

Комбинационное рассеяние света в фемто- и аттосекундной физике

А.М. Желтиков

Взаимодействие предельно коротких световых импульсов с веществом сопровождается рядом новых физических явлений, в основе которых лежит комбинационное рассеяние света на колебательных и вращательных модах молекул, электронных состояниях атомов и ионов, а также фононных модах твёрдого тела. Эти явления открывают уникальные возможности для исследования быстротекущих процессов на фемто- и аттосекундной временной шкале в полностью оптическом формате, эффективного спектрального и временного преобразования предельно коротких всплесков светового поля, а также высокочувствительной микроскопии физических, химических и биологических объектов.

PACS numbers: 42.65.Dr, 42.65.Ky, 42.65.Re, 42.65.Wi

DOI: 10.3367/UFNr.0181.201101c.0033

Содержание

1. Введение (33).
2. Нелинейный отклик и нелинейно-оптическая восприимчивость (34).
3. Квантовая картина: комбинационное рассеяние как метод аттосекундной спектроскопии (35).
4. Фазовый синхронизм (36).
5. Эволюция предельно коротких импульсов в комбинационно-активной среде (37).
6. Молекулярные модуляторы света и управление оптической нелинейностью молекулярных газов (38).
7. Комбинационное рассеяние света и солитонный сдвиг частоты (42).
8. Солитонные световодные источники предельно коротких импульсов электромагнитного излучения (43).
9. Молекулярные модуляторы и синтез предельно коротких импульсов (46).
10. Волоконно-оптические синтезаторы предельно коротких световых импульсов (47).
11. Синтезаторы управляемых последовательностей сверхкоротких импульсов для однопучковой микроспектроскопии когерентного комбинационного рассеяния света (48).
12. Когерентное комбинационное рассеяние сверхкоротких световых импульсов на оптических фонах (51).
13. Оптическая регистрация физических явлений на аттосекундной временной шкале (54).

14. Заключение (56).

Список литературы (57).

1. Введение

Открытие комбинационного рассеяния света (КР) сыграло важную роль в развитии физики. Наблюдение этого эффекта явилось одним из наиболее убедительных экспериментальных доказательств справедливости квантовой теории и привело к возникновению нового метода оптической спектроскопии, который на протяжении восьми десятилетий с успехом используется для определения состава и пространственного строения объектов физической, химической и биологической природы. Ровно 80 лет назад, уже через два года после публикации результатов пионерских экспериментов по наблюдению КР, выполненных Мандельштамом, Ландсбергом, Раманом и Кришнаном [1–5], один из авторов открытия (Раман) был удостоен Нобелевской премии по физике. Истории открытия явления комбинационного рассеяния света посвящена обширная литература [6–8].

С появлением лазеров стало возможным осуществление вынужденного [9, 10] и когерентного режимов КР [11, 12]. На основе вынужденного комбинационного рассеяния света (ВКР) созданы эффективные преобразователи частоты [12, 13] и компактные волоконные лазеры [14]. Явление ВКР с успехом используется для селективного возбуждения квантовых состояний атомных и молекулярных систем [15, 16], генерации широкополосного излучения и формирования предельно коротких световых импульсов длительностью около одного цикла светового поля [17–19].

Методы, основанные на когерентном комбинационном рассеянии света, включая когерентное антистоксово рассеяние (КАРС) [11, 12, 20, 21], получили широкое распространение для исследования строения молекул, межмолекулярных взаимодействий, химических реак-

А.М. Желтиков. Международный учебно-научный лазерный центр, Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, физический факультет, Воробьевы горы, 119991 Москва, Российская Федерация
Тел. (495) 939-51-74
Факс (495) 939-31-13
E-mail: zheltikov@phys.msu.ru

Статья поступила 26 апреля 2010 г.,
после доработки 28 июня 2010 г.

ций, процессов передачи и релаксации энергии в молекулярных системах, а также диагностики пламени, ионизованных газов и плазмы [20–25]. В последние годы на основе процесса КАРС разработаны новые высокоэффективные методы химически селективной безмаркерной микроскопии высокого разрешения, с успехом используемые для исследования объектов со сложной пространственной структурой и биологических систем [26, 27]. Активно исследуются пути использования методов спектроскопии когерентного комбинационного рассеяния света для дистанционной регистрации потенциально опасных химических и биологических агентов [28–31].

Утверждение в начале XX века квантовых представлений о природе взаимодействия света с веществом способствовало правильному пониманию результатов экспериментальных наблюдений и стимулировало систематические исследования в области комбинационного рассеяния как нового метода спектроскопии. Столетие спустя новое поколение оптических квантовых генераторов позволяет реализовать новые режимы комбинационного рассеяния предельно коротких световых импульсов. Эти режимы открывают уникальные возможности для исследования быстропротекающих процессов в фемто- и аттосекундном масштабе времени, эффективного спектрального и временного преобразования предельно коротких всплесков светового поля, а также высокочувствительной микроскопии физических, химических и биологических объектов. Обзору этого быстро развивающегося направления оптической физики и посвящена настоящая статья. Ниже будут рассмотрены особенности комбинационного рассеяния света на вращательных и колебательных модах молекулярных газов, оптических фононах в твёрдых телах, а также электронных состояниях атомов и молекул. Будет приведён обзор основанных на когерентном и вынужденном КР методов исследования сверхбыстрых процессов в молекулярных и атомных системах на фемто- и аттосекундной временной шкале, а также путей использования явления КР для формирования предельно коротких световых импульсов, включая импульсы длительностью в несколько циклов светового поля и импульсов аттосекундной длительности.

2. Нелинейный отклик и нелинейно-оптическая восприимчивость

В стандартных спектроскопических схемах комбинационное рассеяние приводит к появлению в спектрах рассеянного излучения спутанных линий, смещённых относительно частоты возбуждающего излучения на частоту Ω комбинационно-активной моды — колебательного, вращательного, либрационного движения молекул или возбуждения оптических фононов. Наличие комбинационных частот в спектрах рассеянного излучения используется для определения химического состава газовых смесей и жидкостей, исследования кинетики переноса энергии в молекулах и молекулярных агрегатах, а также для изучения деталей пространственной структуры твёрдых тел, включая квантоворазмерные эффекты в наноструктурированных материалах [13, 20–25, 32].

В поле мощного лазерного излучения может иметь место усиление комбинационных компонент светового

поля — вынужденное комбинационное рассеяние света [10, 12]. Когерентное возбуждение комбинационно-активных мод с помощью излучения бигармонической накачки или с помощью широкополосного поля с шириной спектра $\Delta\omega$, превышающей Ω , лежит в основе методов локальной диагностики газов, плазмы, жидкостей и твёрдых тел методом КАРС, а также когерентного управления квантовыми процессами в атомных и молекулярных системах [13, 20–25]. В режиме сверхкоротких импульсов комбинационное рассеяние света приводит к новым явлениям, позволяющим осуществить высокоэффективное преобразование частоты сверхкоротких импульсов и сформировать предельно короткие импульсы с длительностью, близкой к периоду колебаний светового поля [17, 18, 33–36]. Комбинационное рассеяние сверхкоротких импульсов может приводить к плавному понижению несущей частоты поля, сопровождающему распространение сверхкороткого светового импульса в нелинейной среде [14, 37–39].

Для выяснения общих тенденций эволюции сверхкороткого импульса, связанных с эффектами нелинейного КР, рассмотрим свойства нелинейной поляризации третьего порядка, наводимой в среде световым полем:

$$P_{\text{nl}}(t) = \int_0^\infty \int_0^\infty \int_0^\infty \chi^{(3)}(t_1, t_2, t_3) E_1(t-t_1) E_2(t-t_2) \times \\ \times E_3(t-t_3) dt_1 dt_2 dt_3. \quad (1)$$

Здесь $E_{1,2,3}(\eta)$ — световые поля, которые в общем случае имеют различные несущие частоты $\omega_1, \omega_2, \omega_3$, временные огибающие, направления распространения, начальные фазы и состояния поляризации, $\chi^{(3)}(t_1, t_2, t_3)$ — нелинейно-оптический отклик среды третьего порядка, который связан с нелинейно-оптической кубической восприимчивостью $\chi^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3)$ преобразованием Фурье

$$\chi^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3) \propto \int_0^\infty \int_0^\infty \int_0^\infty \chi^{(3)}(t_1, t_2, t_3) \times \\ \times \exp [i(\omega_1 t_1 + \omega_2 t_2 + \omega_3 t_3)] dt_1 dt_2 dt_3. \quad (2)$$

Вследствие высокой подвижности электронов инерционность электронной части нелинейно-оптического отклика среды может проявляться лишь в специальных режимах взаимодействия предельно коротких световых импульсов со средой, например, в условиях многофотонного поглощения. В полосе прозрачности, как правило, оправданным является приближение безынерционной электронной нелинейности, в котором электронная часть нелинейной поляризации мгновенно следует за внешним полем:

$$\chi_{\text{K}}^{(3)}(t_1, t_2, t_3) = \chi_0 \delta(t_1) \delta(t_2) \delta(t_3), \quad (3)$$

$$P_{\text{nl}}(t) = \chi_{\text{K}} E_1(t) E_2(t) E_3(t). \quad (4)$$

В спектральном представлении приближение (3) соответствует полностью нерезонансной, бездисперсионной, т.е. не зависящей от частотных аргументов, нелинейной восприимчивости

$$\chi_{\text{K}}^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3) \propto \chi_{\text{K}}. \quad (5)$$

Нелинейность такого вида часто называется керровской нелинейностью.

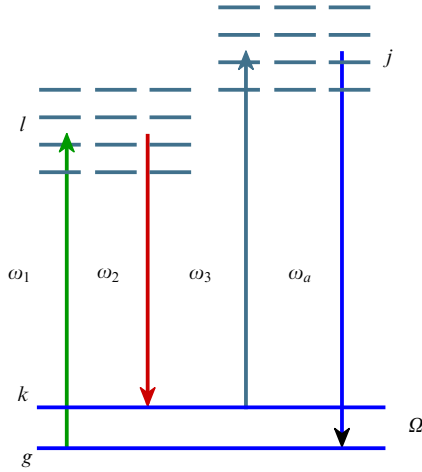


Рис. 1. Диаграмма четырёхфотонного процесса нелинейного КР. Световые поля с частотами ω_1 (поле накачки) и ω_2 (стоксово поле) осуществляют резонансное возбуждение комбинационно-активной моды с частотой Ω , связанной с квантовым переходом $g \rightarrow k$. Пробное поле с частотой ω_3 испытывает рассеяние на подготовленных полями накачки и Стокса когерентности. Возникающее в результате нелинейно-оптического взаимодействия антистоксово поле с частотой $\omega_a = \omega_1 - \omega_2 + \omega_3$ несёт спектроскопическую информацию о системе, позволяет исследовать её временную динамику и обеспечивает высокое пространственное разрешение при химически селективном исследовании пространственного строения объекта.

