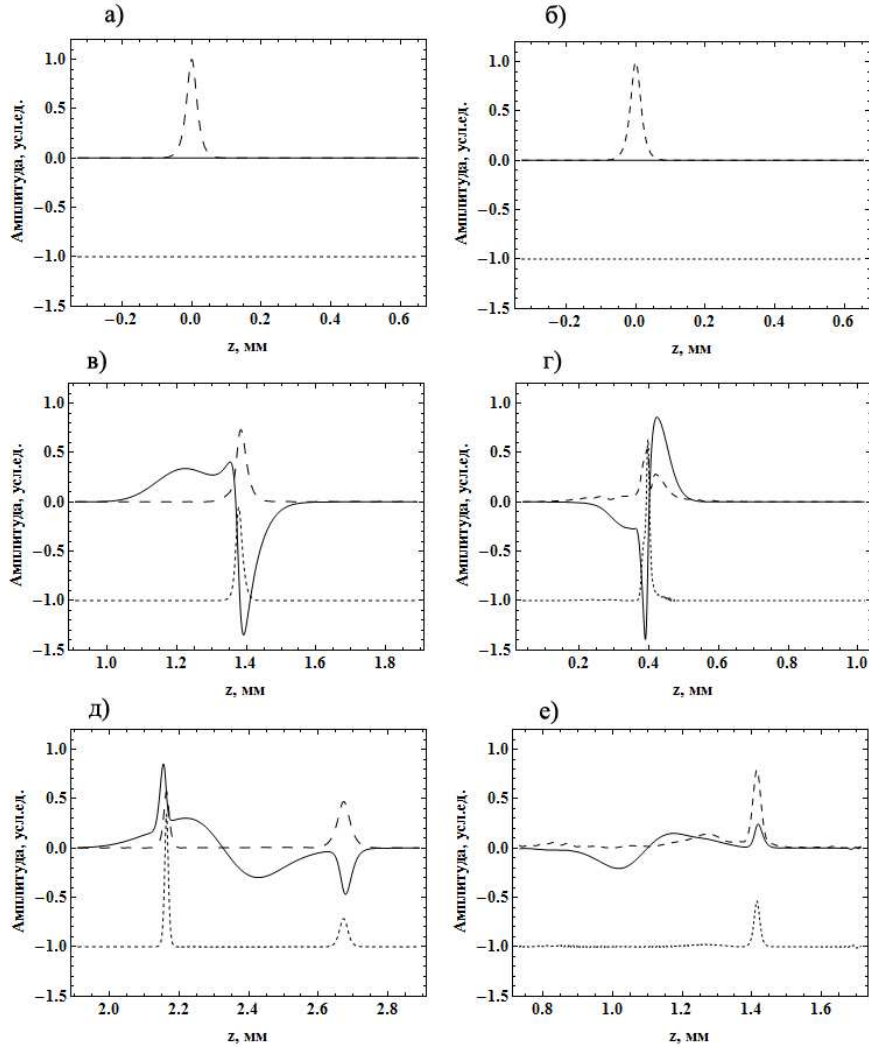


Рис. 1. Пространственно-временная эволюция модуля огибающей оптического импульса, поля терагерцового импульса и инверсии населенностей (штриховая, сплошная и пунктирная линии) в случаях  $D = 0$  (а, в, д),  $D = 10d$  (б, г, е). Амплитуды  $\psi$  и  $E_T$  нормированы на начальную величину поля импульса накачки в соотношении 1:1 для оптического импульса и 1:100 (а, в, д), 1:30 (б, г, е) для терагерцового импульса

где  $\tau_p$  – длительность импульса,  $v_{ph}$  – фазовая скорость терагерцового сигнала на заданной частоте. Таким образом, за счет замедления групповой скорости лазерного импульса синхронизм может быть достигнут и в кристаллах, где  $v_g > v_{ph}$ . Отметим также, что перестройка терагерцовой частоты может осуществляться путем изменения длительности лазерного импульса.

