

# Перекрытие спектра однопериодного терагерцового импульса, уширяемого в нелинейной среде из-за фазовой самомодуляции, и спектра излучения, генерируемого в его поле на утроенных частотах

И.Р. Арцер<sup>1</sup>, М.В. Мельник<sup>1</sup>, А.Н. Цыпкин<sup>1</sup>, С.А. Козлов<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Университет ИТМО, 197101, Россия, г. Санкт-Петербург, Кронверкский пр., д. 49

## Аннотация

При уменьшении числа колебаний поля в оптическом импульсе спектр излучения, генерируемого на утроенных частотах, и спектр основного импульса, уширяемый из-за фазовой самомодуляции при его распространении в среде с кубической нелинейностью, начинают перекрываться. В работе показано, что модуль степени перекрытия этих спектров для однопериодного импульса составляет  $|s| = 0,85$ . Данные комплексные спектры сдвинуты по фазе на  $\pi$ , что взаимно ослабляет нелинейные эффекты генерации излучения утроенных частот и фазовой самомодуляции основной части импульса. Для однопериодного импульса коэффициент ослабления составляет 7,7. Неоднородность взаимного ослабления нелинейных эффектов по частоте приводит к тому, что излучение на утроенной частоте по отношению к частоте максимума спектра однопериодной волны в нелинейной среде не возникает, а максимум спектра генерируемого высокочастотного излучения смещается на учетверённые частоты. Таким образом, для терагерцовых волн из малого числа колебаний открываются новые возможности управления их параметрами в ходе нелинейных процессов в оптических средах.

**Ключевые слова:** импульсное ТГц излучение, фазовая самомодуляция, генерация излучения утроенных частот, степень перекрытия спектров, коэффициент взаимного ослабления нелинейных эффектов.

**Цитирование:** Арцер, И.Р. Перекрытие спектра однопериодного терагерцового импульса, уширяемого в нелинейной среде из-за фазовой самомодуляции, и спектра излучения, генерируемого в его поле на утроенных частотах / И.Р. Арцер, М.В. Мельник, А.Н. Цыпкин, С.А. Козлов // Компьютерная оптика. – 2024. – Т. 48, № 1. – С. 61-67. – DOI: 10.18287/2412-6179-CO-1299.

**Citation:** Artser IR, Melnik MV, Tsyppkin AN, Kozlov SA. The spectrum broadening of a single-cycle terahertz pulse caused by phase self-modulation in a nonlinear medium and the spectrum of radiation generated in its field at tripled frequencies. Computer Optics 2024; 48(1): 61-67. DOI: 10.18287/2412-6179-CO-1299.

## Введение

Терагерцовое (ТГц) излучение впервые экспериментально было получено почти 100 лет назад советской ученой А.А. Глаголевой–Аркадьевой [1]. Полезно отметить, что ТГц излучение, находясь на пересечении оптического и радиодиапазонов, обладает особенностями обеих областей спектров электромагнитного излучения. Важной отличительной чертой большинства нынешних источников импульсного ТГц излучения является то, что они генерируют импульсы, состоящие всего из нескольких колебаний электрического поля. В том числе возможна генерация ТГц импульсов, которые представляют собой лишь одно полное колебание поля излучения [2]. Такие предельно короткие по числу колебаний ТГц импульсы называют однопериодными. Методы генерации импульсного ТГц излучения основаны, как правило, на различных нелинейных эффектах [3–7]. Развитие этих методов в последние годы привело к созданию источников ТГц импульсов высокой интенсивности. Например, в органических кристаллах методом оптического выпрямления фемтосекундных

импульсов ближнего ИК диапазона спектра были сгенерированы ТГц импульсы с интенсивностью более  $10 \text{ ТВт/см}^2$  [8], а в источниках, основанных на оптическом пробое, – порядка  $8 \text{ ТВт/см}^2$  [9]. Достижение таких высоких интенсивностей у ТГц импульсов открыло возможности для развития нелинейной оптики ТГц излучения [10–14]. Пионерские работы в этой области показали как теоретически, так и экспериментально, что нелинейный показатель преломления материалов в ТГц-спектральном диапазоне может превосходить для одних и тех же сред значения для видимого и ближнего ИК диапазонов на несколько порядков [15–17]. Помимо высоких значений, нелинейность в этом диапазоне обладает малой инерционностью [18, 19], что является многообещающим критерием для устройств нелинейной ТГц фотоники.

К настоящему времени было показано, что нелинейные явления в средах при взаимодействии с веществом высокоинтенсивного импульсного ТГц излучения обладают рядом особенностей. Например, для волн из малого числа колебаний явление самофокусировки может не наблюдаться даже в том случае, когда интенсивность излучения превышает пороговое

значение самофокусировки во много раз [20]. В поле однопериодных ТГц импульсов могут значительно изменяться такие классические явления нелинейной оптики, как генерация второй и третьей гармоник [21 – 23]. В работе [22] теоретически было показано, что в случае ТГц импульса, который состоит только из одного полного колебания электрического поля, возникающая в нелинейной среде единая сверхуширенная спектральная структура формируется за счёт перекрытия спектра излучения, генерируемого на утроенных частотах, и спектра на основных частотах импульса, уширяемого из-за фазовой самомодуляции излучения. Интерференционный минимум этой структуры может оказаться на третьей гармонике по отношению к центральной частоте входного импульса, а максимум – на её четвертой гармонике. В работе [24] указанный эффект был продемонстрирован экспериментально.

В настоящей работе теоретически исследуются особенности перекрытия спектра однопериодного импульса, уширяемого в нелинейной среде из-за фазовой самомодуляции, и спектра генерируемого излучения на утроенных частотах. Показано, что модуль степени такого перекрытия для однопериодного импульса составляет  $|s|=0,85$ . Комплексные спектры сдвинуты по фазе на  $\pi$ , что взаимно ослабляет эти нелинейные эффекты. Коэффициент ослабления для однопериодного импульса составляет  $k=7,7$ . Наблюдаемый в экспериментах сдвиг максимума спектра, генерируемого в нелинейной среде в поле однопериодных импульсов высокочастотного излучения на учетверённые частоты объяснён неоднородностью по частоте взаимного ослабления нелинейных эффектов.