Эффекты комбинационного рассеяния света возникают при взаимодействии излучения с частицами или квазичастицами (атомы, молекулы, молекулярные агрегаты, фононы), инерционность нелинейно-оптического отклика которых значительно сильнее инерционности оптической нелинейности электронов. В условиях, когда частоты ω_1 , ω_2 , ω_3 световых полей, участвующих в нелинейно-оптическом взаимодействии, далеки от однофотонных и нерамановских многофотонных резонансов квантовой системы, нелинейно-оптический процесс генерации антистоксового сигнала $\omega_a = \omega_1 - \omega_2 + \omega_3$ с резонансом комбинационного типа $\omega_1 - \omega_2 \approx \Omega$ (рис. 1) описывается кубической восприимчивостью вида

$$\chi_R^{(3)}(t_1, t_2, t_3) = \chi_R(t_1) \delta(t_1 - t_2) \delta(t_3). \quad (6)$$

Подставляя формулу (6) в выражение (1) и производя интегрирование по t_1 и t_3 , получаем следующее выражение для нелинейной поляризации:

$$P_{nl}(t) = E_3(t) \int_0^\infty \chi_R(t_1) E_1(t - t_1) E_2(t - t_1) dt_1. \quad (7)$$

Фурье-преобразование формулы (6) приводит к нелинейно-оптической восприимчивости, зависящей только от разности частот $\omega_1 - \omega_2$:

$$\begin{aligned} \chi_R^{(3)}(\omega_1, -\omega_2, \omega_3) &\propto \int_0^\infty \int_0^\infty \int_0^\infty \chi_R^{(3)}(t_1, t_2, t_3) \times \\ &\times \exp [i(\omega_1 t_1 - \omega_2 t_2 + \omega_3 t_3)] dt_1 dt_2 dt_3 = \\ &= \int_0^\infty \chi_R(t_1) \exp [i(\omega_1 - \omega_2) t_1] dt_1 \equiv \chi_R(\omega_1 - \omega_2). \end{aligned} \quad (8)$$

Форма спектра нелинейной восприимчивости $\chi_R(\omega_1 - \omega_2)$ и её количественные характеристики (включи-

чая ширину линии и время отклика) не определены, пока не задан конкретный вид $\chi_R(t_1)$. В частности, $\chi_R(t_1)$ в виде затухающего гармонического осциллятора соответствует комбинационному резонансу лоренцевской формы.

Физическое содержание приближения (6) заключается в том, что нерезонансный оптический отклик системы предполагается мгновенным на масштабе времени, определяемом длительностью световых импульсов и временем отклика резонансной части оптической восприимчивости. Согласно принципу неопределённости соотношение между временами резонансного и нерезонансного откликов зависит от отстройки частоты оптического излучения от частот собственных мод квантовой системы (см. рис. 1). Для наиболее широко распространённых комбинационно-активных веществ это отношение может варьироваться от двух-трёх до шести-восьми порядков величины. Введение временной задержки порядка длительности сверхкороткого фемтосекундного импульса $\tau_d \sim 10$ фс, как правило, оказывается достаточным для значительного (на несколько порядков) подавления вклада нерезонансной составляющей поляризации среды в сигнал когерентного комбинационного рассеяния [22].

Выражения (3)–(5) представляют собой стандартные приближения, используемые для описания преобразования световых импульсов за счёт эффекта Керра. Вдали от границ полосы прозрачности (т.е. вдали от УФ-линий поглощения атомарных газов и границы запрещённой зоны диэлектрических материалов) эти приближения обеспечивают адекватное описание связанных с эффектом Керра нелинейно-оптических процессов даже для импульсов длительностью порядка цикла светового поля T_0 . Однако для полупроводников с узкой запрещённой зоной (например, кремния) или сильно возбуждённых газовых сред выражаемые соотношениями (3)–(5) приближения оказываются неприменимыми для импульсов длительностью порядка T_0 . Характерное время отклика керровской нелинейности таких материалов определяется отстройкой частот световых импульсов от границы полосы прозрачности [40].

3. Квантовая картина: комбинационное рассеяние как метод аттосекундной спектхронографии

Представление нелинейно-оптического отклика в виде произведения дельта-функций (формулы (3) и (6)) является математической идеализацией. В случае нелинейного КР такая модель, как видно из выражения (8), приводит к нелинейно-оптической восприимчивости, которая зависит только от разности частот $\omega_1 - \omega_2$ и не зависит от каждой из частот ω_1 , ω_2 , ω_3 . Ограничения такой модели и физическое содержание зависимости нелинейной восприимчивости $\chi_R^{(3)}$ от частот ω_1 , ω_2 , ω_3 становятся ясными в рамках квантовой теории комбинационного рассеяния, рассматривающей процесс когерентного КР как результат взаимодействия световых полей с собственными состояниями квантовой системы (см. рис. 1). В рамках квантовой модели имеем следующее выражение [10, 12] для нелинейно-оптической восприимчивости третьего порядка, соответствующей процессу когерентного КР на переходе между состояниями квантовой системы с собственными энергиями

$E_k = \hbar\omega_k$ и $E_g = \hbar\omega_g$ (см. рис. 1), так что $\omega_k - \omega_g = \Omega \approx \omega_1 - \omega_2$:

$$\chi^{(3)}(\omega_a = \omega_1 - \omega_2 + \omega_3) \propto \sum_{jl} \frac{\mu_{gj} \mu_{jk} \mu_{kl} \mu_{gl}}{(\omega_{jg} - \omega_a)(\omega_{kg} - (\omega_1 - \omega_2))(\omega_{lg} - \omega_1)}, \quad (9)$$

где μ_{gj} , μ_{jk} , μ_{kl} , μ_{gl} — матричные элементы дипольных моментов для переходов между собственными состояниями квантовой системы $g \rightarrow j$, $j \rightarrow k$, $k \rightarrow l$, $l \rightarrow g$ соответственно; ω_{jg} , ω_{lg} — частоты переходов $g \rightarrow j$, $l \rightarrow g$; $\omega_{kg} = \Omega$ — частота комбинационного перехода $g \rightarrow k$ (см. рис. 1).

Для рассматриваемых в настоящем обзоре явлений когерентного комбинационного рассеяния сверхкоротких (широкополосных) световых импульсов полезно воспользоваться формулами (7)–(9) и представить выражение для наводимой в комбинационно-активной среде нелинейной поляризации в следующем виде [41]:

$$P_{nl}(\omega_a) \propto \int_0^\infty E_1(\omega') d\omega' \times \int_0^\infty \frac{E_2^*(\omega' - \omega'') E_3(\omega_a - \omega'')}{(\Omega - \omega'') + i\Gamma} d\omega'', \quad (10)$$

где $E_{1,2,3}(\omega)$ — спектры световых полей, Γ — ширина спектра комбинационно-активного перехода. Формула (10) обеспечивает высокую точность описания спектров когерентного комбинационного рассеяния сверхкоротких импульсов, включая комбинационное рассеяние импульсов со сложными и быстро меняющимися профилями фазы [13, 41].

Выражение (9) наглядно иллюстрирует соотношение между восприимчивостью $\chi_R^{(3)}$ и отстройкой частот световых полей от собственных частот системы в случае процесса типа когерентного КР. В соответствии с принципом неопределённости $\Delta E \Delta t \geq \hbar$ частотные отстройки $\Delta\omega_j = \omega_{jg} - \omega_a$ и $\Delta\omega_l = \omega_{lg} - \omega_1$, входящие в выражение (9), определяют верхние пределы $\Delta\tau_j \leq (\Delta\omega_j)^{-1}$, $\Delta\tau_l \leq (\Delta\omega_l)^{-1}$ для времён возбуждения собственных состояний системы, участвующих в процессе КР в качестве так называемых виртуальных состояний системы (см. рис. 1). Благодаря малости временных интервалов $\Delta\tau_j$ и $\Delta\tau_l$ комбинационное рассеяние света может быть использовано для получения информации о сверхбыстрой эволюции волновой функции возбуждённой квантовой системы. Методы комбинационного рассеяния рентгеновского излучения синхротронных источников на молекулярных системах позволяют получать информацию о динамике волновых пакетов, формируемых в возбуждённых электронных состояниях молекулярной системы, с аттосекундным временным разрешением [42]. Для широкого класса органических красителей с характерной низкочастотной границей полосы поглощения около 350 нм, возбуждаемых ИК-излучением фемтосекундных лазерных источников (800 нм для титан-сапфирового лазера, 1,25 мкм для хром-форстеритного лазера), времена $\Delta\tau_j$ и $\Delta\tau_l$ лежат в диапазоне 250–300 ас ($1 \text{ ас} = 10^{-18} \text{ с}$). Повышение эффективности когерентного рассеяния света в условиях близости частот световых полей собственным частотам квантовой системы (например, в режиме резонансного КАРС) обеспечивается, как видно из выражения (9), ценой увеличения времени

возбуждения участвующих в комбинационном рассеянии квантовых состояний (виртуальных состояний, рис. 1) и усиления инерционных свойств комбинационного отклика системы [40].

4. Фазовый синхронизм

Эффективность передачи энергии от лазерных полей сигналу когерентного комбинационного рассеяния света ограничена расстройкой фаз волны нелинейной поляризации P_{nl} и поля, генерируемого в результате когерентного КР [10, 12]. Для рассматриваемого здесь процесса генерации антистоксова сигнала с центральной частотой $\omega_a = \omega_1 - \omega_2 + \omega_3$ в поле лазерных импульсов с центральными частотами ω_1 , ω_2 и ω_3 фазовая расстройка, определяющая эффективность когерентного комбинационного рассеяния света, имеет вид

$$\Delta\varphi = \varphi_a - \varphi_p = \varphi_a - \varphi_1 + \varphi_2 - \varphi_3,$$

где φ_a — фаза антистоксова сигнала, φ_p — фаза наводимой в среде нелинейной поляризации, $\varphi_{1,2,3}$ — фазы лазерных полей с частотами $\omega_{1,2,3}$.

