

02;07

О точности измерения мгновенных спектральных интенсивностей фемтосекундных импульсов

© В.Н. Сафонов, В.А. Трофимов, А.П. Шкуринов

Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова,
119899 Москва, Россия
e-mail: vatro@cs.msu.su

(Поступило в Редакцию 4 июня 2004 г. В окончательной редакции 5 марта 2005 г.)

Рассматривается актуальная проблема: измерение мгновенных спектральных интенсивностей фемтосекундного импульса во времени на основе преобразования Фурье–Габора. На основе компьютерного моделирования показано, что существует широкий диапазон размера „окна“ и их числа вдоль импульса, при которых измеренная спектральная интенсивность не изменяется. Описан оптимальный способ выбора размера окна и его перемещения вдоль исследуемого сигнала без снижения качества измерений. Работоспособность метода продемонстрирована физическим экспериментом для воздействия терагерцового импульса на аминокислоту *L-cystine*.

PACS: 32.30.-r, 32.70.-n

Введение

Как известно, воздействие интенсивных фемтосекундных импульсов на вещество сопровождается многими нелинейными эффектами [1]. Среди них, в частности, имеет место нелинейная зависимость частоты импульса с максимальной спектральной яркостью от его входной амплитуды при распространении оптического излучения в среде [2]. Отметим, что в случае длинных импульсов можно аналитически получить зависимость спектральной интенсивности на заданной частоте от амплитуды внешнего воздействия, используя приближение квазистационарного отклика среды [3]. При воздействии же фемтосекундных импульсов он становится существенно нестационарным. Поэтому возникает вопрос об измерении мгновенной спектральной интенсивности отклика среды на заданной частоте. При этом они должны быть выполнены таким образом, чтобы результат не зависел в определенных пределах от параметров измерительной системы. С подобной задачей авторы столкнулись в [2,4,5]. Однако она имеет место для широкого круга задач фемтосекундной оптики: фемтосекундной спектроскопии, где возникает проблема соответствия измеренных с помощью конечного числа пробных импульсов (аналоги математических „окон“, рассматриваемых ниже) характеристик среды (спектральных составляющих отклика) ее реальному спектру, в частности для терагерцовой спектроскопии. В этом частотном диапазоне импульсы пикосекундной длительности являются малопериодными. Следовательно, в этом смысле они обладают свойствами малопериодных фемтосекундных импульсов для оптического диапазона. Разработка новых методов регистрации отклика среды на выбранной частоте представляет актуальную проблему, так как согласно литературным данным (см. обзор [6]), широко применяемый для обработки физических экспериментов метод Вигнера часто дает неверные результаты. Поэто-

му, на наш взгляд, обсуждаемые ниже закономерности измерений мгновенных характеристик отклика среды могут найти широкое применение. Еще раз подчеркнем, что под термином „мгновенный“ будем понимать спектральную амплитуду отклика среды на заданной гармонике в данный момент времени.

Основные уравнения

В соответствии с поставленной целью определения эволюции спектральной интенсивности на заданной частоте рассмотрим взаимодействие светового импульса с нелинейной средой в рамках приближения оптически тонкого слоя и модели Дуффинга, которое описывается следующим безразмерным уравнением [1]:

$$\frac{d^2 P}{dt^2} + \delta \frac{dP}{dt} + \omega_0^2 P + \gamma P^3 = E(t) \cos(\omega t), \quad (1)$$

где P — безразмерная поляризация, t — нормированное время, δ характеризует затухание поляризации, ω_0 — резонансная частота линейного осциллятора, которая в выбранной нормировке равна 1, γ характеризует ангармонизм осциллятора, а $E(t)$ и ω — соответственно, амплитуда и частота внешнего воздействия. В качестве воздействующего импульса рассмотрим импульс треугольной формы:

$$E(t) = E_0 \left(1 - \frac{|t - L_t|}{L_t} \right), \quad (2)$$

где E_0 — его максимальная амплитуда, $2L_t$ — длительность.

До воздействия светового импульса среда считается невозмущенной. Поэтому в начальный момент времени имеют место нулевые условия для функции P и ее производной:

$$P|_{t=0} = \frac{dP}{dt}|_{t=0} = 0. \quad (3)$$

Для получения результатов компьютерного моделирования с высокой точностью уравнение (1) решалось с помощью симметричной нелинейной разностной схемы 2-го порядка аппроксимации. Все расчеты проводились с шагом 0.001, критерием выбора которого является малость отличия решений ($\leq 1\%$) как во времени, так и в фурье-пространстве. Амплитуда внешнего воздействия E_0 , его длительность $2L_t$ и отстройка частоты воздействующего импульса от резонансной частоты варьировались с целью изучения их влияния на спектральный отклик среды. Для этого на заданном отрезке времени длины T выполним преобразование Фурье. Затем сдвигаем центр окна на заданную величину Δ . Затем на новом временном отрезке выполняем преобразование Фурье и снова повторяем эту процедуру. Таким образом, получаем „скользящее“ вдоль времени окно и набор значений соответствующих измерений.