### Уравнение динамики поля и его нормировка

Параксиальное распространение линейно поляризованного импульсного ТГц излучения в изотропной нелинейной среде может быть описано с помощью полевого уравнения [25, 26]:

$$\frac{\partial E}{\partial z} + \frac{N_0}{c} \cdot \frac{\partial E}{\partial t} - a \frac{\partial^3 E}{\partial t^3} + g_2 E^2 \frac{\partial E}{\partial t} = \frac{c}{2N_0} \Delta_{\perp} \int_{-\infty}^t E dt', \quad (1)$$

где  $E$  – напряжённость электрического поля,  $z$  – координата, вдоль которой происходит распространение излучения,  $c$  – скорость света в вакууме,  $N_0$  и  $a$  – эмпирические постоянные, описывающие зависимость линейного показателя  $n$  преломления от частоты  $\omega$  в виде  $n(\omega) = N_0 + ca\omega^2$ ,

$$\Delta_{\perp} = \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}$$

поперечный лапласиан,  $x$  и  $y$  – поперечные направлению распространения излучения координаты,  $g_2 = 2n^2/c$  – коэффициент, характеризующий кубическую нелинейность среды,  $n_2$  – её коэффициент нелинейного показателя преломления.

Для теоретического анализа и нахождения решений уравнение (1) удобно нормировать, используя безразмерные переменные [24]:

$$\tilde{E}(\tilde{z}, \tilde{t}) = \frac{E(z, t)}{E_0}, \quad \tilde{z} = \frac{zN_0}{c\tau_0}, \quad \tilde{t} = \frac{t}{\tau_0}, \quad \tilde{x} = x/r_0, \quad \tilde{y} = y/r_0,$$

где  $E_0$  – амплитуда ТГц импульса,  $\tau_0$  – характерное время нарастания поля импульса от нуля до максимума,  $r_0$  – поперечный размер пучка. Тогда в новых переменных уравнение (1) примет следующий вид:

$$\frac{\partial \tilde{E}}{\partial \tilde{z}} + \frac{\partial \tilde{E}}{\partial \tilde{t}} - \mu_{disp} \frac{\partial^3 \tilde{E}}{\partial \tilde{t}^3} + \mu_{nl} \tilde{E}^2 \frac{\partial \tilde{E}}{\partial \tilde{t}} = \mu_{diff} \tilde{\Delta}_{\perp} \int_{-\infty}^{\tilde{t}} \tilde{E} d\tilde{t}', \quad (2)$$

где

$$\mu_{disp} = \frac{ca}{N_0 \tau_0^2}, \quad \mu_{diff} = \frac{c^2 \tau_0^2}{2N_0^2 r_0^2}, \quad \mu_{nl} = \frac{4\Delta n_{nl}}{N_0},$$

$$\tilde{\Delta}_{\perp} = \frac{\partial^2}{\partial \tilde{x}^2} + \frac{\partial^2}{\partial \tilde{y}^2}, \quad \Delta n_{nl} = \frac{1}{2} n_2 E_0^2 (CGC) = n_2' I (CI),$$

$$n_2 (CGC) = cN_0 / (40\pi) n_2 (CI),$$

$I$  – интенсивность ТГц импульса.

При использованной выше нормировке переменных значения производных и интеграла по времени в уравнении (2), по крайней мере на начальном этапе описания распространения импульса, имеют порядок единицы. Поэтому доминирование в эволюции полевой структуры импульса явлений дисперсии, дифракции или нелинейной рефракции определяется величиной коэффициентов  $\mu_{disp}$ ,  $\mu_{diff}$  и  $\mu_{nl}$ .

В настоящей работе рассмотрим случай, когда  $\mu_{nl} \gg \mu_{disp}, \mu_{diff}$ , т.е. когда дифракция и дисперсия оказывают на эволюцию поля импульса значительно меньшее влияние, чем нелинейность среды, и ими можно пренебречь. Рассмотрим, когда такое приближение возможно, для следующих сред: этанола ( $C_2H_6O$ ), кристалла кремния (Si) и кристалла ниобата лития ( $LiNbO_3$ ). Выбор именно этих сред обусловлен их большим коэффициентом нелинейного показателя преломления  $n_2'$  в ТГц-диапазоне частот:  $6 \cdot 10^{-9} \text{ см}^2/\text{Вт}$  [17],  $3,5 \cdot 10^{-12} \text{ см}^2/\text{Вт}$  [28] и  $7 \cdot 10^{-11} \text{ см}^2/\text{Вт}$  [16] соответственно.

Параметры, описывающие дисперсию показателя преломления в ТГц диапазоне, имеют значения: для этанола  $N_0=1,7$ ,  $a=-8 \cdot 10^{-36} \text{ с}^3/\text{м}$  [29], для кремния  $N_0=3,2$ ,  $a=1,4 \cdot 10^{-35} \text{ с}^3/\text{м}$  [30] и для ниобата лития  $N_0=5,12$ ,  $a=4,47 \cdot 10^{-36} \text{ с}^3/\text{м}$  [31]. Характерное время изменения поля импульса в ТГц диапазоне составляет  $\tau_0=1$  пс. Радиус пучка при проведении оценок будем полагать равным  $r_0=10\lambda$ , где  $\lambda=0,3$  мм – длина волны ТГц импульса. Рассчитанные величины  $\mu_{disp}$  и  $\mu_{diff}$  при этих параметрах материалов и излучения приведены в табл. 1. Там же указаны значения интенсивности излучения, при которых  $\mu_{nl}$  значительно превосходит  $\mu_{disp}$  и  $\mu_{diff}$ . Все эти значения достижимы в лабораторных условиях.

Табл. 1. Значения коэффициентов, характеризующих вклад в эволюцию поля импульса в разных средах дисперсии, дифракции и нелинейной рефракции

Среда	$ \mu_{disp} $	$\mu_{diff}$	$\mu_{nl}$
C <sub>2</sub> H <sub>6</sub> O	$1,4 \cdot 10^{-3}$	$1,7 \cdot 10^{-3}$	$1,4 \cdot 10^{-2}$ (для $I \sim 10^6$ Вт/см <sup>2</sup> )
Si	$1,3 \cdot 10^{-3}$	$4,9 \cdot 10^{-4}$	$4,4 \cdot 10^{-3}$ (для $I \sim 10^9$ Вт/см <sup>2</sup> )
LiNbO <sub>3</sub>	$2,6 \cdot 10^{-4}$	$1,9 \cdot 10^{-4}$	$5,5 \cdot 10^{-3}$ (для $I \sim 10^8$ Вт/см <sup>2</sup> )