## 2. Результаты численного моделирования

Для дальнейшего исследования воспользуемся численным моделированием системы (9)–(12). Для простоты полагаем, что система квантовых уровней примесей находится в основном состоянии до подачи импульса. В качестве среды рассмотрим

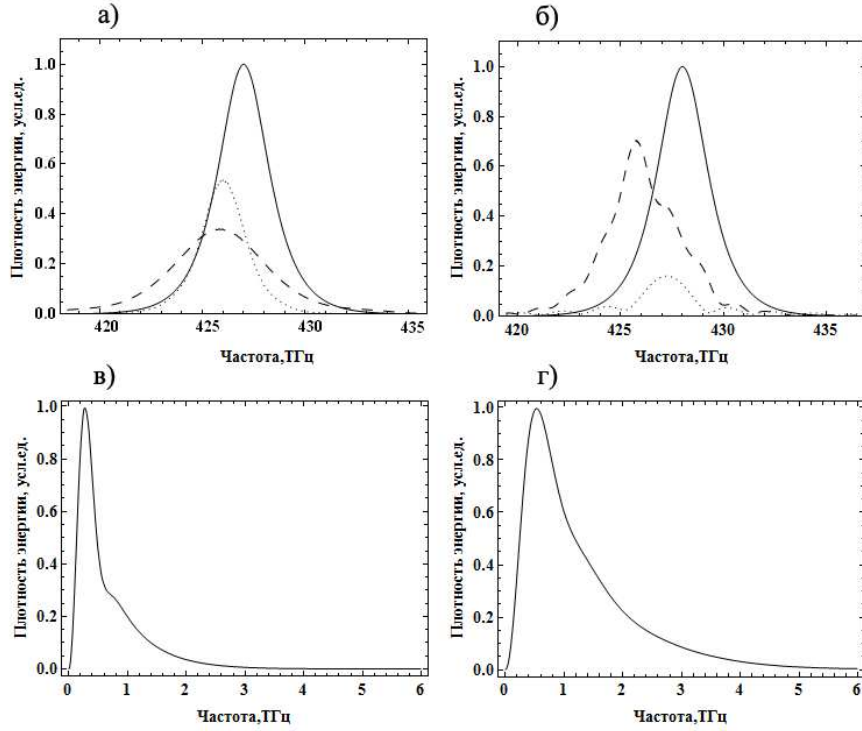


Рис. 2. Красный сдвиг спектров оптического импульса на асимптотической стадии генерации в случаях  $D = 0$  (а),  $D = 10d$  (б) (сплошная линия – спектр на входе в среду, штриховая и пунктирная линии соответствуют резонансному и нерезонансному импульсу). Спектр терагерцового импульса на переходной стадии генерации в случаях  $D = 0$  (в),  $D = 10d$  (г)

ниобат лития, обладающий достаточно большой нерезонансной нелинейностью. Здесь [8]  $\alpha = 1.61 \cdot 10^{-33} \text{ с}^2$ ,  $\beta = 2.5 \cdot 10^{-65} \text{ с}^4$ ,  $\delta = 4.88 \cdot 10^{27} \text{ с}^{-2}$ ,  $n_0 = 2.13$ . В терагерцовом диапазоне имеем:  $n_T = 5.099$ ,  $\gamma = 1.1 \cdot 10^{-13} \text{ с}$ ,  $g = 7.3 \cdot 10^{-27} \text{ с}^2$ . Таким образом,  $v_g/v_{ph} \sim 2$ . Величины нелинейных восприимчивостей:  $\chi_2(\omega, 0) = 6.78 \cdot 10^{-8} \text{ СГСЭ}$ ,  $\chi_2(\omega, -\omega) = 3.34 \cdot 10^{-7} \text{ СГСЭ}$ .

Пусть оптический импульс имеет энергию 60 мкДж, длительность 100 фс и длину волны 700 нм. Считая поперечный диаметр равным 1 мм и предполагая, что поперечное распределение интенсивности имеет гауссов профиль, а временное – вид гиперболического секанса, найдем, что пиковая интенсивность равна  $26 \text{ ГВт/см}^2$ . При указанных длительностях данная величина не превосходит предела для оптического пробоя в ниобате лития. Пусть недиагональные дипольные момент резонансных переходов равны  $d = 10^{-18} \text{ СГСЭ}$ . Тогда временная площадь импульса составит в точности  $2\pi$ . При концентрации примесных атомов  $N = 3.3 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$  условие (13) выполняется для частоты 1 ТГц. В качестве примесей наиболее привлекательны для использования наноструктуры, например нанокристаллы [9], преимуществами которых являются зависимость их оптических свойств от размера и геометрии. В связи с этим величина постоянного дипольного момента  $D$  может быть как больше, так и меньше  $d$  [6].