Результаты выполненных расчетов представляются в виде зависимости модуля спектральной амплитуды поляризации на выбранной частоте как от времени, так и от амплитуды внешнего воздействия E_T , которая вычисляется следующим образом:

$$E_T = E \left(t_b + \frac{T}{2} \right), \quad (4)$$

что соответствует ее амплитуде в центре соответствующего интервала времени, t_b — начало окна, T — ширина окна. Для наглядности на графиках пунктиром показывается участок зависимости, соответствующий переднему фронту импульса, а сплошной линией его заднему фронту.

Важно подчеркнуть, что преобразование Фурье конечного сигнала эквивалентно нахождению коэффициентов ряда Фурье для функции, периодически продолженной вправо и влево во времени [7,8]. При этом, если значения сигнала в начальный и конечный момент временного интервала сильно различаются, то при периодическом продолжении на стыках соответствующих временных интервалов возникают скачки, из-за которых спектр „растекается“ (спектр расширяется, и появляются несуществующие частоты). Это явление называется растеканием спектра. Для его уменьшения используются весовые функции (окна), которые спадают к краям рассматриваемого временного отрезка. Поэтому на каждом отрезке используется преобразование Габора [9] с окном

$$g(t) = e^{-\left(\frac{t-t_c}{0.45T}\right)^n} \quad (5)$$

близким к прямоугольному. Заметим, что в (5) t_c — центр окна, который сдвигается на заданную величину Δ , $n = 2k$ характеризует крутизну границ оконной функции. Оно также называется оконным преобразованием Фурье.

Таким образом, получаем зависимость $P_{\omega'}(t)$:

$$P_{\omega'}(t) = P(\omega', t) = \int_{t_b}^{t_b+T} g(t) \cdot P(t) \cdot e^{-i\omega'(t-t_b)} dt, \quad (6)$$

t_b — начало окна, ω' — частота, на которой анализируется отклик среды в заданном интервале времени. При компьютерном моделировании параметр n выбирался равным 20, чтобы спад окна функции $g(t)$ был резким.

Следует подчеркнуть, что для данного алгоритма принципиальным является вопрос выбора параметров преобразования: длины интервала T (ширины окна) и сдвига окна Δ .

Результаты компьютерного моделирования

Результаты проведенных компьютерных экспериментов показали следующие закономерности. Для определения спектральной амплитуды на произвольной частоте необходимо использовать окно размером не менее $\frac{3}{2} \left(\frac{2\pi}{\omega_l} \right)$, где ω_l — частота низкочастотной гармоники, амплитуда которой является достаточно яркой по сравнению с общим фоном спектрального распределения. Заметим, что и сдвиг окна должен подчиняться определенному закону. Если же размер окна становится сравнимым (или меньшим) с периодом указанной гармоники, то зависимость спектральной амплитуды от амплитуды внешнего сигнала (или времени) становится осциллирующей. Эти особенности обусловлены отслеживанием окном изменения поляризации на частоте ω_l . Иными словами, окно перемещается по отдельному низкочастотному колебанию исследуемого сигнала. Следовательно, для заданного окна существует минимальная частота $\omega_{\min} = \frac{3}{2} \left(\frac{2\pi}{T} \right)$, на которой можно измерять во времени амплитуду гармоники без осцилляций. При этом более низкочастотные гармоники в сигнале должны отсутствовать. Очевидно, что максимальная отслеживаемая частота ограничена минимальным временем между регистрируемыми сигналами (рис. 1), на котором представлена зависимость поляризации среды при воздействии светового импульса треугольной формы (2) на заданной частоте и зависимости модуля ее спектральной амплитуды от амплитуды внешнего сигнала, вычисленные с помощью преобразования Фурье–Габора, при различных размерах окон и специально выбранном (оптимальном, см. ниже) его сдвиге. На рисунке хорошо видно, что с уменьшением размеров окна изображенные зависимости существенно трансформируются. Заметим, что различия в спектральных амплитудах на рис. 1, $b-g$ обусловлены отсутствием единой нормировки. Этот вопрос в данной работе не обсуждается.