Фазовая расстройка $\Delta\varphi$ может быть представлена в виде суммы $\Delta\varphi = \Delta\varphi_d + \Delta\varphi_g + \Delta\varphi_{nl}$, где $\Delta\varphi_d$ — слагаемое, связанное с дисперсией (частотной зависимостью показателя преломления) среды, $\Delta\varphi_g$ и $\Delta\varphi_{nl}$ — разности геометрических и нелинейных (зависящих от интенсивности) набегов фазы для участвующих в нелинейно-оптическом взаимодействии полей. Для плоских волн связанная с материальной дисперсией составляющая фазовой расстройки имеет вид

$$\Delta\varphi_d = c^{-1}(\omega_a n_a - \omega_1 n_1 + \omega_2 n_2 - \omega_3 n_3),$$

где n_a и $n_{1,2,3}$ — показатели преломления среды на частотах ω_a и $\omega_{1,2,3}$.

Максимальная связь между участвующими в нелинейно-оптическом процессе световыми полями и, следовательно, максимальная эффективность генерации сигнала когерентного КР достигаются в условиях фазового синхронизма $\Delta\varphi = 0$. Это условие часто может быть выполнено [13] с помощью правильного выбора неколлинеарной геометрии нелинейно-оптического взаимодействия или за счёт компенсации материальной составляющей фазовой расстройки $\Delta\varphi_d$ геометрической фазой $\Delta\varphi_g$. Широкое распространение получили методы фазового согласования нелинейно-оптических взаимодействий за счёт использования дисперсии волноводных мод [14]. Изменением поперечной структуры световода удаётся осуществить целенаправленное формирование частотных профилей дисперсии волноводных мод [43]. В таких световодных структурах удаётся реализовать синхронные по фазе нелинейно-оптические взаимодействия в широкой полосе частот, что обеспечивает высокую эффективность преобразования частоты сверхкоротких световых импульсов [44, 45]. Обусловленная нелинейным сдвигом фазы составляющая фазовой расстройки $\Delta\varphi_{nl}$ при определённых типах частотного профиля дисперсии приводит к возникновению модуляционной неустойчивости световых полей [14] и открывает возможности управляемого преобразования спектра и временной огибающей сверхкоротких световых импульсов [13].

5. Эволюция предельно коротких импульсов в комбинационно-активной среде

Анализ нелинейного сдвига фазы играет ключевую роль в понимании широкого класса нелинейно-оптических процессов, сопровождающих распространение сверхкоротких импульсов в нелинейной среде, включая фазовую само- и кросс-модуляцию, солитонные явления, эффекты модуляционной неустойчивости. В условиях, когда ширина спектра лазерных импульсов превышает частоту комбинационно-активных мод, анализ нелинейного сдвига фазы также позволяет адекватно описать эффекты нелинейного комбинационного рассеяния света.

Нелинейный сдвиг фазы, возникающий при распространении светового импульса в среде с нелинейно-оптическими восприимчивостями керровского и рамановского типов (см. формулы (3) и (6)), имеет вид [14, 46]

$$\varphi(\eta, z) = -k_0 n_2 z \int_{-\infty}^{\eta} I(\xi) R(\eta - \xi) d\xi, \quad (11)$$

где $k_0 = 2\pi/\lambda$, λ — центральная длина волны излучения, $n_2 = (2\pi/n_0)^2 \chi^{(3)}(\omega, -\omega, \omega)$ — коэффициент оптической нелинейности, n_0 — показатель преломления среды в отсутствие поля, z — координата, отсчитываемая вдоль направления распространения светового импульса, η — время в сопровождающей системе координат, движущейся с групповой скоростью импульса, $I(\eta)$ — профиль огибающей интенсивности светового поля,

$$R(\theta) = (1 - f_R) \delta(\theta) + f_R H(\theta) \quad (12)$$

— нелинейно-оптический отклик среды [47, 48]. Слагаемое, имеющее вид дельта-функции в выражении (12), описывает нелинейность керровского типа (ср. с формулой (3)). Запаздывающая часть оптической нелинейности, обуславливающая эффекты комбинационного рассеяния, описывается функцией $H(\theta)$, которая связана с определяемой формулой (6) нелинейно-оптической восприимчивостью $\chi_R(\omega_1 - \omega_2)$ соотношением вида [47, 48]

$$H(\theta) \propto \int_{-\infty}^{\infty} \chi_R(\omega) \exp(-i\omega\theta) d\omega.$$

Весовой фактор f_R характеризует вклад запаздывающей нелинейности в суммарный нелинейно-оптический отклик среды.

Подставляя выражение (12) в (11), получаем

$$\varphi(\eta, z) = \varphi_K(\eta, z) + \varphi_R(\eta, z), \quad (13)$$

где

$$\varphi_K(\eta, z) = -k_0 n_2 z (1 - f_R) I(\eta), \quad (14)$$

$$\varphi_R(\eta, z) = -k_0 n_2 z f_R \int_{-\infty}^{\eta} I(\xi) H(\eta - \xi) d\xi. \quad (15)$$

Формула (14) даёт стандартное выражение для нелинейного сдвига фазы, индуцируемого нелинейностью керровского типа. Сдвиг фазы φ_K линейно зависит от коэффициента n_2 , длины взаимодействия импульса со средой z и пиковой интенсивности импульса I_0 , опреде-

ляемой как $I(\eta) = I_0 \psi(\eta)$, $\psi(\eta)$ — нормированный на единицу профиль интенсивности поля. Вблизи максимума светового импульса с произвольной формой огибающей имеем

$$\psi(\eta) \approx 1 + \frac{1}{2} \frac{\partial^2 \psi}{\partial \eta^2} \Big|_{\eta=0} \eta^2. \quad (16)$$

Для этой части импульса нелинейность керровского типа приводит к возникновению квадратичной по времени модуляции фазы и линейной по времени девиации $\delta\omega(t) = \omega(t) - \omega_0$ мгновенной частоты $\omega(t)$ относительно центральной частоты поля ω_0 (линейному chirпу):

$$\begin{aligned} \delta\omega_K(t) &= \frac{\partial \varphi_K}{\partial t} = -k_0 n_2 z I_0 (1 - f_R) \frac{\partial \psi(\eta)}{\partial \eta} \approx \\ &\approx k_0 n_2 z I_0 (1 - f_R) \frac{\partial^2 \psi}{\partial \eta^2} \Big|_{\eta=0} \eta. \end{aligned} \quad (17)$$

В частном случае гауссова импульса

$$\psi(\eta) = \exp\left(-\frac{\eta^2}{\tau_p^2}\right) \quad (18)$$

наводимый керровской нелинейностью сдвиг фазы (14) принимает вид

$$\varphi_K(\eta, z) = -k_0 n_2 z (1 - f_R) I_0 \exp\left(-\frac{\eta^2}{\tau_p^2}\right). \quad (19)$$

Вблизи максимума импульса, $\eta/\tau_p \ll 1$, где $\psi(\eta) \approx 1 - \eta^2/\tau_p^2$, имеем

$$\delta\omega_K(t) \approx 2k_0 n_2 z I_0 (1 - f_R) \frac{\eta}{\tau_p^2}. \quad (20)$$

Для расчёта нелинейного сдвига фазы, вызываемого запаздывающей нелинейностью, требуется в явном виде задать функцию отклика $H(\xi)$. Одной из наиболее распространённых моделей функции нелинейного отклика, соответствующей процессу комбинационного рассеяния, является модель демпфированного гармонического осциллятора:

$$H(\theta) = \frac{\tau_1^2 + \tau_2^2}{\tau_1 \tau_2^2} \sin\left(\frac{\theta}{\tau_1}\right) \exp\left(-\frac{\theta}{\tau_2}\right) \Theta(\theta), \quad (21)$$

где $\tau_1 = \Omega_R^{-1}$, τ_2 — время затухания комбинационно-активной моды, $\Theta(\theta)$ — функция единичной ступеньки (функция Хевисайда). Модель (21) с различными значениями параметров τ_1 и τ_2 с успехом используется для анализа эволюции сверхкоротких импульсов в средах с комбинационными модами различной физической природы, таких как молекулярные газы [49–51] (включая атмосферный воздух), полупроводниковые твердотельные материалы [52] и использующийся в световодах плавленый кварц [14, 47, 48]. Ниже мы подробнее остановимся на физическом содержании и ограничениях модели затухающего гармонического осциллятора в случае молекулярных газов и твёрдых тел (см. раздел 5).

В случае светового импульса с гауссовой огибающей запаздывающая нелинейность с функцией отклика (21)

приводит к нелинейному сдвигу фазы вида [46]

$$\varphi_R(\eta, z) = -k_0 n_2 z f_R i I_0 \frac{\sqrt{\pi}}{4} \frac{\tau_p(\tau_1^2 + \tau_2^2)}{\tau_1 \tau_2^2} \times \\ \times \left\{ \exp \left[\frac{\tau_p^2}{4} \left(\frac{1}{\tau_2} - \frac{2\eta}{\tau_p} + \frac{i}{\tau_1} \right)^2 \right] \operatorname{erfc} \left[\frac{\tau_p}{2} \left(\frac{1}{\tau_2} - \frac{2\eta}{\tau_p} + \frac{i}{\tau_1} \right) \right] - \right. \\ \left. - \exp \left[\frac{\tau_p^2}{4} \left(\frac{1}{\tau_2} - \frac{2\eta}{\tau_p} - \frac{i}{\tau_1} \right)^2 \right] \operatorname{erfc} \left[\frac{\tau_p}{2} \left(\frac{1}{\tau_2} - \frac{2\eta}{\tau_p} - \frac{i}{\tau_1} \right) \right] \right\}, \quad (22)$$

где

$$\operatorname{erfc} \theta = 1 - 2\pi^{-1/2} \int_0^\theta \exp(-\xi^2) d\xi.$$

Для слабо инерционной нелинейности, когда $\tau_1, \tau_2 \ll \tau_p$, использование асимптотического представления $\operatorname{erfc} \zeta \approx \zeta^{-1} \pi^{-1/2} \exp(-\zeta^2)$ приводит выражение (22) к виду

$$\varphi_R(\eta, z) \approx -k_0 n_2 z f_R I_0 \exp\left(-\frac{\eta^2}{\tau_p^2}\right) \left(1 + 2\mu \frac{\eta}{\tau_p}\right), \quad (23)$$

где введён малый параметр $\mu = \tau_p^{-1} \tau_2^{-1} (\tau_1^{-2} + \tau_2^{-2})^{-1}$.

