

ОТЗЫВ

**официального оппонента на диссертацию на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук**

Синько Антона Сергеевича

**на тему: «Генерация и взаимодействие терагерцового излучения с
молекулярными кристаллами»**

по специальности 1.3.19. – «лазерная физика»

В настоящее время в терагерцевой (ТГц) области частот электромагнитного спектра возрастает потребность в узкополосных перестраиваемых по частоте источниках излучения для решения задач прецизионной молекулярной спектроскопии, сенсорики, 2D и 3D визуализации материалов, медицинской диагностики. Альтернативой узкополосным ТГц источникам, таким как, газовым и квантово-каскадным лазерам, лазерам на свободных электронах, лампам обратной волны и гиротронам, являются компактные лазеры, генерирующие ТГц излучение за счет взаимодействия мощных фемтосекундных оптических импульсов с нелинейно-оптическими кристаллами. Среди большого многообразия нелинейных кристаллов, использующихся для генерации ТГц импульсов, можно выделить молекулярные полуорганические кристаллы, обладающие за счет сложной структуры химических связей высокими нелинейно-оптическими коэффициентами, очень узкой полосой генерации, высокой пороговой оптической мощностью разрушения и устойчивостью к атмосфере. Достоинством полуорганических кристаллов по сравнению с ионными неорганическими является возможность молекулярного конструирования для подбора кристалла с необходимыми параметрами генерации, а также более высокая нелинейно-оптическая активность. Работ по использованию молекулярных кристаллов для генерации ТГц излучения немного вследствие наличия у них сильных фононных линий поглощения, что в широкополосных источниках обычно считается недостатком. Однако в представляемой диссертационной работе А.С. Синько предлагается наоборот

использовать узкие фоновые резонансы молекулярных кристаллов для увеличения нелинейной активности кристаллов и упрощения экспериментальной конфигурации по генерации ТГц излучения. Данное направление является новым и **весьма актуальным** как для развития нелинейной оптики, так и для потенциальных приложений, упомянутых выше.

Обоснованность научных положений, выводов и рекомендаций. Научные положения и выводы диссертации основаны на приведенных в диссертации экспериментальных результатах (рентгеноструктурном анализе исследуемых молекулярных кристаллов, спектрах ТГц поглощения и комбинационного рассеяния, спектрах генерации узкополосного ТГц излучения при разных поляризациях по отношению к ориентации кристаллов, выполненных при температурах кристаллов от 6 до 293 К), а также кристаллографическом анализе и сравнительном теоретическом анализе механизма генерации ТГц излучения, и являются обоснованными.

Научная новизна результатов. В диссертации получен ряд новых результатов, имеющих существенное значение для понимания фундаментальных механизмов генерации узкополосного ТГц излучения при взаимодействии фемтосекундных импульсов с молекулярными полуорганическими нелинейными кристаллами. Предложенный в работе механизм генерации основан на нелинейно-оптической восприимчивости второго порядка при выполнении условий фазового согласования, КР- и ИК-активности фоновых колебаний молекулярно-кристаллической решетки, который продемонстрирован на кристаллах GUNP, NaAP, KAP, RbAP и сахарозы, а также впервые получена на них генерация узкополосного ТГц излучения. На примере кристалла GUNP было впервые показано, что частота и ширина спектра генерации не зависят от длины волны фемтосекундного излучения, находящейся в области прозрачности кристалла. Спектром генерации можно управлять, меняя температуру кристалла, а также его

ориентацию по отношению к поляризации возбуждающего фемтосекундного импульса, причем этот спектр поляризационно зависим. Впервые на примере кристалла GUNP экспериментально продемонстрирован рекордный (по сравнению с описанными в литературе другими молекулярными кристаллами) порог фемтосекундного лазерного разрушения (для длины волны 800 нм) величиной 192,8 мДж/см².

Достоверность. Большинство экспериментальных результатов взаимно согласуются друг с другом, а также обосновываются теоретически и результатами моделирования, поэтому выводы и научные положения диссертации не вызывают сомнений и являются достоверными.

Диссертационная работа состоит из введения, пяти глав, заключения, списка литературы из 241 наименований, 61 рисунка, 7 таблиц и изложена на 161 странице.

Во **Введении** обосновывается актуальность темы исследования, приводится краткий обзор литературы, цели, задачи, научная новизна, научная и практическая значимость, методология и методы исследования, защищаемые положения, апробация работы, личный вклад автора и публикации, содержащие результаты работы.