Другая важная характеристика анализа мгновенного спектра — сдвиг окна вдоль времени на заданную величину. Проведенное компьютерное моделирование

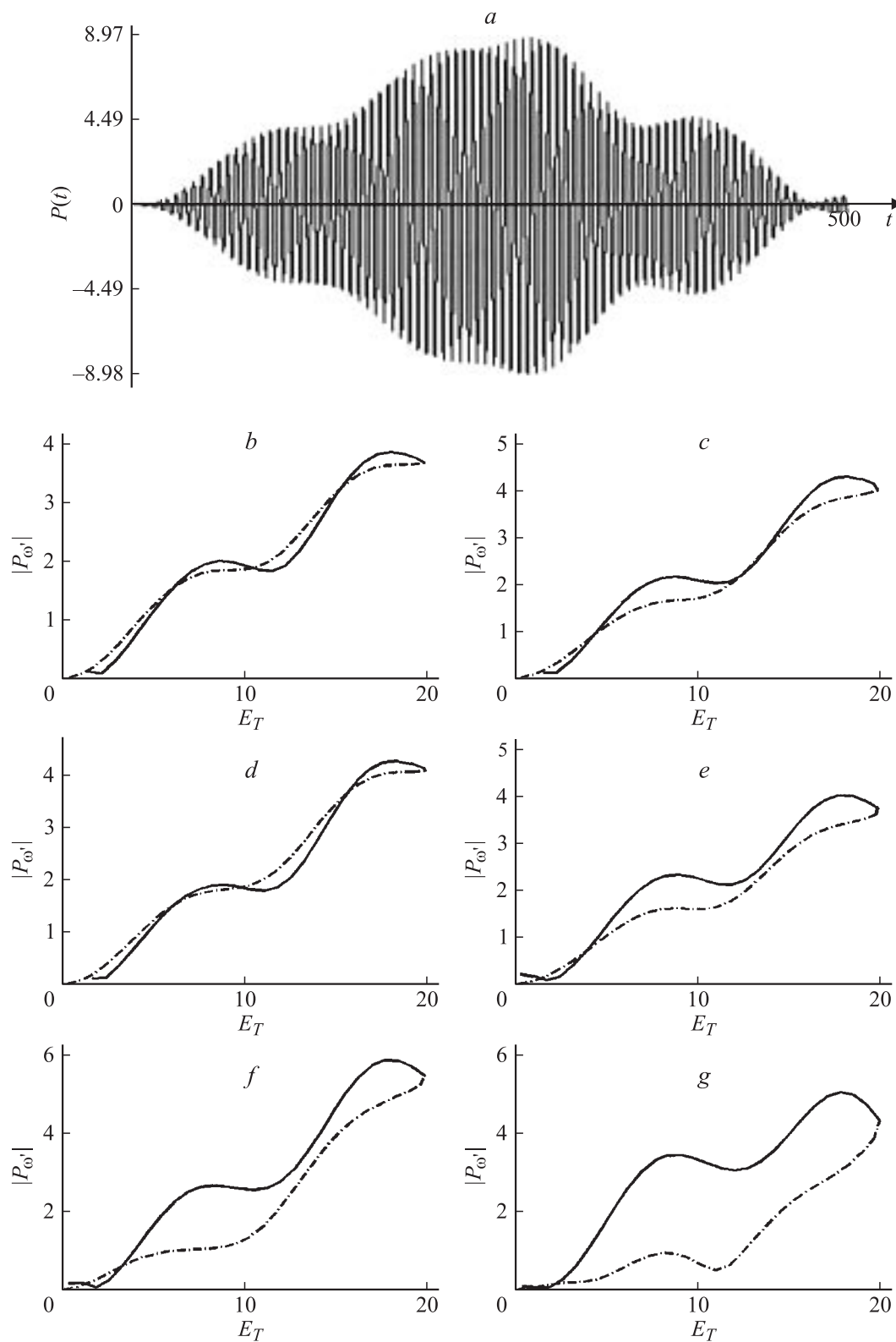


Рис. 1. Эволюция поляризации (а) линейной среды ($\gamma = 0$) с коэффициентом затухания $\delta = 0.001$ при воздействии светового импульса на частоте $\omega = 1.054$ длительности $2L_r = 500$ с максимальной амплитуды $E_0 = 1$ и зависимость модуля спектральной амплитуды $|P_{\omega'}|$ (b-g) на частоте воздействия ($\omega' = \omega$) от амплитуды сигнала при различной ширине окна $T = 10$ (b), 8 (c), 6 (d), 4 (e), 2 (f), 1 (g) и его оптимальном сдвиге $\Delta = 9$.