Рассмотрим влияние постоянного дипольного момента на процесс генерации. В общем случае в процессе эволюции (рис. 1) можно выделить две стадии: переходную и асимптотическую. На переходной стадии происходит генерация терагер-

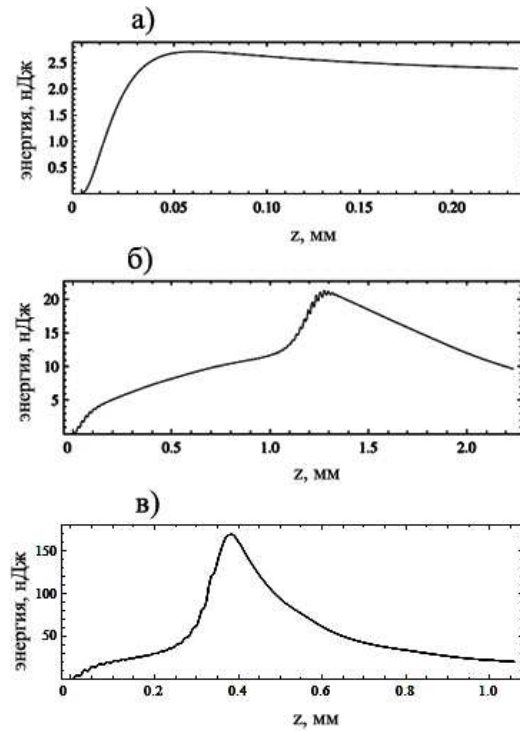


Рис. 3. Энергия генерируемого терагерцового излучения в зависимости от пробега в среде в случае: а) чистого кристалла, б) кристалла, содержащего примеси с  $D = 0$ , в) кристалла, содержащего примеси с  $D = 10d$

цового излучения в виде биполярного сигнала (рис. 1, в, г). В рассмотренном случае знаки нерезонансной квадратичной нелинейности и  $D$  выбраны таким образом, что соответствующие механизмы дают сигналы противоположной полярности. Как показывают вычисления, нерезонансный механизм доминирует при  $D/d < 2$ , в то время как при достижении указанного предела эффективность генерации уменьшается до нуля, а затем начинает доминировать резонансный механизм. Знак поля терагерцового импульса при этом заменяется на противоположный. Отметим, что резонансный механизм позволяет получить большую эффективность преобразования, которая растет с увеличением отношения  $D/d$ .

С началом переходной стадии (рис. 1, д, е) эффективность генерации достигает некоторого предела, а затем постепенно уменьшается. Здесь происходит разделение оптического импульса на две части, одна из которых находится в резонансе с системой примесей, а вторая незначительно выходит из него. Образовавшиеся импульсы захватывают части терагерцового сигнала в виде однополярных импульсов, в дальнейшем распространяясь с ними синхронно. Данные объекты могут быть отождествлены с длинно-коротковолновыми солитонами самоиндуцированной прозрачности, рассматривавшимися в работе [5]. Отметим, что резонансный импульс при  $D \neq 0$  имеет гораздо меньшую амплитуду, чем нерезонансный (рис. 1, е), что связано с более эффективной перекачкой энергии в терагерцовый диапазон.

Спектр оптического импульса в процессе генерации испытывает непрерывное смещение в красную область (рис. 2, а, б), достигающее насыщения с образованием солитонов. Описанный эффект приводит к выводу системы из резонанса с примесными центрами и уменьшению эффективности генерации за счет нарушения

синхронизма. Данный процесс можно подавить, задавая на входе небольшую отрицательную отстройку от резонанса. Таким образом, в результате красного смещения несущая частота импульса войдет в резонанс. Спектр терагерцового сигнала также деформируется, смещаясь в область более низких частот. Это связано как с поглощением в кристалле, так и с деформацией оптической накачки. Отметим, что резонансный механизм генерации дает более широкий терагерцовый спектр (рис. 2, в, г).

На рис. 3 приведены энергетические эффективности генерации. В случае отсутствия резонансных примесей энергия терагерцовых импульсов невелика по причине отсутствия синхронизма в коллинеарном режиме. При наличии примесных центров, не обладающих постоянным дипольным моментом ( $D = 0$ ), эффективность преобразования повышается, становясь сравнимой с достигаемой при использовании импульсов с наклонными фронтами [10]. Наконец, при  $D/d = 10$  эффективность возрастает еще почти на порядок. Таким образом, при наличии сильной анизотропии квантовых частиц можно достичь значительного повышения энергетической эффективности генерации терагерцового излучения.