Из табл. 1 видно, что для всех трех сред  $\mu_{nl} \gg \mu_{disp}, \mu_{diff}$ , т.е. дифракция и дисперсия оказывают на эволюцию поля импульса значительно меньшее влияние, чем нелинейность среды. Таким образом, ими можно пренебречь, и уравнение (2) записать в виде:

$$\frac{\partial \tilde{E}}{\partial \tilde{z}} + \frac{\partial \tilde{E}}{\partial \tilde{t}} + \mu_{nl} \tilde{E}^2 \frac{\partial \tilde{E}}{\partial \tilde{t}} = 0. \quad (3)$$

В данном уравнении поле  $\tilde{E}$  зависит от поперечных координаты  $\tilde{x}$  и  $\tilde{y}$  лишь параметрически, поскольку явлением дифракции по заданным условиям можно пренебречь. Это означает, что на границе нелинейной среды поле в рассматриваемой задаче, которая описывается уравнением (3), по-прежнему может зависеть от поперечной координаты  $E = E(x, y, z, t)$ , например, иметь Гауссово поперечное распределение. Тогда в центре пучка, где поле на границе среды больше, его изменения в нелинейной среде в соответствии с нелинейным уравнением (3) будут сильнее. На периферии пучка – меньше. Но в приближении математической модели (3) изменение формы поля с расстоянием  $z$  рассчитывается для полей с различными координатами  $x$  и  $y$  независимо.

**Решение уравнения динамики поля методом последовательных приближений**

Общее решение уравнения (3) можно найти итерационным методом, поскольку, как выше было показано, при рассмотренных значениях интенсивности излучения выполняется неравенство  $\mu_{nl} \ll 1$ . Таким образом, решение (3) может быть представлено в виде разложения в ряд по малому параметру:

$$\tilde{E}(\tilde{z}, \tilde{t}) = E^{(0)}(\tilde{z}, \tilde{t}) + \mu_{nl} E^{(1)}(\tilde{z}, \tilde{t}) + \mu_{nl}^2 E^{(2)}(\tilde{z}, \tilde{t}) + \dots, \quad (4)$$

где  $E^{(i)}$  –  $i$ -е приближение, ниже мы ограничимся только первыми двумя слагаемыми. Соответственно, решение нелинейного уравнения (3) сводится к решению системы двух линейных уравнений:

$$\begin{cases} \frac{\partial E^{(0)}}{\partial \tilde{z}} + \frac{\partial E^{(0)}}{\partial \tilde{t}} = 0, \\ \frac{\partial E^{(1)}}{\partial \tilde{z}} + \frac{\partial E^{(1)}}{\partial \tilde{t}} + (E^{(0)})^2 \frac{\partial E^{(0)}}{\partial \tilde{t}} = 0. \end{cases} \quad (5)$$

Решение системы (5) имеет вид:

$$\begin{cases} E^{(0)}(\tau, \tilde{z}) = E^{(0)}(\tau), \\ E^{(1)}(\tau, \tilde{z}) = -E^{(0)2} \frac{\partial E^{(0)}}{\partial \tau} \tilde{z}, \end{cases} \quad (6)$$

где  $\tau = \tilde{t} - \tilde{z}$  – безразмерное время в бегущей системе координат [21], вид  $E^{(0)}(\tau)$  определяется по форме поля импульса  $\tilde{E}(\tilde{t})$  на границе нелинейной среды (при  $\tilde{z} = 0$ ).

Используя общее решение (4, 6), рассмотрим динамику поля в среде с кубической нелинейностью одного из самых удивительных объектов ТГц оптики – однопериодного импульса. Такие предельно короткие по числу колебаний ТГц волны получают, например, при выпрямлении фемтосекундных импульсов ближнего ИК диапазона спектра в средах с квадратичной нелинейностью [32]. Их математическую модель можно представить в виде [33]:

$$E(t) = E_0 \frac{t}{\tau_0} \exp\left[-\left(\frac{t}{\tau_0}\right)^2\right]. \quad (7)$$

Вид импульса (7) для значения длительности импульса  $\tau_0 = 1$  пс представлен на рис. 1а.

Спектральная плотность

$$G(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} E(t) \cdot \exp(-i\omega t) dt$$

поля импульса (7) имеет вид

$$G(\omega) = -iG_0\omega\tau_0 \exp\left[-\left(\frac{\omega\tau_0}{2}\right)^2\right], \quad (8)$$

где  $G_0 = (\sqrt{\pi}\tau_0/2)E_0$ . Вид модуля спектра импульса (8) представлен на рис. 1б.

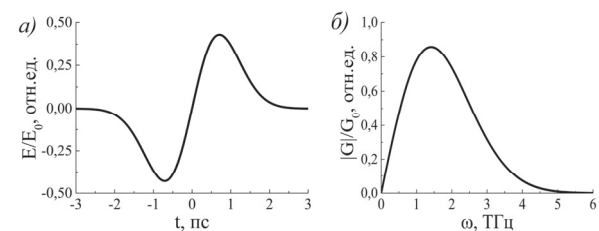


Рис. 1. Зависимость нормированного поля  $E$  однопериодного ТГц импульса от времени  $t$  (а) и модуля его спектральной плотности  $|G|$  от частоты  $\omega$  (б)

Из рис. 1 видно, что импульс (7) является нечётной функцией и представляет собой лишь одно полное колебание поля излучения. Значения максимума и минимума поля импульса составляют  $\pm(E_0/\sqrt{2}e)$ . Временной промежуток между наблюдением минимального и максимального значений поля составляет  $\sqrt{2}\tau_0$ . Спектр однопериодного импульса широк. Максимум модуля его спектральной плотности находится на частоте  $\omega_{max} = \sqrt{2}/\tau_0$  и составляет

$\sqrt{2} \exp(-1/2)G_0$ . Величина отношения модулей спектральных плотностей на частоте  $\omega_{max}$  и утроенной по отношению к ней частоте  $3\omega_{max}$  согласно выражению (8) составляет  $1/3(\exp(4))$ .

После нормировки, которая представлена выше, поле импульса примет безразмерный вид:

$$\tilde{E}(\tilde{t}) = \tilde{t} \exp(-\tilde{t}^2), \quad (9)$$

а его спектр (8):

$$\tilde{G}(\tilde{\omega}) = -i\tilde{G}_0\tilde{\omega} \exp(-\tilde{\omega}^2/4). \quad (10)$$

где  $\tilde{G}_0 = \sqrt{\pi}/2$ ,  $\tilde{\omega} = \omega\tau_0$ .