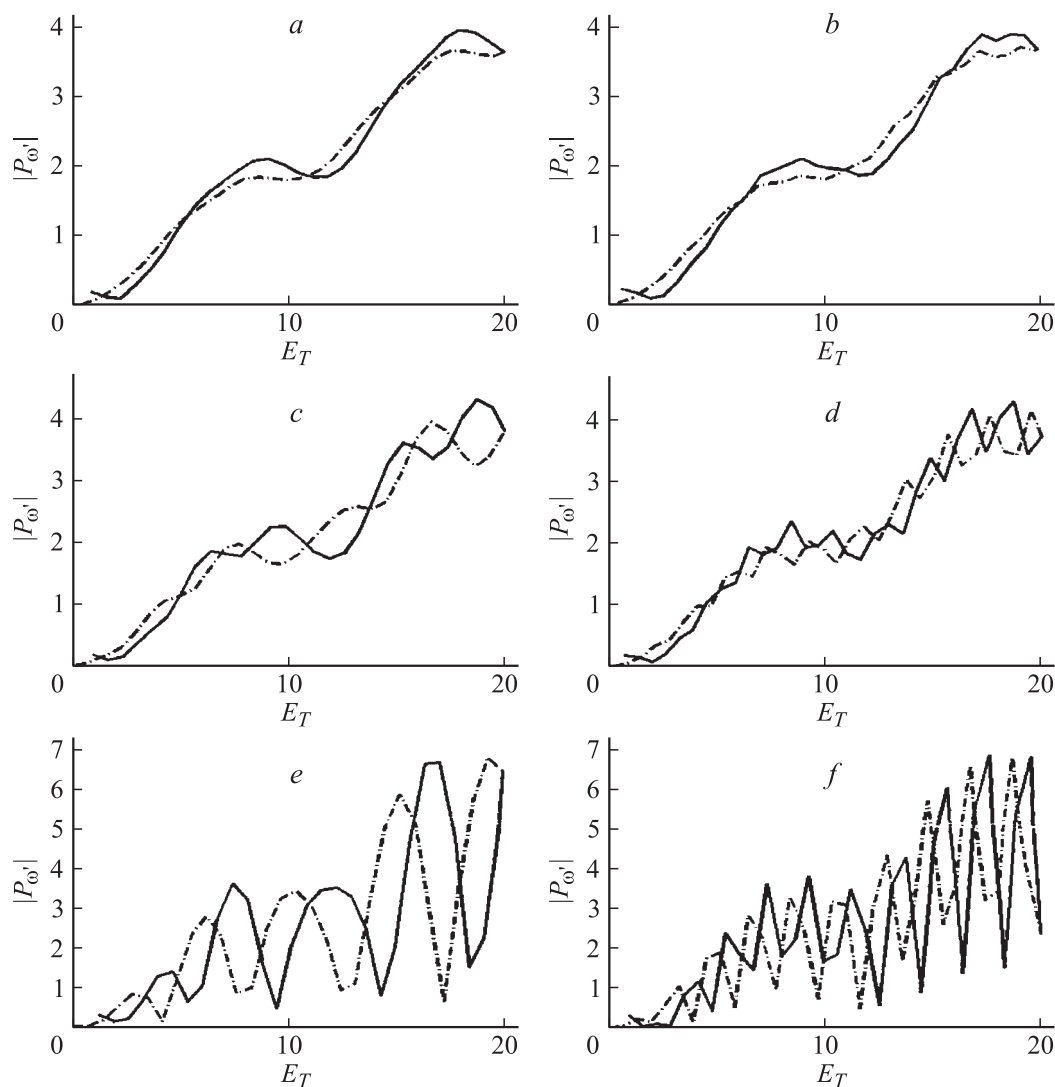


Рис. 2. Зависимость модуля спектральной амплитуды $|P_{\omega'}|$ на частоте воздействия $\omega' = \omega$ от амплитуды внешнего воздействия при различных сдвигах окна $\Delta = 8.5$ (*a, c, e*), 8.0 (*b, d, f*) и его ширине $T = 10$ (*a, b*), 6 (*c, d*), 1 (*e, f*) для параметров взаимодействия, соответствующих рис. 1.

позволяет сделать следующий вывод. Для устранения осциллирующей спектральной амплитуды, вызванных алгоритмом измерения, необходимо сдвиг окна осуществлять на время, не меньшее периода $\Delta_t = \frac{3}{2} \left(\frac{2\pi}{\omega_l} \right)$ соответствующей наиболее яркой низкочастотной гармоники. Если выбирать сдвиг окна на время $\Delta > \Delta_t$, то для устранения нефизических осциллирующей спектральных амплитуд его следует брать кратным половине значения периода низкочастотной гармоники, имеющейся в анализируемом сигнале (рис. 2), из которого следует, что при незначительном отклонении (менее 10%) сдвига окна от оптимального значения, в обсуждаемых зависимостях появляются осцилляции, характер которых зависит от ширины окна. Так, для окна, размер которого выбран оптимально, осцилляции качественно не изменяют зависимости $|P_{\omega'}(E_T)|$ (рис. 2, *a, b*), а при меньшем размере окна как для $\Delta \approx \Delta_t$, так и для $\Delta \ll \Delta_t$ реализуются

быстро осциллирующие зависимости (рис. 2, *c-f*). Заметим, что они, как было отмечено выше, обусловлены влиянием „абсолютной фазы“ соответствующего колебательного процесса, так как при очередном сдвиге окна в его пределах определение спектральной амплитуды начинается с разной фазой, что подтверждается рис. 3, на котором изображены зависимости модуля спектральной амплитуды от амплитуды внешнего воздействия для нелинейного взаимодействия светового импульса со средой при различных сдвигах окна (рис. 3, *a-c*) и его размеров (рис. 3, *d-f*). Как следует из рис. 3, *a-c* с ростом сдвига окна осцилляции спектральной амплитуды от времени исчезают. Рис. 3, *d-f* подтверждает сделанные для линейного воздействия светового импульса выводы о соотношении ширины окна и частоты, на которой анализируется динамический спектральный отклик. Так при фиксированном оптимальном сдвиге окна осцилля-