Из выражений (19) и (23) следует, что в линейном приближении по малому параметру μ эффекты, связанные со слабой инерцией нелинейно-оптического отклика, приводят к появлению фактора $1 + 2\mu\eta/\tau_p$ в выражении для нелинейного набега фазы. Вблизи максимума светового импульса, $\eta/\tau_p \ll 1$, где $\psi(\eta) \approx 1 - \eta^2/\tau_p^2$, этот фактор даёт линейную ($\propto \mu\eta/\tau_p$) и кубическую ($\propto \mu\eta^3/\tau_p^3$) поправки к слагаемому $\propto \eta^2/\tau_p^2$, описывающему квадратичную модуляцию фазы за счёт мгновенной электронной нелинейности. Соответствующее выражение для чирпа имеет вид

$$\delta\omega_R(t) \approx 2k_0 n_2 z I_0 f_R \left[\frac{\eta}{\tau_p^2} - \frac{\mu}{\tau_p} \left(1 - 3 \frac{\eta^2}{\tau_p^2}\right) \right]. \quad (24)$$

Малые поправки к линейному чирпу $\propto \eta/\tau_p^2$, индуцируемому керровской нелинейностью, в выражении (24) соответствуют равномерному уменьшению частоты $\propto -\mu/\tau_p$ и квадратичному чирпу $\propto (\mu/\tau_p)(\eta/\tau_p)^2$. Непрерывный низкочастотный сдвиг спектра сверхкоротких импульсов, обусловленный влиянием запаздывающей оптической нелинейности, широко исследуется в связи с явлением сдвига частоты оптических солитонов в световодах. В солитонном режиме пиковая мощность солитона P связана с его длительностью соотношением $P \propto \tau_s^{-2}$. При этом скорость низкочастотного сдвига спектра солитона $\partial|\Delta f|/\partial z$ (где Δf — сдвиг частоты солитона) в предположении линейной зависимости коэффициента комбинационного усиления от частоты пропорциональна τ_s^{-4} [53].

Для несолитонных световых импульсов, т.е. в отсутствие баланса дисперсии и нелинейности, пиковая мощность импульса пропорциональна τ_p^{-1} . В этом режиме скорость низкочастотного сдвига спектра импульса пропорциональна τ_p^{-3} (см. также [54]). С учётом связи пиковой мощности импульса и его длительности в солитонном и несолитонном режиме оба вида зависимости низкочастотного сдвига спектра сверхкороткого импульса (τ_s^{-4} и τ_p^{-3}) прямо следуют из выражения (24). Для получения этих зависимостей достаточно вычислить

производную $\partial(|\delta\omega_{R1,2}|)/\partial z$ от частотного сдвига, описываемого выражением (17), и произвести подстановку $I_0 = P/S \propto \tau_s^{-2}$ для солитонного режима или $I_0 = P/S \propto \tau_p^{-1}$ для несолитонных импульсов (здесь S — эффективная площадь светового пучка).

В противоположном пределе сверхкоротких световых импульсов, $\tau_p \ll \tau_1, \tau_2$, когда эффекты, связанные с инерцией оптической нелинейности, проявляются особенно сильно, интегрирование в выражении (14) с функцией отклика $H(\theta)$ вида (21) приводит к следующему результату [46]:

$$\varphi_R(\eta, z) \approx -k_0 n_2 z f_R I_0 \frac{\sqrt{\pi}}{2} \varepsilon \operatorname{erfc} \left(-\frac{\eta}{\tau_p} \right), \quad (25)$$

где $\varepsilon = \tau_1 \mu^{-1} \tau_2^{-1} = \tau_p \tau_1 (\tau_1^{-2} + \tau_2^{-2})$ — малый параметр.

Вблизи максимума светового импульса, $\eta/\tau_p \ll 1$, используя разложение Тейлора

$$\operatorname{erfc} \zeta \approx 1 - 2\pi^{-1/2} \left(\zeta - \frac{\zeta^3}{3} + \frac{\zeta^5}{10} \right),$$

приводим выражение (25) к виду

$$\varphi_R(\eta, z) \approx -k_0 n_2 z f_R \varepsilon I_0 \left[\frac{\sqrt{\pi}}{2} + \frac{\eta}{\tau_p} - \frac{1}{3} \left(\frac{\eta}{\tau_p} \right)^3 + \frac{1}{10} \left(\frac{\eta}{\tau_p} \right)^5 \right]. \quad (26)$$

В этом режиме набеги фазы и частотные сдвиги, обусловленные инерциальной составляющей оптической нелинейности, малы, так как длительность светового импульса слишком коротка для эффективного взаимодействия светового поля с комбинационно-активными модами. Далее мы рассмотрим особенности взаимодействия сверхкоротких световых импульсов с комбинационно-активными модами различной физической природы, включая колебательные и вращательные движения молекул в газе и оптические фононы в твёрдом теле.

6. Молекулярные модуляторы света и управление оптической нелинейностью молекулярных газов

Эффекты комбинационного рассеяния света на вращательных и колебательных модах молекул играют важную роль в динамике сверхкоротких лазерных импульсов, распространяющихся в молекулярном газе. Лазерные импульсы длительностью короче 100 фс, широко используемые в оптических экспериментах, обладают шириной спектра, достаточной для возбуждения набора комбинационно-активных мод, связанных с вращением молекул. Фазированное возбуждение молекулярных вращательных мод приводит к возникновению периодических всплесков изменения показателя преломления газа $\Delta n(\eta)$. Таким образом, пробный фемтосекундный импульс с центральной длиной волны λ , задержанный во времени относительно светового импульса, инициирующего молекулярные вращения, испытывает зависящий от длины нелинейно-оптического взаимодействия l сдвиг фазы

$$\varphi_{nl}(\eta) = \frac{2\pi}{\lambda} l \Delta n(\eta) \quad (27)$$

с соответствующим сдвигом частоты.

Для описания комбинационного отклика вращательных движений молекул обычно используется модель среды, состоящей из набора гармонических осцилляторов [55–58],

$$R(\theta) \propto \sum_J F_J \sin(-\omega_J \theta). \quad (28)$$

Здесь J — вращательное квантовое число,

$$F_J = (\rho_{J+1} - \rho_J) \frac{Z_J(J+2)(J+1)}{2J+3}, \quad (29)$$

$$\rho_J = \exp\left[-\frac{chBJ(J+1)}{kT}\right] \times \left\{ \sum_J Z_J(2J+1) \exp\left[-\frac{chBJ(J+1)}{kT}\right] \right\}^{-1}, \quad (30)$$

h — постоянная Планка, c — скорость света, k — постоянная Больцмана, T — температура газа, B — вращательная постоянная, Z_J — весовой фактор,

$$\omega_J = 4\pi Bc(2J+3) \quad (31)$$

— частоты переходов между вращательными состояниями.

Для молекулярного азота N_2 , составляющего около 80 % атмосферного воздуха, имеем следующие значения констант, входящих в формулы (28)–(31): $B \approx 1,99 \text{ см}^{-1}$, $Z_J = 1$ и 2 для нечётных и чётных J соответственно [58]. Для молекул кислорода O_2 , составляющих около 20 % атмосферного воздуха, имеем $B \approx 1,44 \text{ см}^{-1}$, $Z_J = 1$ и 0 для нечётных и чётных J соответственно [58].

Как видно из формул (28)–(31), форма вращательного спектра комбинационного рассеяния молекулярного газа зависит от температуры. Это свойство КР в газах (прежде всего нелинейных вариантов комбинационного рассеяния света, таких как КАРС) широко используется для термометрии газов, пламени и плазмы [20, 21]. Увеличение температуры приводит к заселению возбуждённых вращательных состояний и уменьшению разности населённостей между вращательными состояниями, дающими вклад в сигнал комбинационного рассеяния. Вследствие этого нагрев газа приводит к уширению спектра КР.

Во временном представлении набор комбинационных линий, образующий спектр КР, соответствует сумме гармонически осциллирующих слагаемых, каждое из которых описывает комбинационный переход с частотой ω_J . Разность частот соседних переходов

$$\Delta\omega = \omega_{J+1} - \omega_J = 8\pi Bc \quad (32)$$

не зависит от квантового числа J , что приводит к возникновению всплесков вращательного эхо, соответствующих периодической фазировке молекулярных вращений (рис. 2а–в). Это явление известно как возрождение вращательных волновых пакетов [59, 60]. Длительность каждого вращательного эхо-сигнала определяется шириной $\delta\omega$ вращательной полосы в спектре КР и, таким образом, зависит от температуры газа (рис. 2а–в). Релаксация вращательной когерентности в ансамбле молекул приводит к экспоненциальному спаду амплитуды эхо-сигналов с характерным временем 61 пс для молекулярного азота и 68 пс для молекулярного кислорода.

Для выяснения поляризационных свойств запаздывающего нелинейно-оптического отклика комбинационно-активного газа необходимо учесть тензорные свойства нелинейно-оптической восприимчивости среды. Для изотропной среды имеются три независимых компонента тензора χ_{ijkl} ($i, j, k, l = 1, 2, 3$), которые могут быть выбраны среди четырёх физически значимых элементов тензора [12, 61]:

$$\chi_{1111} \propto \frac{1}{3} G_1 + \frac{2}{3} G_2, \quad (33)$$

$$\chi_{1212} \propto \frac{1}{2} G_2 - \frac{1}{2} G_3, \quad (34)$$

$$\chi_{1221} \propto \frac{1}{2} G_2 + \frac{1}{2} G_3, \quad (35)$$

$$\chi_{1122} \propto \frac{1}{3} G_1 - \frac{1}{3} G_2, \quad (36)$$

где G_1, G_2, G_3 — автокорреляционные функции соответственно изотропной, симметричной и антисимметричной части молекулярной поляризуемости, представляющие собой инвариантные относительно вращений молекулярные параметры. Как следует из выражений (33)–(36), компоненты тензора нелинейно-оптической восприимчивости удовлетворяют следующему характерному для изотропной среды соотношению: $\chi_{1212} + \chi_{1221} + \chi_{1122} = \chi_{1111}$. Поляризационная зависимость нелинейно-оптического отклика газовой среды, описываемая выражениями (33)–(36), позволяет управлять амплитудой и фазой эхо-осцилляций показателя преломления $\Delta n(\eta)$ путём изменения состояния поляризации поля накачки и пробного импульса.