При граничном условии вида однопериодной волны (9) (при  $\tilde{z} = 0$ ) общее решение (4, 6) в спектральной форме принимает вид:

$$\tilde{G} = G^{(0)}(\tilde{\omega}) + \mu_{nl}(G_{TFG}^{(1)}(\tilde{\omega}, \tilde{z}) + G_{SPM}^{(1)}(\tilde{\omega}, \tilde{z})), \quad (11)$$

$$G^{(0)}(\tilde{\omega}) = -i\tilde{G}_0\tilde{\omega} \exp(-\tilde{\omega}^2/4) \cdot \exp(-i\tilde{\omega}\tilde{z}), \quad (12)$$

$$G_{TFG}^{(1)}(\tilde{\omega}, \tilde{z}) = \frac{\sqrt{\pi}}{648\sqrt{3}} \cdot \tilde{\omega}^4 \exp\left(-\frac{\tilde{\omega}^2}{12}\right) \cdot \tilde{z} \cdot \exp(-i\tilde{\omega}\tilde{z}), \quad (13)$$

$$G_{SPM}^{(1)}(\tilde{\omega}, \tilde{z}) = -\frac{\sqrt{\pi}}{36\sqrt{3}} \cdot \tilde{\omega}^2 \exp\left(-\frac{\tilde{\omega}^2}{12}\right) \cdot \tilde{z} \cdot \exp(-i\tilde{\omega}\tilde{z}), \quad (14)$$

а в полевой форме:

$$\tilde{E} = E^{(0)}(\tau) + \mu_{nl}(E_{TFG}^{(1)}(\tau, \tilde{z}) + E_{SPM}^{(1)}(\tau, \tilde{z})), \quad (15)$$

$$E^{(0)}(\tau) = \tau \exp(-\tau^2), \quad (16)$$

$$E_{TFG}^{(1)}(\tau, \tilde{z}) = \frac{1}{6} \cdot (12\tau^4 - 12\tau^2 + 1) \cdot \exp(-3\tau^2)\tilde{z}, \quad (17)$$

$$E_{SPM}^{(1)}(\tau, \tilde{z}) = \frac{1}{6} \cdot (6\tau^2 - 1) \exp(-3\tau^2)\tilde{z}. \quad (18)$$

В выражениях (11–14) и (15–18)  $E^{(0)}$  и  $G^{(0)}$  описывают динамику поля импульса и его спектра в оптической среде при малой интенсивности излучения, когда нелинейность среды не проявляется.  $E_{TFG}^{(1)}$  и  $G_{TFG}^{(1)}$  описывают изменения в структуре поля и его спектра, обусловленные генерацией излучения на утроенных частотах (ГУЧ), а  $E_{SPM}^{(1)}$  и  $G_{SPM}^{(1)}$  – фазовой самомодуляцией импульса (ФСМ). Их нелинейный вклад в общую динамику поля  $\tilde{E}$  и его спектра  $\tilde{G}$  характеризуется величиной коэффициента  $\mu_{nl}$ .

Отметим, что в статьях [21, 22] утверждается неразделимость эффектов уширения спектра однопериодной волны из-за ГУЧ и ФСМ. В настоящей статье мы показываем, что в теории эти эффекты, на наш взгляд, различимы. Как видно из формулы (13), фаза изменения спектра ТГц волны, обусловленная ГУЧ, опережает фазу спектра основной части волны (12) на  $\pi/2$ , а фазу изменений, вызванных ФСМ (14), – на  $\pi$ .

Покажем, что именно такие фазовые сдвиги характерны между спектрами излучения утроенных частот и волны, фаза которой модулируется за счет явления самовоздействия, на примере гармонического граничного условия

$$E = E_0 \sin(\omega t) = -i\frac{1}{2}E_0 e^{i\omega t} + c.c., \quad (19)$$

вид которого после нормировки представляется как

$$\tilde{E} = -\frac{i}{2}e^{i\tilde{t}} + c.c. \quad (20)$$

Выбор гармонического излучения в виде синусоидальной (а не косинусоидальной) волны обусловлен тем, что такая форма волны представляется четной функцией, как и ее однопериодная часть (9).

В (19), (20) *c.c.* означает комплексное сопряжение. Решение (4, 6) для такого граничного условия принимает вид

$$\tilde{E} = E^{(0)}(\tau) + \mu_{nl}(E_{TFG}^{(1)}(\tau, \tilde{z}) + E_{SPM}^{(1)}(\tau, \tilde{z})), \quad (21)$$

$$E^{(0)}(\tau) = \frac{1}{2}e^{-i\frac{\pi}{2}} \cdot e^{i\tau} + c.c., \quad (22)$$

$$E_{TFG}^{(1)}(\tau, \tilde{z}) = \frac{1}{8}e^{-i\pi} \cdot e^{3i\tau} \cdot \tilde{z} + c.c., \quad (23)$$

$$E_{SPM}^{(1)}(\tau, \tilde{z}) = \frac{1}{8}e^{-i\pi} \cdot e^{i\tau} \cdot \tilde{z} + c.c. \quad (24)$$

Как видно из наглядного решения для монохроматического излучения на входе в оптическую среду (19), однопериодной вариацией которого является волна (7), фаза генерируемой в нелинейной среде третьей гармоники (23) опережает фазу волны на основной частоте (22) на  $\pi/2$ , а нелинейный сдвиг фазы на основной частоте (24) – на  $\pi$ .

Такие же отличия в фазе спектральной плотности основной части импульса (16), её изменений из-за нелинейных эффектов ГУЧ (17) и ФСМ (18), с учетом того, что  $-1 = \exp(i\pi)$ , имеем и в решении для однопериодной волны (15). Но в отличие от случая монохроматических волн (21–24), для которых спектры излучения на основной и на утроенных частотах значительно разнесены, для однопериодной волны (11) с исходно очень широким спектром его изменения в нелинейной среде, связанные с эффектами ГУЧ и ФСМ, перекрываются.

В заключении настоящего параграфа отметим, что указанные выше изменения в фазе спектра излучения, вносимые ГУЧ и ФСМ, имеют место только для рассмотренных выше четных по форме синусоидальной (гармонической) волны и ее однопериодной части. Но, можно показать, что, например, для нечетной по форме косинусоидальной (тоже гармонической) волны и ее полупериодной части это будет уже не так. Хотя для полупериодного импульса также будет наблюдаться перекрытие его спектра, уширяемого в нелинейной среде из-за фазовой самомодуляции, и спектра излучения, генерируемого в поле этого импульса на утроенных частотах. Т.е. задача разделения вкладов ГУЧ и ФСМ в общее уширение спектра импульсов из малого числа

колебаний разной формы в нелинейной среде требует еще дополнительного изучения.