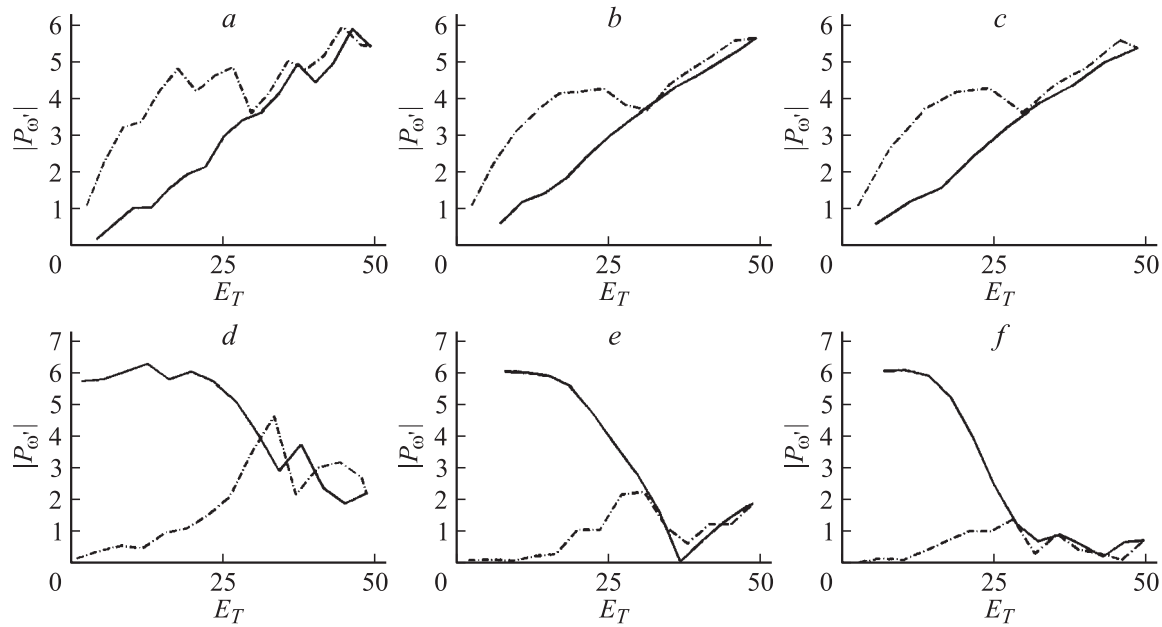


Рис. 3. Зависимость модуля спектральной амплитуды $|P_{\omega'}|$ на частотах $\omega' = 0.3514$ (a–c), 1.63 (d–f) от амплитуды внешнего воздействия при различных сдвигах окна $\Delta = 15$ (a), 18 (b, d, f), 27 (c) и его ширине $T = 27$ (a–c), 10 (d), 20 (e), 30 (f) для параметров взаимодействия $2L_i = 500$, $\gamma = 0.01$, $\delta = 0.001$, $E_0 = 50$, $\omega = 0.3514$.

ции в зависимостях спектральной амплитуды от времени (амплитуды входного сигнала) исчезают с ростом окна. Поэтому, используя появление осцилляций в рассматриваемых зависимостях, можно реализовать отбор физически верной зависимости спектральной амплитуды отклика среды от амплитуды внешнего сигнала или времени.

В заключении проиллюстрируем работоспособность предложенного алгоритма на примере сложного отклика среды (рис. 4, a), содержащего 5 различных частот: как превышающих резонансную частоту линейного осциллятора, так и меньших ее. Спектральный состав отклика представлен на рис. 4, b. Применение описанного выше алгоритма к его анализу и определение спектральной интенсивности на заданной частоте с использованием описанных выше рекомендаций представлено на рис. 4, c–f. Как видно, предложенный алгоритм позволяет отслеживать в спектральном составе сложного отклика среды изменение амплитуды на заданных частотах.

Результаты физического эксперимента

Описанный выше метод анализа мгновенного спектрального отклика среды был применен экспериментально при исследовании некоторых веществ. В рамках данной работы обсудим лишь часть результатов физического эксперимента, который был выполнен совместно с М.М. Назаровым, Д.А. Сапожниковым, А.В. Шуваевым для порошка аминокислоты *L-cystine* при ее возбуждении импульсным терагерцовым излучением. Подчеркнем, что терагерцовые импульсы определенной длитель-

ности являются малопериодными (рис. 5, a). Поэтому с точки зрения зависимости напряженности электрического поля от времени терагерцовые импульсы подобны малопериодным фемтосекундным оптическим импульсам. Используемый THz спектрометр имеет длительность временной выборки — 100–300 ps, расстояние между точками выборки — 80 fs. Прибор измеряет амплитуду поля короткого терагерцового импульса во времени (как функцию задержки между генерирующим и детектирующим фемтосекундным лазерным импульсом). Длительность импульсов в эксперименте составляла приблизительно 2 ps, частота следования импульсов 100 MHz, мощность соответствовала 3 W/cm^2 , что обеспечивало линейный отклик среды.