Для экспериментального исследования возможностей поляризационного и фазового управления запаздывающей оптической нелинейностью атмосферы использовалась фемтосекундная лазерная система в составе задающего генератора фемтосекундных импульсов на титанате сапфира, накачиваемого излучением второй гармоники лазера на гранате с неодимом, а также многопроходного усилителя. Фемтосекундная лазерная система позволяла получать импульсы излучения с центральной длиной волны около 800 нм длительностью 50 фс, с энергией до 1,5 мДж на частоте повторения 50 Гц.

На рисунке 3 представлены результаты измерения [62] сдвига центральной длины волны $\delta\lambda_p$ слабого пробного лазерного импульса длительностью 50 фс в зависимости от времени задержки τ пробного импульса относительно одиночного возбуждающего импульса, имевшего длительность 50 фс и энергию 0,8 мДж. В представленной зависимости $\delta\lambda_p(\tau)$ наблюдаются ярко выраженные эхо-осцилляции, связанные с возбуждением вращательных степеней свободы молекул кислорода и азота в атмосферном воздухе. Время затухания вращательной когерентности для молекул N_2 и O_2 при нормальных условиях составляет 61 и 68 пс соответственно. Благодаря этому периодическая фазировка молекулярных вращений приводит к формированию достаточно протяжённых последовательностей эхо-осцилляций в измеряемой зависимости $\lambda_p(\tau)$. Важно отметить, что осцилляции в эхо-сигналах, разделённых интервалом времени $\delta t = (4Bc)^{-1}$, имеют противоположные фазы, т.е. имеют сдвиг по фазе, равный π . Это обстоятельство позволяет легко различать временные метки, соответствующие

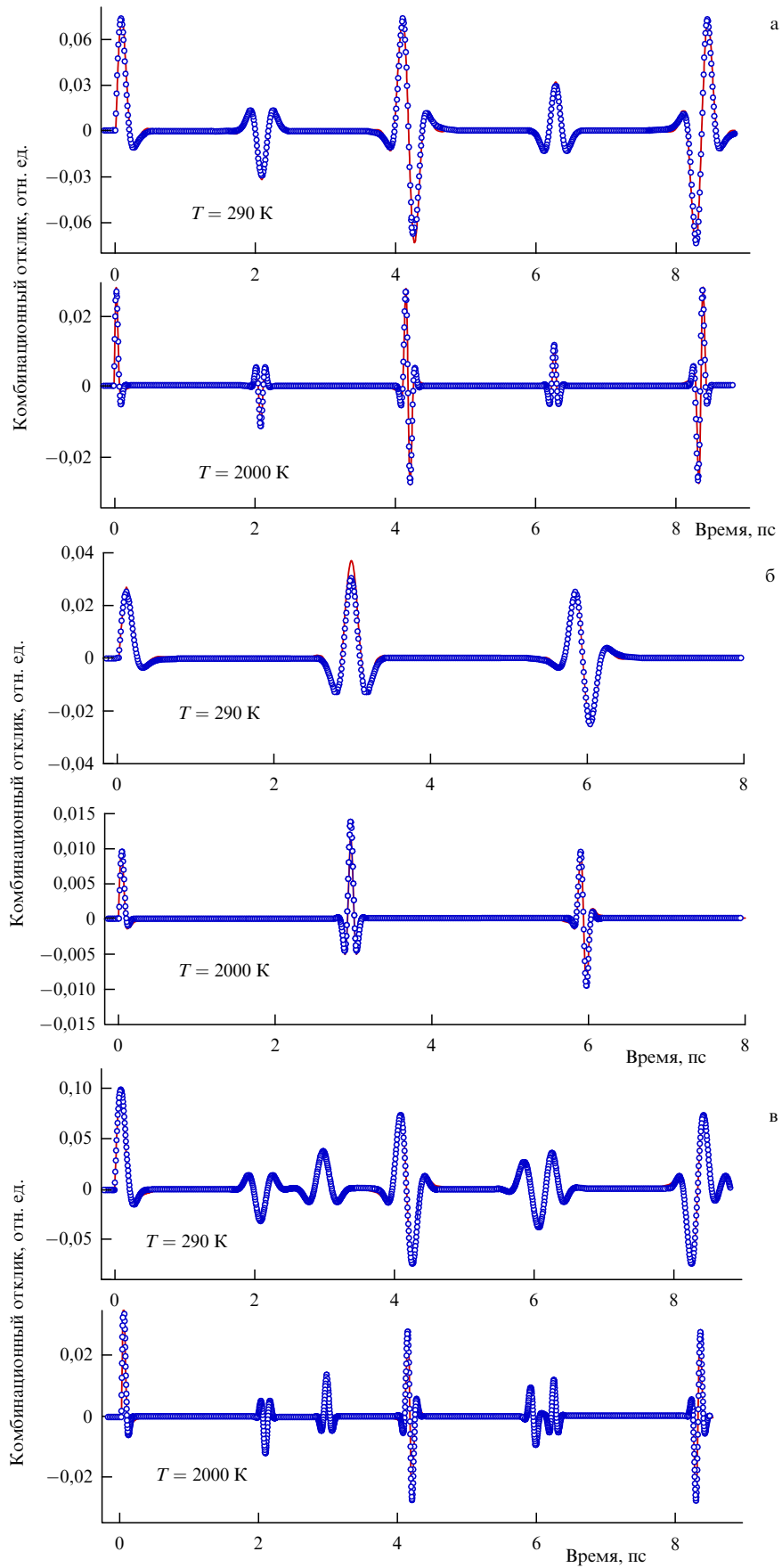


Рис. 2. Функции временного отклика для КР на вращательных модах молекулярного азота (а), молекулярного кислорода (б) и атмосферного воздуха (80 % молекулярного азота и 20 % молекулярного кислорода) (в), рассчитанные с помощью формул (26)–(29) (сплошные линии) и с использованием выражения (31) (кружки).

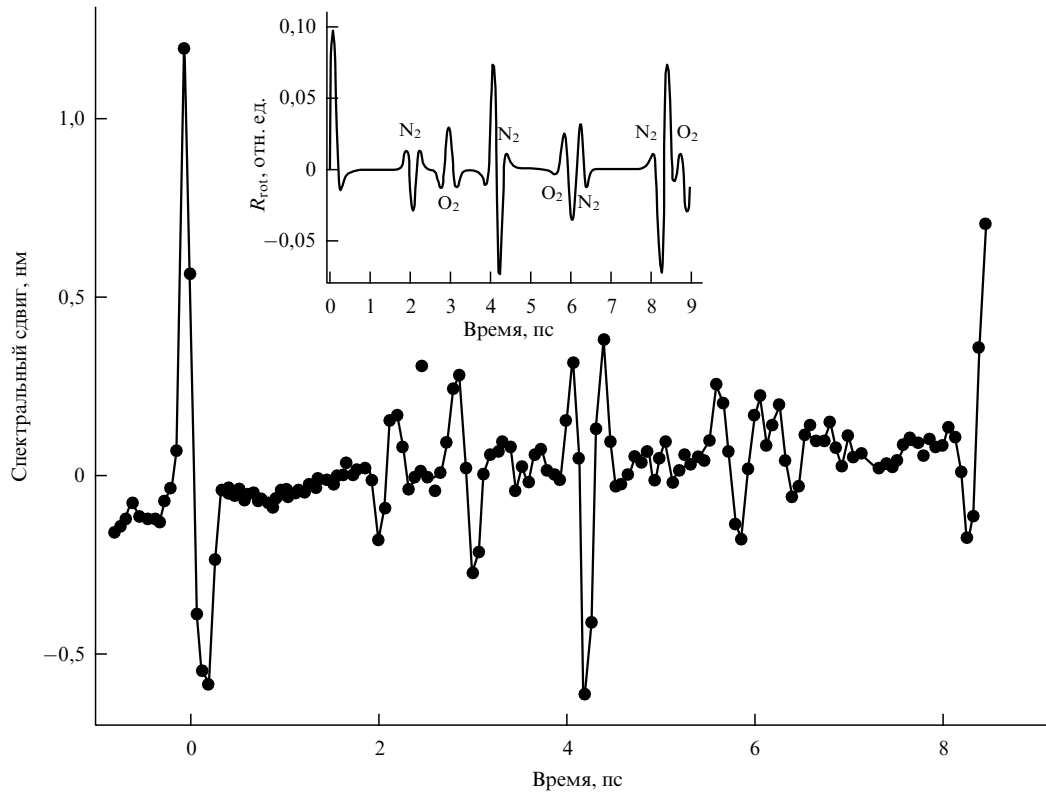


Рис. 3. Зависимость сдвига центральной длины волны пробного импульса от времени задержки между пробным импульсом и импульсом накачки. Энергия импульса накачки 0,8 мДж. Длительность пробного импульса и импульса накачки 50 фс. Поляризация поля накачки параллельна поляризации поля пробного импульса. На вставке показана вращательная часть рамановской функции атмосферного воздуха R_{rot} , рассчитанная с помощью выражений (26)–(29) для температуры газа 290 К. Указано соответствие между всплесками осцилляций рамановской функции и вращательных мод молекул азота и кислорода.

соседним эхо-сигналам. Вместе с тем, благодаря различию вращательных постоянных молекул O_2 и N_2 , система эхо-сигналов, связанных с вращательным комбинационным рассеянием на молекулах O_2 , смещена на временной шкале относительно аналогичных сигналов, формируемых за счёт комбинационного рассеяния на вращательных состояниях молекул N_2 . Наложение двух систем временных меток с различным периодом обуславливает уникальность структуры временных меток на каждом из периодов $\delta t = (4Vc)^{-1}$, позволяя легко различать участки в последовательности опорных временных сигналов.