**Интерференция спектра однопериодной волны, уширяемого из-за ФСМ, и спектра излучения, вызванного ГУЧ**

На рис. 2 приведён вид изменений безразмерных величин поля и вещественной амплитуды спектра однопериодной волны (9) из-за ГУЧ  $E_{TFG}^{(1)}$ ,  $G_{TFG}^{(1)}$  (13, 17) и из-за ФСМ  $E_{SPM}^{(1)}$ ,  $G_{SPM}^{(1)}$  (14, 18). Численные значения этих изменений на рисунке даны для  $\mu_{nl} \cdot \tilde{z} = 1$ . При отображении вещественной амплитуды комплексного спектра  $G_{SPM}^{(1)}$  учли, что  $\exp(i\pi) = -1$ . Под вещественными амплитудами спектров понимаем  $G_{TFG} = G_{TFG}^{(1)} \cdot \exp(i\tilde{\omega}\tilde{z})$  и  $G_{SPM} = G_{SPM}^{(1)} \cdot \exp(i\tilde{\omega}\tilde{z})$ .

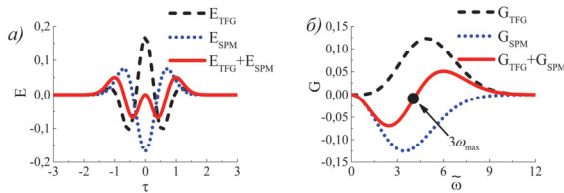


Рис. 2. Зависимость изменений безразмерных величин поля однопериодного импульса  $E$  от безразмерного времени в бегущей системе координат  $\tau$  (а) и вещественной амплитуды его спектра от нормированной частоты  $\tilde{\omega}$  (б) из-за ГУЧ (пунктирная линия) и ФСМ (линия точками). Сплошная линия описывает результат интерференции ГУЧ и ФСМ

Из рис. 2а видно, что вклады в поле однопериодной волны, вызванные эффектами ГУЧ и ФСМ, находятся в противофазе и близки по амплитуде, т.е. эти нелинейные эффекты ослабляют друг друга. Особенно отчётливо видно это из рис. 2б. Вклады ГУЧ и ФСМ в спектр значительно перекрываются и имеют разные знаки. Результирующее изменение спектра однопериодного импульса в нелинейной среде значительно слабее каждого из этих вкладов. Охарактеризуем эти выводы количественно.

Степень перекрытия вкладов ГУЧ и ФСМ в спектр излучения

$$s = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} G_{TFG} \cdot G_{SPM} d\tilde{\omega}}{\sqrt{\int_{-\infty}^{\infty} G_{TFG}^2 d\tilde{\omega} \cdot \int_{-\infty}^{\infty} G_{SPM}^2 d\tilde{\omega}}}, \quad (25)$$

для однопериодной волны в нелинейной среде (15–18) составляет  $s = -\sqrt{5/7} \approx -0,85$ , т.е. она недалеко от максимального значения, равного  $-1$ . Отрицательная величина  $s$  показывает, что эффекты ГУЧ и ФСМ при интерференции ослабляют друг друга. Обратим внимание на то, что представленный коэффициент не зависит от величины  $\mu_{nl}$ , поскольку динамика обоих рассматриваемых нелинейных процессов определяется одним и тем же  $\mu_{nl}$ . Также отметим, что, как следует из формул (17) и (18), он не зависит и от  $\tilde{z}$ .

Коэффициент ослабления изменений спектров, обусловленных ГУЧ и ФСМ

$$k = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} G_{TFG}^2 d\tilde{\omega}}{\int_{-\infty}^{\infty} (G_{TFG} + G_{SPM})_+^2 d\tilde{\omega}}, \quad (26)$$

где  $(G_{TFG} + G_{SPM})_+$  – только положительные значения суммы вещественных амплитуд спектров, для однопериодной волны (12) в нелинейной среде составляет

$$k = \frac{35e^3 \sqrt{3}\pi}{270 + 11e^3 \sqrt{3}\pi \cdot \text{erfc}(\sqrt{3})} \approx 7,7,$$

где  $\text{erfc}(z) = 1 - \text{erf}(z)$ . Как видно из формулы (26), коэффициент ослабления определяется отношением энергии излучения, генерируемого на утроенных частотах в случае гипотетического отсутствия ФСМ, к энергии излучения на утроенных частотах, остающегося после интерференционного ослабления его за счет ФСМ. Таким образом, интерференция ГУЧ и ФСМ приводит к значительному общему ослаблению эффекта ГУЧ.

Из соотношений (15–18) следует и из рис. 2б видно, что максимальным значениям спектральной плотности ГУЧ и ФСМ соответствуют нормированные частоты  $\tilde{\omega}_{\max TFG} = 2\sqrt{6}$  и  $\tilde{\omega}_{\max SPM} = 2\sqrt{3}$ . Полное (до нуля) интерференционное гашение эффектов ГУЧ и ФСМ наблюдается на нормированной частоте  $\tilde{\omega} = 3\sqrt{2}$ . Этот факт интересен тем, что данная величина в точности соответствует значению утроенной по отношению к частоте максимума спектральной плотности однопериодного импульса нормированной частоты  $3\tilde{\omega}_{\max}$ , где  $\tilde{\omega}_{\max} = \omega_{\max} \cdot \tau_0$ . Исчезновение генерации излучения третьей гармоники по отношению к частоте максимума исходного спектра и сдвиг максимума генерируемого в нелинейной среде контура частот излучения на частоту  $3\sqrt{2}\tilde{\omega}_{\max}$  иллюстрировано на рис. 3. На этом рисунке приведён модуль суммарного спектра (11) однопериодной волны в нелинейной среде. Спектр иллюстрирован для значений  $\mu_{nl} \cdot \tilde{z} = 1$  (близко к реализованному в эксперименте [24]). Из рисунка видно, что при частоте  $3\tilde{\omega}_{\max}$  излучение полностью не исчезает. Это связано с тем, что при полном интерференционном гашении на этой частоте ГУЧ и ФСМ ненулевым на ней является широкополосное излучение основной части импульса, которое сдвинуто по фазе колебаний по отношению к нелинейным эффектам на  $\pi/2$ . Как выше было отмечено, отношение значения модуля спектральной плотности однопериодного импульса частоты  $3\tilde{\omega}_{\max}$  к его максимальному значению равно  $3\exp(-4)$ . Это означает, что появление в нелинейной среде спектрального контура на учетверённых частотах носит пороговый характер и наблюдается при  $\mu_{nl} \cdot \tilde{z} > 0,81$ . Данное пороговое значение вытекает из требования глубины провала в спектре излучения на частоте  $3\tilde{\omega}_{\max}$  в 20% от высоты максимума на частоте  $3\sqrt{2}\tilde{\omega}_{\max}$ . Во вставке на рис. 3 дано искажение формы поля импульса в нелинейной среде.