Первая глава содержит основные физические принципы теории генерации ТГц излучения в молекулярных кристаллах разного типа, краткий исторический обзор и обзор достижений в настоящее время в данной области, которая заканчивается выводами.

Во **второй главе** подробно описываются экспериментальные методы и установки, используемые в работе по исследованию структуры молекулярных кристаллов и их оптико-фононного отклика на воздействие фемтосекундных импульсов.

В **третьей главе** представлены результаты детального исследования кристаллографической структуры молекулярного кристалла GUNP,

спектроскопии в видимом, ближнем инфракрасном и ТГц диапазонах частот, поляризационно-разрешенной спектроскопии комбинационного рассеяния света. В выводах по главе в частности утверждается, что наблюдаемые фононные резонансы в кристалле GUNP относятся к колебаниям решетки на межмолекулярных водородных и Ван-дер-Ваальсовых связях, являются ИК и КР-активными и могут обуславливать механизм генерации ТГц излучения.

В четвертой главе на основе экспериментальных результатов исследуется механизм генерации узкополосного ТГц излучения в результате взаимодействия молекулярного кристалла GUNP с фемтосекундными импульсами разной длины волны. В выводах по главе предлагается механизм генерации, состоящий из двух последовательных стадий: (1) быстрый нелинейно-оптический процесс возбуждения среды с последующей релаксацией в виде излучения однопериодного ТГц импульса; (2) более медленный процесс, определяемый резонансным откликом колебательной подсистемы молекулярной решетки, в возбуждении которой участвуют как нелинейности второго, так и третьего порядка, что приводит к последующему излучению в виде когерентной узкой спектральной полосы ТГц импульса.

В пятой главе исследуются спектры поглощения и генерации в ТГц диапазоне кристаллов фталиевой кислоты и сахарозы. Впервые на данных кристаллах продемонстрирована генерация узкополосного ТГц излучения, которая может перестраиваться по частоте за счет изменения температуры и ориентации кристалла по отношению к поляризации возбуждающих фемтосекундных импульсов. Показано, что набор данных кристаллов вместе с GUNP дает возможность покрыть практически весь ТГц диапазон частот.

В **Заключении** сформулированы основные результаты и выводы диссертационной работы.

Наиболее интересными научно и **практически значимыми результатами**, полученными в работе, представляются следующие:

1. Результаты и закономерности, полученные в данной работе, могут использоваться для моделирования, разработки и создания новых узкополосных ТГц источников на базе полуорганических молекулярных кристаллов.
2. В работе выявлены методы управления спектральными параметрами генерируемого многопериодного терагерцового импульса путем изменения температуры источника и взаимной ориентации структуры кристалла и поляризации излучения.
3. Определен механизм генерации узкополосного ТГц излучения в фононно-резонансных средах и его связь с симметрией кристаллической структуры.

По представленной диссертации можно высказать следующие **замечания и вопросы**:

1. Во введении указывается область часто терагерцового диапазона от 0.2 до 10 ТГц. Насколько мне известно, общепринятой нижней границей ТГц диапазона является частота 0.1 ТГц, связанная с развитием систем связи от микроволновой области частот в сторону ТГц диапазона.
2. В разных частях текста диссертации (например, на стр. 56) указывается, что молекулярные кристаллы могут быть альтернативой полупроводниковым квантово-каскадным лазерам, лазерам на свободных электронах, газовым лазерам. Хотелось бы увидеть сравнение характеристик данных источников (диапазон генерации, ширина линии, средняя мощность) и характеристик генерации молекулярных кристаллов, например, в виде таблицы. Это позволило бы более четко и наглядно продемонстрировать

достоинства и недостатки источников на молекулярных кристаллах.

3. На рис. 3.12 сравниваются расчетные моды колебаний кристалла GUNP с экспериментальными. Можно заметить, что отличие составляет около 10%. Чем может быть вызвано данное расхождение?
4. В работе в разных частях текста (второй, четвертой и пятой главах), указывается средняя мощность ТГц излучения, генерируемого в плазме и на молекулярных кристаллах, но нигде не указывается, каким образом она измерялась?
5. На стр. 47 в тексте хорошо бы указать ссылку на способ генерации широкополосного ТГц излучения методом двухцветной плазмы.
6. При описании рисунков 2.1 и 2.3 нигде не указывается, для чего использовался механический прерыватель? На какой частоте он работал?
7. На стр. 52 указывается, что ячейка Голея «чувствительна к излучению в терагерцовом и ИК диапазоне». Согласно паспорту приемника, данный детектор чувствителен в диапазоне длин волн от 0.3 мкм до 8 мм и имеет небольшие окна непрозрачности в среднем ИК диапазоне в зависимости от входного окна. Таким образом, данный приемник имеет хорошую чувствительность к видимому и ближнему ИК диапазону. Могло ли это повлиять на результаты измерений сигналов от ТГц импульсов, генерируемых молекулярными кристаллами?
8. На стр. 23 в формуле (1.9) для эффективности преобразования для ТГц ГРЧ-процесса приводится эффективный нелинейный коэффициент второго порядка d_{eff} . В тексте не приводится его связь с нелинейной восприимчивостью второго порядка $\chi^{(2)}$, хотя данный коэффициент определяет эффективность генерации согласно