Изменение угла θ между векторами поляризации поля накачки и пробного импульса приводит к заметному изменению временной формы эхо-сигналов. В частности, осцилляции фазы пробного поля, наводимые параллельно ($\theta = 0$) и ортогонально ($\theta = \pi/2$) поляризованным полем накачки, имеют различные амплитуды и противоположны по фазе. Эти свойства нелинейно-оптического отклика атмосферы легко объяснить на основе анализа тензорных свойств нелинейно-оптической восприимчивости. Действительно, как следует из выражений (33)–(36), в случае параллельно поляризованных полей накачки и пробного импульса, $\theta = 0$, регистрируемый сигнал определяется параметром χ_{1111} . Для случая перпендикулярно поляризованных полей, $\theta = \pi/2$, регистрируется сигнал, определяемый χ_{1122} . Таким образом, в обоих случаях в сигнале наблюдаются осцилляции автокорреляционной функции симметричной части молекулярной поляризуемости G_2 . Однако содержащее G_2 слагаемое в выражении для χ_{1122} проти-

воположно по фазе и в два раза меньше по амплитуде слагаемого, содержащего G_2 , в выражении для χ_{1111} . Именно это свойство тензора χ_{ijkl} и проявляется в экспериментально наблюдаемых свойствах осцилляций фазы пробного поля в экспериментах с параллельно и перпендикулярно поляризованным полем накачки.

Для исследования временной зависимости двулучепреломления, наводимого в газовой среде мощным импульсом накачки, вектор линейно поляризованного пробного импульса ориентировался под углом $\theta = \pi/4$ относительно вектора поляризации поля накачки. В отсутствие импульса накачки пробное поле полностью блокируется поляризационным анализатором. Уровень регистрируемого сигнала при этом соответствует уровню шумов приёмника. При включённом поле накачки регистрируются всплески пробного сигнала, прошедшего через анализатор поляризации, при временах задержки, соответствующих временам фазировки вращательных движений молекул азота и кислорода (см. рис. 3). Регистрируемый для данной поляризационной геометрии сигнал в соответствии с выражениями (34) и (35) определяется автокорреляционной функцией симметричной части молекулярной поляризуемости, $\chi_{1212} + \chi_{1221} \propto G_1$. Величина возникающего при этом двулучепреломления определяется амплитудой импульса накачки и временем задержки между полем накачки и пробным импульсом. Реализованная поляризационная схема, таким образом, позволяет осуществить временное стробирование мощных сверхкоротких импульсов, передаваемых на большие расстояния через атмосферу, и может быть использована для синхронизации мощных

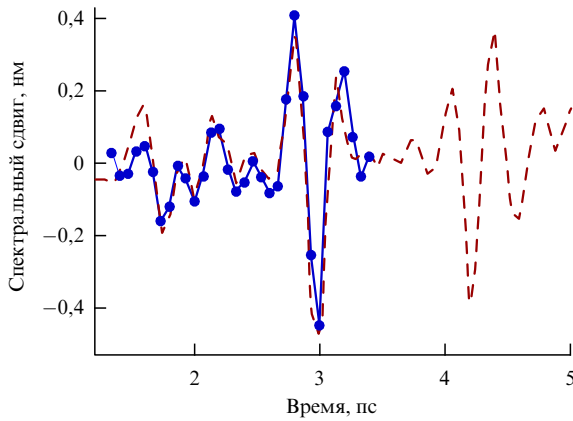


Рис. 4. Активное формирование временного профиля запаздывающей оптической нелинейности атмосферного воздуха с помощью поля накачки, состоящего из двух фемтосекундных импульсов. Приведена зависимость сдвига центральной длины волны пробного импульса от времени задержки между пробным импульсом и вторым импульсом накачки. Энергия импульсов накачки 0,4 мДж. Длительность пробного импульса и импульсов накачки 50 фс. Время задержки между импульсами накачки $\delta \approx 1260$ фс. Соединёнными сплошной линией точками показаны результаты измерений. Штриховой линией представлена сумма $\delta\lambda_p(\tau) + \delta\lambda_p(\tau + \delta)$, где $\delta\lambda_p(\tau)$ — временная зависимость сдвига центральной длины волны пробного импульса, измеренная в экспериментах с накачкой, состоящей из одиночного фемтосекундного импульса.

оптических импульсов на больших расстояниях и измерения параметров таких импульсов.

Поле накачки в виде последовательности сверхкоротких лазерных импульсов позволяет сформировать более сложные по сравнению со случаем одиночного импульса накачки временные профили изменения показателя преломления $\Delta n(\eta)$. На рисунке 4 представлены результаты измерений [62], выполненных с использованием поля накачки, состоящей из двух идентичных световых импульсов длительностью 50 фс и энергией 0,4 мДж каждый, задержанных друг относительно друга на время $\delta \approx 1260$ фс. Для сравнения штриховой линией на рис. 4 показана сумма $\delta\lambda_p(\tau) + \delta\lambda_p(\tau + \delta)$, где $\delta\lambda_p(\tau)$ — временная зависимость сдвига центральной длины волны пробного импульса, измеренная в экспериментах с накачкой, состоящей из одиночного фемтосекундного импульса (см. рис. 3). Как следует из представленных на рис. 4 результатов, первый и второй импульсы накачки формируют практически идентичные последовательности эхо-сигналов, сдвинутые друг относительно друга на время задержки δ . Затухание вращательной когерентности с постоянной времени τ_r приводит к небольшому отличию амплитуд соответствующих эхо-сигналов в этих последовательностях, количественно описываемому фактором $\xi = \exp(-\delta/\tau_r) \approx 1 - \delta/\tau_r$. При времени задержки $\delta \approx 1260$ фс для молекул азота ($\tau_r \approx 61$ пс) и кислорода ($\tau_r \approx 68$ пс) имеем $\xi \approx 0,979$ и $0,981$ соответственно. Изменение времени задержки между пробным импульсом и полем накачки позволяет активно формировать временной профиль $\Delta n(\eta)$, что может быть использовано для фазовой модуляции и управления временной структурой мощных сверхкоротких лазерных импульсов, передаваемых на большие расстояния через атмосферу.

Выполненные эксперименты показывают возможность поляризационного и фазового управления запаз-

дывающей оптической нелинейностью воздуха, обусловленной комбинационно-активными вращательными модами молекул азота и кислорода. Реализована схема управления амплитудой и фазой эхо-осцилляций показателя преломления газа путём изменения интенсивности, поляризации и временной структуры возбуждающего лазерного поля [62]. Поляризационная зависимость нелинейно-оптической восприимчивости комбинационно-активной газовой среды позволяет осуществить временное стробирование мощных сверхкоротких импульсов, передаваемых на большие расстояния через атмосферу, и может быть использована для синхронизации мощных оптических импульсов и измерения параметров таких импульсов. Поле накачки в виде последовательности сверхкоротких лазерных импульсов позволяет сформировать сложные временные профили изменения показателя преломления газовой среды. Этот эффект может быть использован для фазовой модуляции и управления временной [62, 63] и пространственной [64] структурой мощных сверхкоротких лазерных импульсов, передаваемых на большие расстояния через атмосферу.

7. Комбинационное рассеяние света и солитонный сдвиг частоты

Ряд новых физических особенностей нелинейного комбинационного рассеяния сверхкоротких импульсов ярко проявляется в солитонном режиме. Связанная с явлением КР инерция оптической нелинейности приводит к постепенному понижению несущей частоты солитона, распространяющегося в оптическом волноводе [14, 37, 38]. В спектральном представлении этот эффект наглядно интерпретируется как вынужденное комбинационное усиление низкочастотной части спектра солитона за счёт его высокочастотного крыла. Это явление, получившее название солитонного самосдвига частоты (ССЧ), позволяет создавать волоконно-оптические элементы для плавной перестройки частоты сверхкоротких лазерных импульсов [65].

В основе солитонного самосдвига частоты сверхкоротких импульсов в волоконных световодах лежит явление КР на оптических фонах материала волокна. Комбинационный отклик плавленого кварца — материала, который наиболее часто используется при изготовлении волоконных световодов, — обусловлен набором комбинационно-активных собственных мод колебаний тетраэдров SiO_4 [66–68]. Наиболее интенсивная комбинационно-активная мода, с которой связан хорошо известный пик ВКР-усиления плавленого кварца с центральной частотой около 440 см^{-1} , соответствует изменениям двугранного угла $\text{Si}-\text{O}-\text{Si}$ элементарной тетраэдральной ячейки плавленого кварца относительно его равновесного значения.

Для исследования динамики изменения несущей частоты солитона, распространяющегося в нелинейной среде с запаздывающей нелинейностью, воспользуемся методом Гордона [53], основанным на спектральном преобразовании нелинейного уравнения Шрёдингера (НУШ)

$$-i \frac{\partial u}{\partial z} = \frac{1}{2} \frac{\partial^2 u}{\partial t^2} + |u|^2 u \quad (37)$$

для огибающей импульса u . Единицы времени (t_s), длины (z_s) и мощности (P_s) в уравнении (37) выбраны таким

образом, что

$$\frac{t_s^2}{z_s} = \frac{\lambda^2 D}{2\pi c} = -\frac{\partial^2 \beta}{\partial \omega^2}, \quad (38)$$

$$P_s z_s = \frac{\lambda A_{\text{eff}}}{2\pi n_2}, \quad (39)$$

где λ и ω — длина волны и частота излучения, D — дисперсия групповой скорости (ДГС), β и A_{eff} — постоянная распространения и эффективная площадь волноводной моды, n_2 — нелинейный показатель преломления материала, c — скорость света.

Солитонное решение уравнения (37) имеет вид $u = \text{sech } t \exp(iz/2)$. Длительность такого солитона, определяемая по полувысоте временного профиля мощности, составляет $\tau = 1,763t_s$.

Для учёта задержанного во времени нелинейного отклика среды нелинейное слагаемое в правой части уравнения (37) преобразуется следующим образом [48, 53]:

$$|u|^2 u \rightarrow u(t) \int f(\eta) |u(t-\eta)|^2 d\eta, \quad (40)$$

где $f(\eta)$ — действительная функция, описывающая комбинационный отклик материала. Фурье-преобразование этой функции восстанавливает оптическую восприимчивость среды (см. раздел 2),

$$\chi(\Omega) = \int f(\eta) \exp(i\Omega\eta) d\eta,$$

мнимая часть которой определяет коэффициент комбинационного усиления, $g_R(\Omega) = 2 \text{Im}[\chi(\Omega)]$.

Спектральное преобразование уравнения (37) с учётом замены (40) приводит к следующему выражению для скорости ССЧ, выражаемой в ТГц км⁻¹ [53]:

$$\frac{dv}{dz} \approx -\frac{\mu\lambda^2 D}{t_s^3} \int_0^\infty \Omega^3 \frac{R(\Omega/2\pi t_s)}{\sinh^2(\pi\Omega/2)} d\Omega, \quad (41)$$

где μ — постоянный множитель, $R(\Omega/2\pi t_s) = \alpha_R(\Omega)$.