На рис. 5, a представлена нормированная напряженность падающего и прошедшего *L-cystine* электрических полей E_{THz} при его возбуждении импульсным терагерцовым излучением, измеренный в физическом эксперименте и рассчитанный теоретически на основе уравнения (1), записанного ниже в физических переменных

$$\frac{d^2P}{dt^2} + \Gamma \frac{dP}{dt} + \omega_0^2 P = \alpha E(t) \cos \omega t, \quad (7)$$

где P — поляризация, t — время, Γ — характеризует затухание поляризации, ω_0 — резонансная частота линейного осциллятора, параметр α характеризует поляризуемость среды и равен $\alpha = 2.997 \cdot 10^9 \frac{\text{с} \cdot \text{В}}{\text{м}^3 \cdot \text{с}^2}$, а $E(t)$ и ω — соответственно амплитуда и частота внешнего воздействия. Для приближения к условиям эксперимента считалось, что данная линия находится

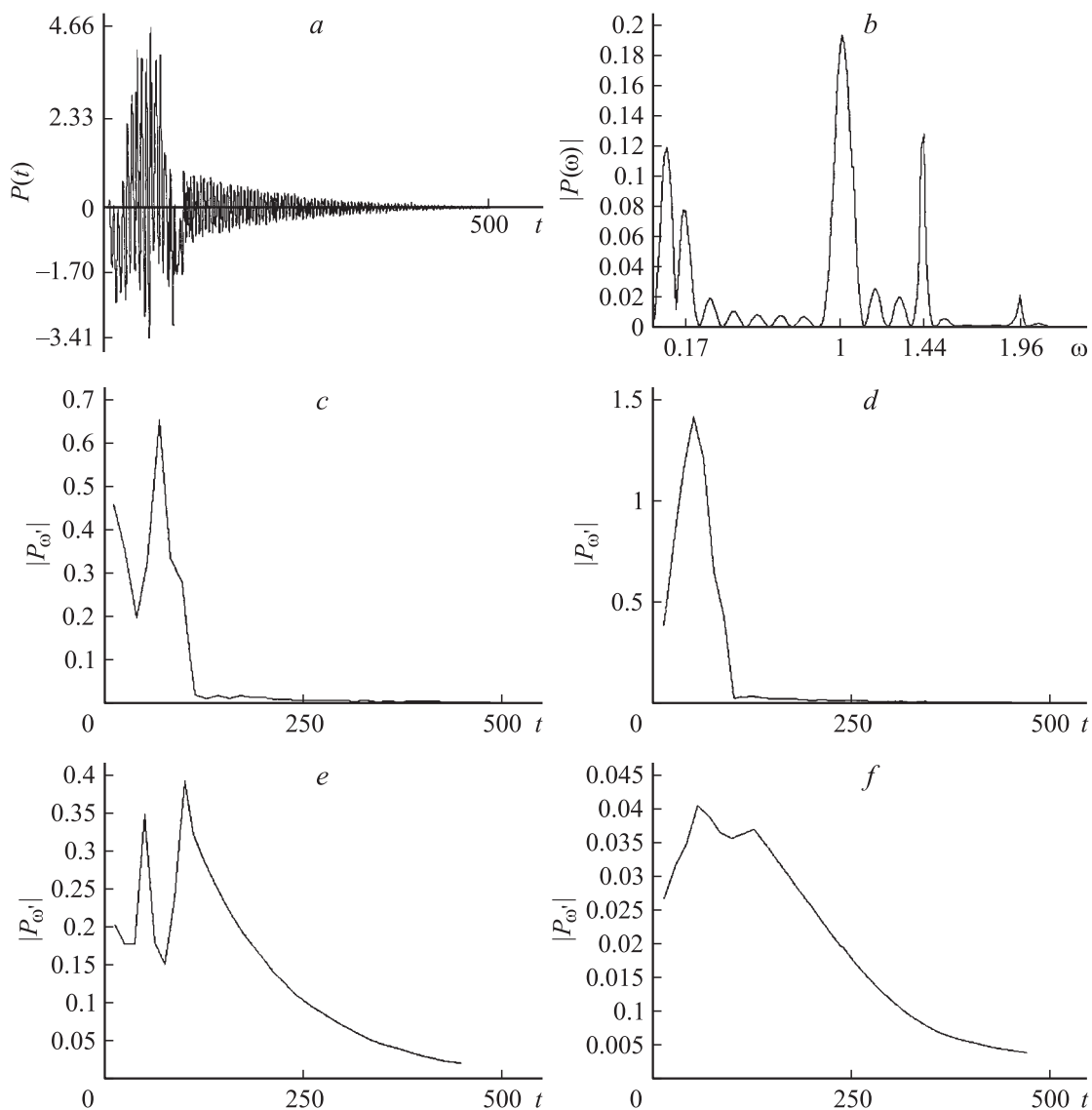


Рис. 4. Эволюция поляризации (а) линейной среды ($\gamma = 0$) с коэффициентом затухания $\delta = 0.015$, составленная из откликов с различными собственными частотами $\omega_0 \in \{0.35, 1.2, 1.4, 1.7, 2.3\}$, при воздействии светового импульса длительности $2L_t = 100$ с максимальной амплитудой $E_0 = 40$ на частоте $\omega = 1.0$, часть спектра импульса (b) и зависимость модуля спектральной амплитуды $|P_{\omega'}|$ на частотах $\omega' = 0.17$ (c), 1.0 (d), 1.44 (e), 1.96 (f) от времени при сдвиге окна $\Delta = 13.7$ и его ширине $T = 15$ (a–c), 85 (d).

на нерезонансном фоне, а качестве которого выберем линейную функцию частоты (рис. 5, b). В теоретической модели использовались следующие параметры: $\Gamma = 0.157 \cdot 10^{12} \text{ s}^{-1}$, $\omega_0 = 4.505 \cdot 10^{12} \text{ s}^{-1}$, соответствующие физическому эксперименту, а в качестве возбуждающего импульса в расчетах использовалась экспериментально измеренная зависимость напряженности электрического поля возбуждающего импульса от времени. Заметим, что затухающие гармонические осцилляции являются следствием наличия в *L-cystine* линии поглощения на 0.715 THz. Небольшое расхождение модели с экспериментом в основном обусловлено нелоренцевской формой линии поглощения *L-cystine*. Как видим, имеет

место хорошее согласие используемой модели и результатов физического эксперимента.

Для иллюстрации работы предложенного алгоритма на рис. 5, c представлена динамика измерения нормированных амплитуд падающего импульса и терагерцового поля на частоте 0.715 THz линии поглощения *L-cystine*. Она вычислялась с временным разрешением $\Delta T = 5 \text{ ns}$ с гипергауссовой ($n = 4$) формой окна. Выбор данной ширины временного окна ΔT связан с тем, что для экспериментальной ситуации при меньших его размерах из-за уменьшающегося спектрального разрешения на динамику поглощения на частоте 0.715 THz начинает влиять динамика поглощения соседних с ней линий