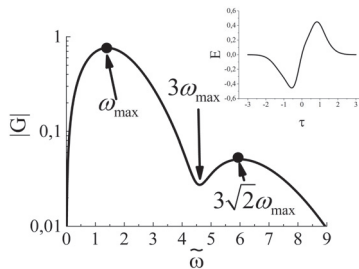


Рис. 3. Зависимость нормированного модуля спектра  $G$  однопериодного импульса в нелинейной среде от нормированной частоты  $\omega$  при  $\mu_{nl} \cdot \tilde{z} = 1$ . На вставке приведена зависимость в нелинейной среде нормированного поля  $E$  от безразмерного времени в бегущей системе координат  $\tau$

### Заключение

В настоящей работе изучены особенности интерференции вкладов в спектр однопериодного ТГц импульса, распространяющегося в среде с кубической нелинейностью, явлений ГУЧ и ФСМ. Показано, что степень перекрытия генерируемых в нелинейной среде компонент спектра однопериодного импульса из-за ГУЧ и ФСМ составляет  $s = -0,85$ . Отрицательное значение этой величины означает, что нелинейные эффекты взаимно ослабляют друг друга. Общий коэффициент ослабления ГУЧ составляет  $k = 7,7$ . Неоднородность ослабления по частоте приводит к сдвигу максимума спектра, генерируемого в нелинейной среде высокочастотного излучения на учетверенные частоты. Эти необычные нелинейные эффекты – перекрытие спектров ГУЧ и ФСМ, их неоднородное по спектру взаимное ослабление, вследствие чего происходит сдвиг частот генерируемого в изотропных средах излучения с утроенных на учетверенные, – характерны для однопериодного излучения, но полностью отсутствуют для квазимонохроматического излучения. Это означает, что для волн из малого числа колебаний мы получаем дополнительные возможности управления эффективностью и характером протекания нелинейных процессов.

### Благодарности

Авторы выражают признательность профессору И.П. Гурову за полезные замечания и рекомендации к работе. Работа выполнена при финансовой поддержке Минобрнауки РФ в рамках Государственного задания (Паспорт No 2019-0903).

### References

[1] Glagolewa-Arkadiewa A. Short electromagnetic waves of wave-length up to 82 microns. *Nature* 1924; 113(2844): 640-640. DOI: 10.1038/113640a0.

[2] Krukov PG. Femtosecond pulses: introduction in a new area of laser physics [In Russian]. Moscow: "Fizmatlit" Publisher; 2008. ISBN: 978-5-9221-0941-3.

[3] Fülöp JA, Pálfalvi L, Klingebiel S, Almási G, Krausz F, Karsch S, Hebling J. Generation of sub-mJ terahertz pulses by optical rectification. *Opt Lett* 2012; 37(4): 557-559. DOI: 10.1364/OL.37.000557.

[4] Chizhov PA, Ushakov AA, Bukin VV, Garnov SV. Terahertz radiation from extended two-colour air filaments. *Laser Phys Lett* 2019; 16(7): 075301. DOI: 10.1088/1612-202X/ab2054.

[5] Koulouklidis A, Gollner C, Shumakova V, Fedorov VY, Pugžlys A, Baltuška A, Tzortzakis S. Observation of extremely efficient terahertz generation from mid-infrared two-color laser filaments. *Nat Commun* 2020; 11(1): 292. DOI: 10.1038/s41467-019-14206-x.

[6] Ponomareva EA, Ismagilov AO, Putilin SE, Tsyppkin AN, Kozlov SA, Zhang X-C. Varying pre-plasma properties to boost terahertz wave generation in liquids. *Commun Phys* 2021; 4(1): 4. DOI: 10.1038/s42005-020-00511-1.

[7] Balakin AV, Gildenburg VB, Gordienko VM, Kuzechkin NA, Semenov TA, Solyankin PM, Pavlichenko IA, Zhu Y, Shkurinov AP. Directional terahertz beam generation under interaction 13 of an intense femtosecond laser pulse with a cluster jet. *J Opt Soc Am B* 2021; 38(11): 3515-3522. DOI: 10.1364/JOSAB.438757.

[8] Shalaby M, Hauri CP. Demonstration of a low-frequency three-dimensional terahertz bullet with extreme brightness. *Nat Commun* 2015; 6(1): 5976. DOI: 10.1038/ncomms6976.

[9] Liao G, Li Y, Liu H, Zhang J. Multimillijoule coherent terahertz bursts from picosecond laser-irradiated metal foils. *Proc Natl Acad Sci Nat Acad Sci* 2019; 116(10): 3994-3999. DOI: 10.1073/pnas.1815256116.

[10] Tsyppkin AN, Melnik MV, Zhukova MO, Vorontsova IO, Putilin SE, Kozlov SA, Zhang X-C. High Kerr nonlinearity of water in THz spectral range. *Opt Express* 2019; 27(8): 10419-10425. DOI: 10.1364/OE.27.010419.

[11] Novelli F, Ma CY, Adhlakha N, Adams EM, Ockelmann T, Das Mahanta D, Di Pietro P, Perucchi A, Havenith M. Nonlinear terahertz transmission by liquid water at 1 THz. *Appl Sci* 2020; 10(15): 5290. DOI: 10.3390/app10155290.

[12] Novelli F, Ruiz Pestana L, Bennett KC, Sebastiani F, Adams EM, Stavrias N, Ockelmann T, Colchero A, Hoberg C, Schwaab G, Head-Gordon T, Havenith M. Strong anisotropy in liquid water upon librational excitation using terahertz laser fields. *The Journal of Physical Chemistry B* 2020; 124(24): 4989-5001. DOI: 10.1021/acs.jpcc.0c02448.