Использование линейной аппроксимации для функции $R(\xi)$ (в случае плавленого кварца $R(\xi) \approx 0,492(\xi/13,2)$) приводит к ключевой для модели Гордона формуле для скорости ССЧ [53]:

$$\frac{dv}{dz} \approx -\frac{\kappa_G}{\tau^4}, \quad (42)$$

где $\kappa_G = \kappa_0 \lambda^2 D$ — коэффициент, полагаемый в модели Гордона постоянным. Для рассмотренных в работе значений $\lambda = 1,5$ мкм, $D = 15$ пс нм⁻¹ км⁻¹, выражение (42) даёт следующую формулу для скорости ССЧ: dv/dz (ТГц км⁻¹) $\approx 0,0436/\tau^4$.

Формула Гордона позволила идентифицировать важные тенденции и объяснить ряд интересных свойств ССЧ. Оптические световоды нового типа — микроструктурированные (МС) световоды [69–79] — обеспечивают существенное увеличение скорости ССЧ [80, 81] за счёт высокой степени концентрации лазерного излучения в сердцевине МС-волокна с малой площадью поперечного сечения. Благодаря уникальному сочетанию новых возможностей, МС-волокна позволяют использовать явление

ССЧ для создания перестраиваемых по частоте волоконных источников для спектроскопии и микроскопии нелинейного КР [82–89], а также для регистрации нейронной активности головного мозга [90]. Микроструктурированные световоды используются для плавной перестройки маломощных импульсов с длительностью огибающей, соответствующей нескольким периодам оптического поля [91], и позволяют реализовать полностью оптическую синхронизацию импульсов накачки и затравки в оптических параметрических усилителях chirпированных импульсов длительностью в несколько циклов светового поля [92]. Для правильного описания солитонного сдвига частоты в таких световодах необходимо учитывать дополнительные факторы, приводящие к отклонениям от формул Гордона. Численный анализ обобщённого НУШ с учётом вклада запаздывающей части оптической нелинейности (рамановского вклада) указывает на замедление частотного сдвига солитона [93–95], а также сверхкороткого импульса более общего вида [54] по мере распространения излучения в оптическом волокне. Это явление может использоваться для стабилизации ССЧ и уменьшения зависимости частотного сдвига солитона от мощности лазерных импульсов [96].

8. Солитонные световодные источники предельно коротких импульсов электромагнитного излучения

Разработка компактных и эффективных источников сверхкоротких световых импульсов является одной из ключевых задач оптических технологий [13, 79]. В последние годы на основе использования оптических волокон нового типа — микро- и наноструктурированных световодов [76–79, 97] — достигнут значительный прогресс в создании волоконно-оптических источников сверхкоротких импульсов [65]. Изготовленные на основе таких световодов лазерные системы позволяют получать световые импульсы в широком диапазоне длительностей и энергий [98–102]. Ввиду ограниченности полосы усиления активных световодных элементов получение импульсов предельно коротких длительностей, соответствующих нескольким циклам оптического поля, непосредственно на выходе волоконно-оптической лазерной системы оказывается затруднительным. В связи с этим большой интерес представляют возможности разработки компрессоров сверхкоротких световых импульсов на основе микро- и наноструктурированных световодов [79, 103–108]. Выполненные в этом направлении исследования показывают возможность использования высокой нелинейности таких световодов в сочетании с возможностью активного формирования профиля дисперсии для получения световых импульсов длительностью несколько фемтосекунд [109–111]. Компрессия мощных фемтосекундных световых импульсов реализуется на основе МС-световодов с большой площадью моды [103, 112–114] и полых МС-световодов [105, 115].

В компрессорах световых импульсов, основанных на солитонной динамике электромагнитного поля в оптическом волокне, световой импульс с начальной энергией $2W^2$ (в безразмерных единицах), распространяющийся по световоду в режиме аномальной дисперсии, формирует оптический солитон порядка j (j — целое число) с длительностью [14] $\tau_j = \tau_0/2\xi_j$, где $\xi_j = W - j + 0,5$ —

собственное значение для j -го солитона. При выполнении условия $\xi_j > 1/2$ формируемый солитон оказывается короче входного импульса, и осуществляется режим временной компрессии.

Солитонная динамика предельно коротких световых импульсов, длительность которых сравнима с периодом оптического поля, оказывается значительно более сложной. Существенную роль в процессе распространения таких импульсов играют явления, связанные с комбинационным рассеянием света и формированием оптических ударных волн. Для описания эволюции таких импульсов используется обобщённое нелинейное уравнение Шрёдингера (ОНУШ) [14, 47] для огибающей светового поля $A = A(z, t)$:

$$\frac{\partial A(z, \tau)}{\partial z} = i \sum_{k=2}^7 \frac{i^k}{k!} \beta_k \frac{\partial^k A}{\partial \tau^k} + i\gamma_0 \left(1 + \frac{i}{\omega_0} \frac{\partial}{\partial \tau} \right) \times \left(A(z, \tau) \int_{-\infty}^{\infty} R(t) |A(z, \tau - t)|^2 dt \right). \quad (43)$$

Здесь z — координата, выбранная в направлении распространения светового поля, τ — время в сопровождающей системе координат, $\beta_k = \partial^k \beta / \partial \omega^k$ — коэффициенты разложения постоянной распространения β как функции частоты в ряд Тейлора в окрестности центральной частоты светового поля, γ_0 — коэффициент оптической нелинейности, ω_0 — центральная частота светового импульса. Функция $R(t)$ включает как электронную (керровскую), так и фононную (рамановскую) части оптической нелинейности [47, 48]:

$$R(t) = (1 - f_R) \delta(t) + f_R \Theta(t) \frac{\tau_1^2 + \tau_2^2}{\tau_1 \tau_2^2} \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right) \sin\left(\frac{t}{\tau_1}\right), \quad (44)$$

где f_R — вклад задержанной части нелинейности в полный нелинейно-оптический отклик, $\delta(t)$ — дельта-функция, $\Theta(t)$ — функция Хевисайда, τ_1, τ_2 — характерные времена рамановской функции. Для световодов из плавленого кварца имеем [48] $f_R \approx 0,18$, $\tau_1 \approx 12,5$ фс, $\tau_2 \approx 32$ фс.

В работе [111] уравнения (43) и (44) используются для анализа динамики сверхкоротких световых импульсов в микро- и наноструктурированных световодах с высокой нелинейностью. Начальный импульс в расчётах задаётся следующим выражением:

$$A(\tau) = A_0 F^{-1} \left[\exp\left(\frac{iC_0 \omega^2}{2}\right) \frac{\tau_0}{2} \operatorname{sech}\left(\frac{\pi}{2} \tau_0 \omega\right) \right], \quad (45)$$

где A_0 — начальная амплитуда огибающей импульса, определяемая из нормировочного соотношения

$$W_0 = \int |A(\tau)|^2 d\tau, \quad (46)$$

W_0 — начальная энергия импульса, $F^{-1}[\cdot]$ — обратное преобразование Фурье, $\tau_0 \approx \tau_{\text{FWHM}}/1,76$, τ_{FWHM} — длительность импульса по полувысоте, C_0 — параметр, определяющий начальный линейный chirp импульса.

Будем рассматривать распространение импульса с начальной длительностью 50 фс, начальной энергией 70 пДж и центральной длиной волны 793 нм в световоде

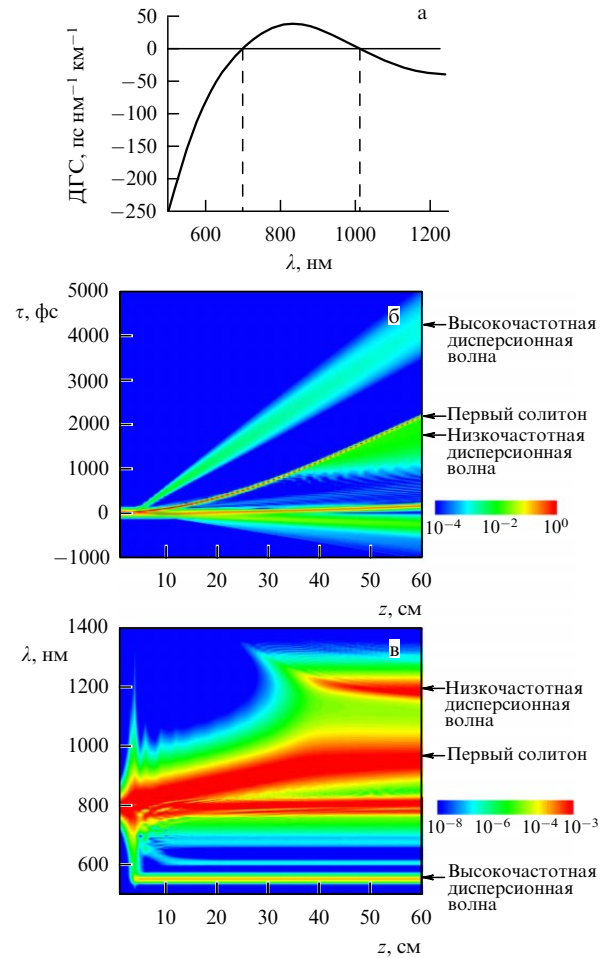


Рис. 5. (а) Характерный спектральный профиль дисперсии групповой скорости МС-световода с высокой нелинейностью. Временная (б) и спектральная (в) динамика светового импульса, распространяющегося в МС-световоде с таким профилем дисперсии.

со спектральным профилем дисперсии (рис. 5а), характерным для МС-волокон с высокой нелинейностью [75–79]. Важной особенностью рассматриваемого дисперсионного профиля является наличие второго нуля дисперсии групповой скорости (ДГС), устанавливающего длинноволновую границу области аномальной дисперсии. Такая особенность дисперсионного профиля характерна для некоторых типов микро- и наноструктурированных световодов с высокой нелинейностью. Ранее было показано [116, 117], что наличие второго нуля ДГС позволяет при определённых условиях подавить низкочастотное смещение спектра солитона в микроструктурированном световоде.

На рисунке 5б, в представлена динамика огибающей и спектра светового импульса, распространяющегося в световоде с профилем ДГС, показанным на рис. 5а. За начальной фазой эффективной компрессии импульса следует распад импульса на несколько солитонных структур (солитонное число импульса $N = (\gamma_0 P_0 \tau_0^2 / |\beta_2|)^{1/2} \approx 2,7$, где $P_0 = W_0(2\tau_0)^{-1}$ — начальная пиковая мощность лазерного импульса). Каждый из образующихся при этом импульсов испытывает низкочастотный сдвиг вследствие комбинационного рассеяния света и испускает избыточную часть энергии в виде дисперсионных волн в коротковолновой области спектра [118].