### Заключение

В настоящей работе рассмотрен резонансный метод генерации терагерцового излучения в режиме самоиндуцированной прозрачности на системе примесей, обладающих постоянным дипольным моментом. В режиме самоиндуцированной прозрачности также можно достичь синхронизма вследствие замедления групповой скорости лазерного импульса до фазовой скорости терагерцового излучения. При достаточно высокой степени анизотропии, что выражается отношением  $D/d$ , резонансный механизм генерации более эффективен, чем нерезонансный механизм оптического выпрямления. Для повышения эффективности генерации необходимо подавать входной импульс с небольшой (порядка доли процента) отрицательной относительной отстройкой от резонанса. В процессе генерации можно выделить две стадии: переходную и асимптотическую. В ходе последней возможно образование формирования оптико-терагерцовых солитонов.

В качестве примесей весьма перспективно использовать несимметричные наноструктуры, такие, как нанокристаллы. Их преимуществом является большая величина дипольных моментов переходов, а также возможность регулировать оптические свойства подбором формы и геометрии. Так как основным параметром, позволяющим регулировать частоту получаемого терагерцового сигнала, является не частота импульса накачки, а его временная длительность, то выбор частоты двухуровневых переходов в примесных атомах может быть достаточно произволен.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (проект № 09-02-00503-а) и Фонда «Династия».

### Summary

*A.N. Bugay, S.V. Sazonov. On Generation of Terahertz Radiation in the Self-Induced Transparency Regime in a System of Impurities with a Permanent Dipole Moment.*

The article deals with the resonant mechanism of the generation of terahertz radiation based on the interaction between a laser pulse and two-level quantum particles with a permanent dipole moment. In the case when the permanent dipole moment exceeds the transition dipole moment, the resonant mechanism is more efficient compared to the nonresonant optical rectification.

**Key words:** terahertz radiation, self-induced transparency, permanent dipole moment.

## Литература

1. *Siegel P.H.* Terahertz technology // IEEE Trans. Microwave Theory Tech. – 2002. – V. 50, No 3. – P. 910–928.
2. *Kitaeva G.Kh.* Terahertz generation by means of optical lasers // Laser Phys. Lett. – 2008. – V. 5, No 8. – P. 559–576.
3. *McCall S.L., Hahn E.L.* Self-induced transparency // Phys. Rev. – 1969. – V. 183, No 2. – P. 457–489.
4. *Agrotis M., Ercolani N.M., Glasgow S.A., Moloney J.V.* Complete integrability of the reduced Maxwell–Bloch equations with permanent dipole // Physica D. – 2000. – V. 138, No 2. – P. 134–162.
5. *Сазонов С.В., Устинов Н.В.* Режимы резонансной прозрачности в условиях синхронизма длинных и коротких волн // ЖЭТФ. – 2005. – Т. 127, № 2. – С. 289–307.
6. *Kočinac M., Ikonić Z., Milanović V.* The influence of permanent dipole moments on second harmonic generation in asymmetric semiconductor quantum wells // Optics Commun. – 1997. – V. 140. – P. 89–92.
7. *Caudrey P.J., Eilbeck J.C., Gibbon J.D., Bullough R.K.* Exact multisoliton solution of inhomogeneously broadened self-induced transparency equations // J. Phys. A.: Math. Nucl. Gen. – 1973. – V. 6. – P. L53–L56.
8. *Nikogosyan D.N.* Nonlinear Optical Crystals: A Complete Survey. – N. Y.: Springer, 2005. – 427 p.
9. *Li Liang-shi, Alivisatos A.P.* Origin and Scaling of the Permanent Dipole Moment in CdSe Nanorods // Phys. Rev. Lett. – 2003. – V. 90, No 9. – P. 097402-1–097402-4.
10. *Stepanov A.G., Kuhl J., Kozma I.Z., Riedle E., Almási G., Hebling J.* Scaling up the energy of THz pulses created by optical rectification // Opt. Expr. – 2005. – V. 13, No 15. – P. 5762–5768.

Поступила в редакцию  
01.02.10

---

**Бугай Александр Николаевич** – кандидат физико-математических наук, научный сотрудник Объединенного института ядерных исследований, г. Дубна.

E-mail: [bugay\\_aleksandr@mail.ru](mailto:bugay_aleksandr@mail.ru)

**Сазонов Сергей Владимирович** – доктор физико-математических наук, ведущий научный сотрудник Российского научного центра «Курчатовский институт»; профессор Московского авиационного института (государственного технического университета), г. Москва.

E-mail: [sazonov.sergey@gmail.com](mailto:sazonov.sergey@gmail.com)