формуле (1.5). Хотелось бы увидеть в тексте пояснение, как они связаны друг с другом.

9. Нет расшифровки в тексте значения коэффициента r , приводимого в таблице 1 на стр. 28.
10. На стр. 72 приводится фраза: «Благодаря низкой симметрии этого кристалла все оптические моды являются одновременно комбинационно- и инфракрасно-активными». КР и ИК активность проявляются только кристаллам с низкой симметрией?
11. На стр. 82 приводится фраза: «По правилам отбора для пространственной группы C_s в кристалле GUNP все колебательные моды являются одновременно ИК- и КР- активными». Если это устоявшийся научный факт, хотелось бы увидеть ссылку на литературу, где об этом говорится.
12. На рис. 4.1 на приводимых графиках можно заметить, что частоты генерации ТГц излучения немного выше, чем ИК линии поглощения и линии комбинационного рассеяния. Чем это может быть вызвано?
13. На стр. 98 приводится утверждение: «Зависимость от температуры ширины пика на полувысоте и его центральной частоты является монотонно-линейной, за исключением низкотемпературной области, где вклад Бозе-релаксации и теплового расширения становится существенным». Что подразумевается под термином «Бозе-релаксация»?

Ниже приведено еще несколько замечаний несущественного характера, носящие стилистический характер:

1. На стр. 6 перед ссылкой [11] пропущено название кристалла?
2. На стр. 7 во втором абзаце лучше написать «десятые доли ТГц».
3. На стр. 7 приводится фраза «длина волны излучения лазерной накачки

попадает на границу запрещенной электронной зоны». Лучше вместо длины волны использовать, например, термин «энергия возбуждающего фотона».

4. На стр. 47 незакончена фраза «генерируемой в лазерной...»

5. На стр. 53 в третьем абзаце приводится фраза: «...для монокристаллов размером не более 0,5 мм», вместо термина «размер» лучше использовать термин «толщина».

6. На стр. 66 2-й абзац приводится фраза «...были получены спектры поглощения и преломления для диэлектрической оси $Z...$ ». Лучше использовать термин «коэффициенты поглощения и преломления».

Также в работе есть серия мелких опечаток, которые не приводятся в отзыве.

Вместе с тем, указанные замечания не умаляют значимости диссертационного исследования. Диссертация отвечает требованиям, установленным Московским государственным университетом имени М.В. Ломоносова к работам подобного рода. Содержание диссертации соответствует специальности 1.3.19. – «лазерная физика» (по физико-математическим наукам), а также критериям, определенным пп. 2.1-2.5 Положения о присуждении ученых степеней в Московском государственном университете имени М.В. Ломоносова, а также оформлена согласно требованиям Положения о совете по защите диссертаций на соискание ученой степени кандидата наук, на соискание ученой степени доктора наук Московского государственного университета имени М.В. Ломоносова.

Таким образом, соискатель Синько Антон Сергеевич заслуживает присуждения ученой степени кандидата физико-математических наук по специальности 1.3.19. – «лазерная физика».

ФГБУН Институт ядерной физики им. Г.И. Будкера СО РАН, старший научный сотрудник

Герасимов Василий Валерьевич

«24» 11 2023г.

Контактные данные:

тел.: _____, e-mail: v.v.gerasimov@inp.nsk.su

Специальность, по которой официальным оппонентом защищена диссертация:

01.04.01 – приборы и методы экспериментальной физики

Адрес места работы:

630090, г. Новосибирск, пр. Академика Лаврентьева, д. 11,
ФГБУН Институт ядерной физики им. Г.И. Будкера СО РАН, лаб.8-1
Тел.: +7(383)3294839; e-mail: v.v.gerasimov@inp.nsk.su

Подпись официального оппонента

Герасимова Василия Валерьевича УДОСТОВЕРЯЮ:

Уч. секретарь

к.ф.-м.н. А.В. Резниченко



«24» 11 2023г.