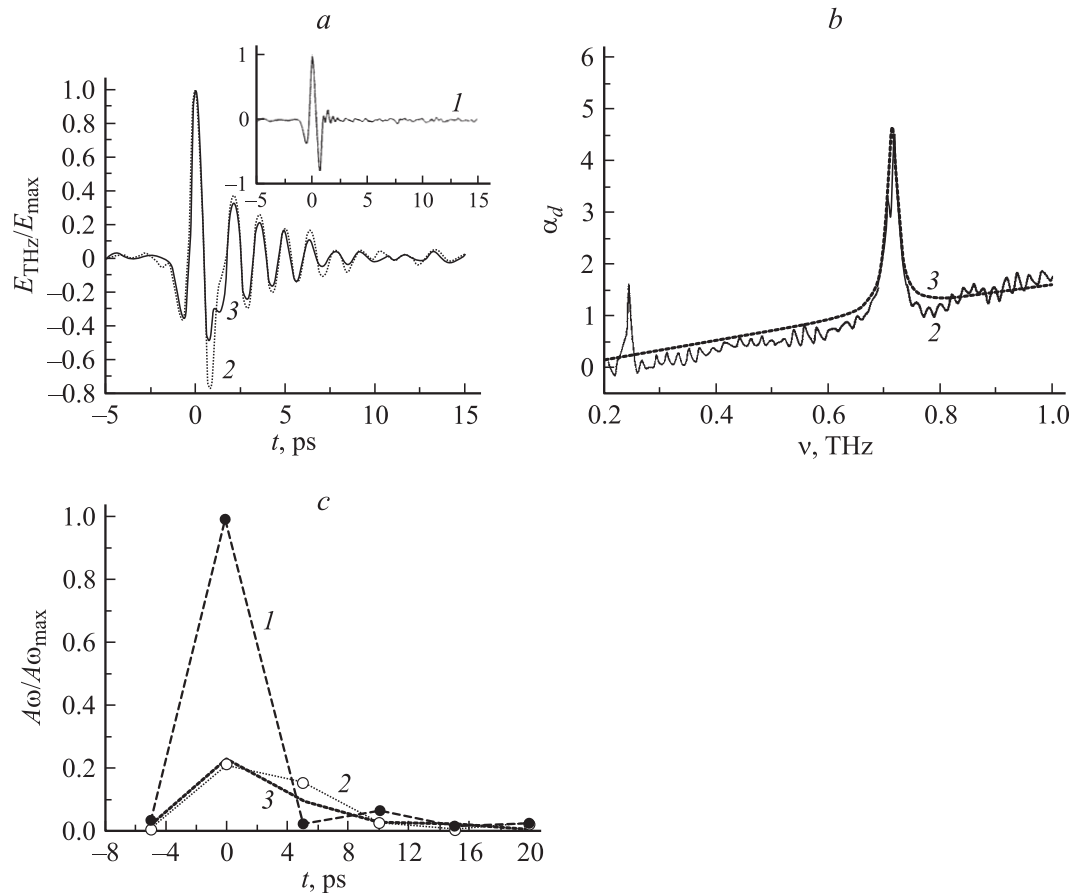


Рис. 5. 1 — импульс возбуждения, 2 — экспериментальный, 3 — модельный отклик *L-cystine* (a) и его спектр поглощения δ_d на длине образца от частоты при воздействии терагерцового импульса (b), а также динамика (c) нормированной спектральной амплитуды A_ω на частоте линии поглощения *L-cystine* $\omega = 0.715$ THz.

L-cystine. Согласно рекомендациям предыдущего пункта и временное окно передвигалось через промежутки времени $\Delta T = 5$ ns, т.е. через интервалы, равные длительности окна. Рисунок отражает хорошее согласие теоретического анализа и экспериментальной динамики, что демонстрирует работоспособность разрабатываемого метода.

Заключение и выводы

Из изложенных результатов следует возможность измерения во времени спектральной интенсивности отклика среды на основе алгоритма Фурье–Габора при воздействии фемтосекундных импульсов. Следуя описанному выше алгоритму на практике, получаем независимую в определенных пределах от сдвига окна и его размера достоверную информацию о спектральном отклике среды.

В связи с указанными способами выбора размера окна и его сдвига можно предположить следующее усовершенствование алгоритма спектрального анализа сигнала. Сначала определяем зависимость спектральной

интенсивности от времени для низкочастотной гармоники. Далее каким-либо образом „удаляем“ ее из сигнала. Затем снова определяем интересующие зависимости, исходя из нового значения наиболее яркой низкочастотной гармоники. Однако вариант такого алгоритма с непосредственным удалением низкочастотной гармоники из спектра, при его применении к немгновенному отклику среды, что имеет место для рассмотренных выше случаев, приводит к неверным зависимостям спектральной интенсивности от времени для восстановленного сигнала. Так, проведенные расчеты показали, что если удалить из спектра часть, соответствующую