[13] Sazonov SV, Ustinov NV. Self-induced transparency of few-cycle terahertz pulses. *JETP Lett* 2020; 112: 24-30. DOI: 10.1134/S0021364020130111.

[14] Glyavin MY, Kuftin AN, Morozkin MV, Proyavin MD, Fokin AP, Chirkov AV, Manuilov VN, Sedov AS, Soluyanov EA, Sobolev DI, Tai EM, Tsvetkov AI, Luchinin AG, Kornishin SY, Denisov GG. A 250-watts, 0.5-THz continuous-wave secondharmonic gyrotron. *IEEE Electron Device Lett* 2021; 42(11): 1666-1669. DOI: 10.1109/LED.2021.3113022.

[15] Dolgaleva K, Materikina DV, Boyd RW, Kozlov SA. Prediction of an extremely large nonlinear refractive index for crystals at terahertz frequencies. *Phys Rev A* 2015; 92(2): 023809. DOI: 10.1103/PhysRevA.92.023809.

[16] Zhukova MO, Melnik MV, Vorontsova IO, Tsyppkin AN, Kozlov SA. Estimations of low-inertia cubic nonlinearity featured by electro-optical crystals in the THz range. *Photonics* 2020; 7(4): 98. DOI: 10.3390/photonics7040098.

[17] Tsyppkin AN, Zhukova MO, Melnik MV, Vorontsova IO, Kulya MS, Putilin SE, Kozlov SA, Choudhary S, Boyd RW. Giant third-order nonlinear response of liquids at terahertz frequencies. *Phys Rev Appl* 2021; 15(5): 054009. DOI: 10.1103/PhysRevApplied.15.054009.

[18] Guselnikov MS, Zhukova MO, Kozlov SA. Inertia of the oscillatory mechanisms of giant nonlinearities of optical

- materials in the terahertz spectral range. *J Opt Technol* 2022; 89(7): 371-377. DOI: 10.1364/JOT.89.000371.
- [19] Buchmann A, Hoberg C, Novelli F. An ultra-fast liquid switch for terahertz radiation. *APL Photonics* 2022; 7(12): 121302. DOI: 10.1063/5.0130236.
- [20] Kozlov SA, Drozdov AA, Choudhary S, Kniazev MA, Boyd RW. Suppression of self-focusing for few-cycle pulses. *J Opt Soc Am B* 2019; 36(10): G68-G77. DOI: 10.1364/JOSAB.36.000G68.
- [21] Kozlov SA, Drozdov AA. Self-phase modulation of single-cycle optical waves [In Russian]. *Scientific-Technical Bulletin of Information Technologies, Mechanics and Optics* 2011; 72: 99-105.
- [22] Drozdov AA, Kozlov SA, Sukhorukov AA, Kivshar YS. Self-phase modulation and frequency generation with few-cycle optical pulses in nonlinear dispersive media. *Phys Rev A* 2012; 86(5): 053822. DOI: 10.1103/PhysRevA.86.053822.
- [23] Sazonov SV. Optical rectification and generation of harmonics under condition of propagation of few-cycle pulses in the birefringent medium with asymmetric molecules. *J Russ Laser Res* 2018; 39(3): 252-262. DOI: 10.1007/s10946-018-9715-3.
- [24] Artsier IR, Melnik MV, Ismagilov AO, Gusevnikov MS, Teykin AN, Kozlov SA. Radiation shift from triple to quadruple frequency caused by the interaction of terahertz pulses with a nonlinear Kerr medium. *Sci Rep* 2022; 12(1): 9019. DOI: 10.1038/s41598-022-13445-1.
- [25] Kozlov SA, Samartsev VV. *Fundamentals of femtosecond optics*. Cambridge: Woodhead Publishing Limited; 2013. ISBN: 978-1-78242-128-3.
- [26] Kozlov SA, Sazonov SV. Nonlinear propagation of optical pulses of a few oscillations duration in dielectric media. *J Exp Theor Phys* 1997; 84(2): 221-228. DOI: 10.1134/1.558109.
- [27] Boyd RW, Lukishova SG, Shen YR. *Self-focusing: Past and present: Fundamentals and prospects*. New York, NY: Springer; 2009. ISBN: 978-1-4419-2181-9.
- [28] Woldegeorgis A, Kurihara T, Beleites B, Bossert J, Grosse R, Paulus GG, Ronneberger F, Gopal A. THz induced nonlinear effects in materials at intensities above 26 gw/cm<sup>2</sup>. *J Infrared Millim Terahertz Waves* 2018; 39(7): 667-680. DOI: 10.1007/s10762-018-0493-3.
- [29] Wilminck GJ, Ibey BL, Tongue T, Schulkin B, Laman N, Peralta XG, Roth CC, Cerna CZ, Rivest BD, Grundt JE, Roach WP. Development of a compact terahertz time-domain spectrometer for the measurement of the optical properties of biological tissues. *J Biomed Opt* 2011; 16(4): 047006. DOI: 10.1117/1.3570648.
- [30] THz database. 2023. Source: <thzdb.org>.
- [31] Schall M, Helm H, Keiding SR. Far infrared properties of electrooptic crystals measured by thz time-domain spectroscopy. *Int J Infrared Millim Waves* 1999; 20(4): 595-604. DOI: 10.1023/A:1022636421426.
- [32] Hebling J, Yeh K-L, Hoffmann MC, Bartal B, Nelson KA. Generation of high-power terahertz pulses by tilted-pulse-front excitation and their application possibilities. *J Opt Soc Am B* 2008; 25(7): B6-B19. DOI: 10.1364/JOSAB.25.0000B6.
- [33] Ezerskaya AA, Ivanov DV, Kozlov SA, Kivshar YS. Spectral approach in the analysis of pulsed terahertz radiation. *J Infrared Millim Terahertz Waves* 2012; 33: 926-942. DOI: 10.1007/s10762-012-9907-9.