наиболее яркой низкочастотной гармоники, и применить к полученному спектру обратное преобразование Фурье, то полученная эволюция амплитуды рассматриваемой гармоники не будет совпадать с аналогичной зависимостью, рассчитанной на основе исходного сигнала. Таким образом, дальнейшее совершенствование разрабатываемого алгоритма связано с поиском способа (или условий) выделения низкочастотной составляющей спектра без существенного искажения спектральных амплитуд оставшихся гармоник.

Следует однако подчеркнуть, что для многих экспериментальных ситуаций, в частности для терагерцовой спектроскопии, указанный алгоритм успешно работает, что продемонстрировано результатами физического эксперимента.

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке РФФИ (грант № 02-01-727).

Список литературы

- [1] *Шен И.Р.* Принципы нелинейной оптики. / Пре. с англ. М.: Мир. 1989. 558 с.
- [2] *Trofimov V.A., Skripov D.K.* Bistable Dependence of Polarization frequency under the action of high intense femtosecond pulse on nonlinear medium. // Program and abstracts on Second Conference „Superstrong fields in Plasmas-2001“, Varenna, Italy. August 27–September 1, 2001. P. 8.
- [3] *Рабинович М.И., Трубецков Д.И.* Введение в теорию колебаний и волн. М.: НИЦ „Регулярная и хаотическая динамика“. 2000. 560 с.
- [4] *Скрипов Д.К., Трофимов В.А.* // ЖТФ. 2003. Т. 73. Вып. 3. С. 69–74.
- [5] *Скрипов Д.К., Трофимов В.А.* // ЖТФ. 2004. Т. 74. Вып. 2. С. 77–82.
- [6] *Cohen L.* // Proceedings of IEEE. 1989. Vol. 77. N 7. P. 941–981.
- [7] *Сергиенко А.Б.* Цифровая обработка сигналов. СПб.: Питер. 2002. 608 с.
- [8] *Васильев В.Н., Гуров И.П.* Компьютерная обработка сигналов в приложении к интерферометрическим системам. СПб.: БХВ–Санкт-Петербург. 1998. 240 с.
- [9] *Чуи К.* Введение в вэйвлеты. / Пер. с английского Я.М. Жилейкина. М.: Мир. 2001. 406 с.