#### Сведения об авторах

**Арцер Илья Романович**, 1997 года рождения, в 2021 году получил степень магистра по направлению 12.04.03 «Фотоника и оптоинформатика» в Университете ИТМО, где и работает в настоящее время. Область научных интересов: нелинейная оптика, оптика ТГц импульсного излучения, программирование на Python. E-mail: [irartser@niuitmo.ru](mailto:irartser@niuitmo.ru)

**Мельник Максим Владимирович**, 1992 года рождения, в 2015 окончил Санкт-Петербургский университет информационных технологий механики и оптики (ныне Университет ИТМО) по специальности «Фотоника и оптоинформатика», а в 2019 защитил диссертацию на соискание степени кандидата физико-математических наук по специальности «Оптика». Работает научным сотрудником и доцентом в научно-образовательном центре фотоники и оптоинформатики Университета ИТМО. Область научных интересов: нелинейная фемтосекундная и терагерцовая оптика, генерация суперконтинуума, плазмообразование. E-mail: [maxim.melnick@gmail.com](mailto:maxim.melnick@gmail.com)

**Цыпкин Антон Николаевич**, 1986 года рождения, окончил Санкт-Петербургский университет информационных технологий механики и оптики (ныне Университет ИТМО), в 2013 году защитил диссертацию на соискание степени кандидата наук, а в 2020 – на соискание степени доктора физико-математических наук по специальности «Оптика». Является директором научно-образовательного центра фотоники и оптоинформатики Университета ИТМО. Область научных интересов: нелинейная фемтосекундная и терагерцовая оптика, квантовая оптика, спектроскопия. E-mail: [tsyppkinan@mail.ru](mailto:tsyppkinan@mail.ru)

**Козлов Сергей Аркадьевич**, 1956 года рождения, окончил Ленинградский институт точной механики и оптики (ныне Университет ИТМО), в 1986 году защитил диссертацию на соискание степени кандидата физико-математических наук, а в 1997 – доктора физико-математических наук по специальности «Оптика». Имеет звание профессора (2004) и почётное звание Заслуженного деятеля науки Российской Федерации (2017). Является руководителем международного научного центра оптической и квантовой информатики, биофотоники. Область научных интересов: нелинейная оптика сверхкоротких импульсов, терагерцовая оптика, квантовые коммуникации. E-mail: [kozlov@mail.ifmo.ru](mailto:kozlov@mail.ifmo.ru)

ГРНТИ: 29.31.27, 29.33.25, 29.35.33

Поступила в редакцию 7 марта 2023 г. Окончательный вариант – 29 июля 2023 г.

---

# The spectrum broadening of a single-cycle terahertz pulse caused by phase self-modulation in a nonlinear medium and the spectrum of radiation generated in its field at tripled frequencies.

*I.R. Artser<sup>1</sup>, M.V. Melnik<sup>1</sup>, A.N. Tsypkin<sup>1</sup>, S.A. Kozlov<sup>1</sup>*  
*<sup>1</sup> ITMO University, 197101, Saint Petersburg, Russia, Kronverkskiy ave. 49*

## *Abstract*

When the number of oscillations in an optical pulse decreases, the emission spectrum generated at triple frequencies and the spectrum of the fundamental pulse, broadened due to phase self-modulation during propagation in a medium with cubic nonlinearity, begin to overlap. This work demonstrates that the overlap magnitude of the spectrum broadening for a single-period terahertz pulse, caused by the emission of triple frequencies and phase self-modulation of the fundamental pulse, is  $|s|=0.85$ . The complex spectra are phase-shifted by  $\pi$ , which mutually weakens these nonlinear effects. For a single-period pulse, the attenuation coefficient is 7.7. The frequency-dependent inhomogeneity of mutual attenuation of nonlinear effects results in the absence of radiation at the triple frequency relative to the frequency of the maximum spectrum of the single-period wave in the nonlinear medium, while the maximum spectrum of the generated high-frequency radiation shifts to quadrupled frequencies. Thus, for terahertz waves with a small number of oscillations, new possibilities for controlling their parameters during nonlinear processes in optical media open up.

*Keywords:* terahertz pulse radiation, phase self-modulation, generation of triple frequency radiation, spectrum overlap magnitude, mutual attenuation coefficient of nonlinear effects.

*Citation:* Artser IR, Melnik MV, Tsypkin AN, Kozlov SA. The spectrum broadening of a single-cycle terahertz pulse caused by phase self-modulation in a nonlinear medium and the spectrum of radiation generated in its field at tripled frequencies. *Computer Optics* 2024; 48(1): 61-67. DOI: 10.18287/2412-6179-CO-1299.

*Acknowledgements:* This work was financially supported by the Ministry of Science and Education of the Russian Federation (Passport No. 2019-0903).

---

## *Authors' information*

**Ilya Romanovich Artser**, born in 1997, obtained a master degree in the field of 12.04.03 "Photonics and Optoinformatics" from ITMO University in 2021, where he currently works. His areas of scientific interest include nonlinear optics, terahertz pulse optics, and Python programming. E-mail: [irartser@niuitmo.ru](mailto:irartser@niuitmo.ru)

**Maksim Vladimirovich Melnik**, born in 1992, graduated from the Saint Petersburg State University of Information Technologies, Mechanics and Optics (now ITMO University) in 2015, specializing in "Photonics and Optoinformatics." In 2019, he defended his dissertation to obtain a candidate degree in Physics and Mathematics, specializing in "Optics." He works as a research scientist and associate professor at the Scientific-Educational Center of Photonics and Optoinformatics at ITMO University. His areas of scientific interest include nonlinear femtosecond and terahertz optics, supercontinuum generation, and plasma formation. E-mail: [maxim.melnick@gmail.com](mailto:maxim.melnick@gmail.com)

**Anton Nikolaevich Tsypkin**, born in 1986, graduated from the Saint Petersburg State University of Information Technologies, Mechanics and Optics (now ITMO University). In 2013, he defended his dissertation to obtain a candidate degree in science, and in 2020, he defended his doctoral dissertation in Physics and Mathematics, specializing in "Optics." He is the director of the Scientific-Educational Center of Photonics and Optoinformatics at ITMO University. His areas of scientific interest include nonlinear femtosecond and terahertz optics, quantum optics, and spectroscopy. E-mail: [tsypkinan@mail.ru](mailto:tsypkinan@mail.ru)

**Sergey Arkadievich Kozlov**, born in 1956, graduated from the Leningrad Institute of Precision Mechanics and Optics (now ITMO University) in 1986. In 1997, he defended his doctoral dissertation in Physics and Mathematics, specializing in "Optics". He holds the title of professor (2004) and the honorary title of Distinguished Scientist of the Russian Federation (2017). He is the head of the International Scientific Center for Optical and Quantum Informatics, BioPhotonics. His areas of scientific interest include nonlinear optics of ultrashort pulses, terahertz optics, and quantum communications. E-mail: [kozlov@mail.ifmo.ru](mailto:kozlov@mail.ifmo.ru)

---

*Received March 7, 2023. The final version – July 29, 2023.*

---