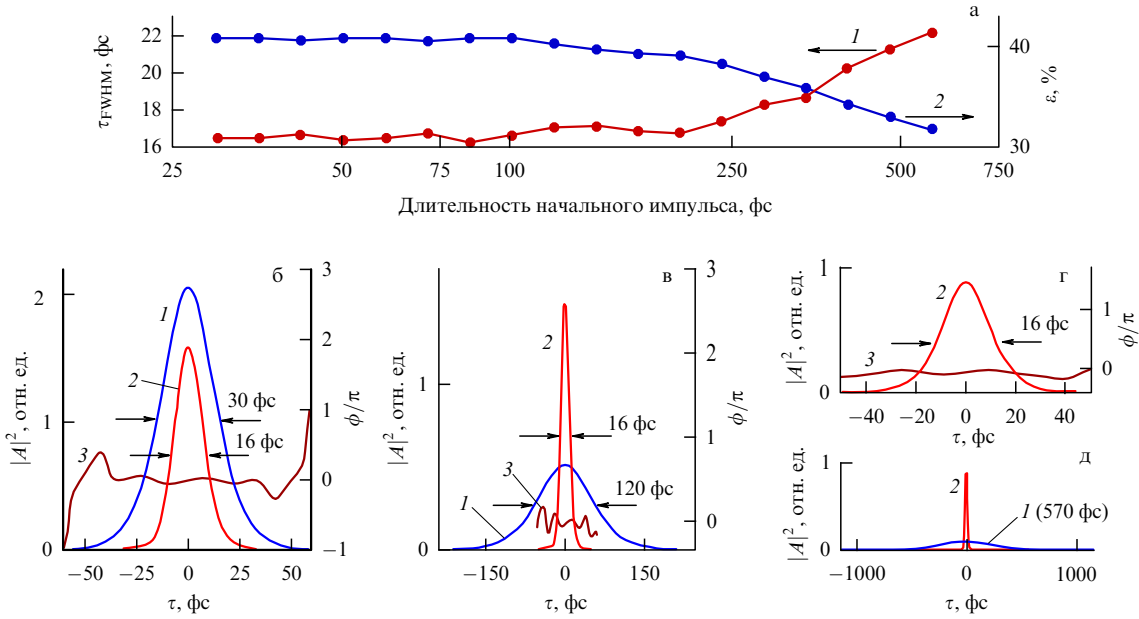


Рис. 6. (а) Зависимость (1) длительности солитона τ_{FWHM} на выходе МС-световода и (2) параметра ε для этого солитона от начальной длительности импульса. (б–д) Результаты расчётов, иллюстрирующие сжатие световых импульсов с различными начальными длительностями до длительности $\tau_s \approx \tau_{FWHM}/1,76 \approx 9,3$ фс в высоконелинейном МС-световоде: (1) профиль огибающей импульса на входе в волокно, (2) профиль огибающей солитона на выходе из волокна, (3) фаза φ выходного импульса. (е) Профиль огибающей и фаза импульса начальной длительности 570 фс на выходе волокна в увеличенном масштабе. Длина волокна выбиралась таким образом, чтобы центральная длина волны солитона на выходе волокна составляла 953 нм. Начальная энергия импульса 70 пДж, центральная длина волны входных импульсов 793 нм. Профиль дисперсии световода приведён на рис. 5а. Площадь волноводной моды $S_{eff} = 3$ мкм².

Солитон, обладающий наибольшей энергией и наименьшей длительностью, испытывает наибольший сдвиг частоты. По мере смещения спектра этого солитона относительно профиля дисперсии изменяется частота излучаемой солитоном дисперсионной волны. При приближении солитона к длинноволновой границе области аномальной дисперсии, как показано в работе [116], возникает длинноволновое крыло излучения дисперсионных волн, которое приводит к замедлению и подавлению солитонного сдвига частоты.

Наряду с продемонстрированным ранее явлением подавления ССЧ волокно с двумя нулями ДГС позволяет реализовать эффективную компрессию светового импульса. Минимальная длительность наиболее мощного солитона, определённая с помощью стандартной процедуры оценки параметров солитонной части поля, составляет $\tau_s \approx \tau_{FWHM}/1,76 \approx 9,3$ фс. Длительность солитона и его энергия с хорошей точностью удовлетворяют соотношению

$$\tau_s = 2|\beta_2(\omega_s)| [\gamma(\omega_s)W]^{-1}, \quad (47)$$

где ω_s — центральная частота солитона. В отличие от стандартного соотношения для параметров фундаментального солитона выражение (47) записано для локальных параметров светового импульса, меняющихся по мере распространения солитона вдоль световода вследствие ССЧ.

На рисунке 6 представлены результаты расчётов [111], иллюстрирующие возможность использования эффекта солитонного сжатия световых импульсов в МС-световодах с высокой нелинейностью для формирования импульсов длительностью менее 10 фс. На рисунке 6а показаны зависимости длительности соли-

тона по полувысоте $\tau_{FWHM} \approx 1,76\tau_s$ и параметра ε , определяемого как отношение энергии солитона на выходе из волокна к начальной энергии входного импульса, от начальной длительности импульса. Как видно из представленных на рис. 6а результатов, если длина световода выбирается таким образом, чтобы обеспечить заданный частотный сдвиг и фиксированные потери энергии светового импульса, то длительность импульса на выходе волокна практически не зависит от начальной длительности импульса τ_0 в широком диапазоне τ_0 (от 30 до 200 фс). Для импульсов с $\tau_0 > 250$ фс требуемая для обеспечения неизменного частотного сдвига длина волокна становится настолько большой, что потери энергии излучения перестают быть пренебрежимо малыми. По мере уменьшения энергии длительность выходного импульса увеличивается. При этом соотношение (46) продолжает выполняться (см. также рис. 6б–д).

Представленные на рис. 7 результаты расчётов показывают возможность использования МС-световодов с высокой нелинейностью для сжатия световых импульсов до длительностей порядка и менее периода светового поля. Анализ выполнялся для входного импульса с центральной длиной волны 1070 нм и начальной фазой $\varphi(\omega) = (\alpha/2)[\omega/(2\pi) - \omega_0/(2\pi)]^2$, где α — параметр chirpa, распространяющегося в световоде с профилями дисперсии и нелинейности (показаны на вставке к рис. 7), характерными для высоконелинейных микро- и наноструктурированных световодов с малым размером сердцевин. Формирование импульса длительностью около 2 фс, как показано на рис. 7, происходит в таком световоде на характерной длине распространения около 2 мм. Минимальная длительность импульса и длина, на которой достигается максимальная компрессия, могут

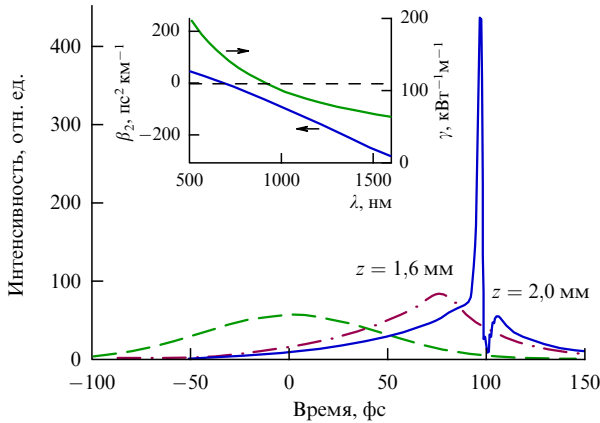


Рис. 7. Профили временной огибающей начального импульса с длительностью $\tau_0 = 30$ фс, chirпом $\alpha = -0,05$ пс² и энергией 6,4 нДж (штриховая линия), а также импульса, прошедшего расстояние $z = 1,6$ мм (штрихпунктирная линия) и 2,0 мм (сплошная линия) в МС-световоде со спектральными профилями нелинейности и дисперсии, показанными на вставке.

быть изменены путём варьирования начального chirпа светового импульса.

В связи с тем, что получаемый в расчётах световой импульс оказывается короче периода колебаний светового поля T_0 , уместно остановиться на применимости модели, основанной на использовании обобщённого нелинейного уравнения Шрёдингера (43), для описания динамики таких импульсов. Прежде всего, необходимо отметить, что используемые при выводе ОНУШ приближения отличаются [111, 119] от стандартного набора приближений метода медленно меняющейся огибающей (ММО). В связи с этим область применимости ОНУШ не ограничивается характерным для ММО условием $\tau_0 > T_0$. С физической точки зрения это связано с тем, что ОНУШ описывает целый ряд явлений, которые не учтены в уравнениях ММО. К числу таких явлений относятся эффекты дисперсии высших порядков ($k > 3$ в уравнении (43)), формирование ударных волн огибающей, а также эффекты, связанные с инерционностью оптической нелинейности (включая эффекты комбинационного рассеяния света).

Применимость основанных на ОНУШ моделей пространственно-временной динамики сверхкоротких импульсов ограничивается следующими условиями [111, 119]:

$$\beta l_{nl}, \beta l_a, \beta l_d^{(k)}, \beta l_\psi \gg 1, \quad (48)$$

где $l_{nl} = (\gamma P)^{-1}$ — нелинейная длина, l_a — характерная длина затухания, связанного с поглощением излучения или вытеканием моды из волноводной структуры, $l_d^{(k)} = \tau^k / |\beta_k|$ — характерная длина, на которой проявляются эффекты дисперсии k -го порядка, $l_\psi = \lambda^{-1} (d\beta/d\lambda)^{-1}$. Для представленных на рис. 7 расчётов минимальная длительность импульса составляет около 2 фс (при $z = 2$ мм на рис. 7). При этом пиковая мощность P не превышает 0,2 МВт. Для световода с профилем дисперсии, представленным на рис. 5а, имеем $\beta_2 = -0,109$ пс² м⁻¹, $\beta_3 = 1,92 \times 10^{-4}$ пс³ м⁻¹, $\beta_4 = -2,58342 \times 10^{-7}$ пс⁴ м⁻¹, $\gamma = 94$ м⁻¹ кВт⁻¹, что соответствует следующим значениям входящих в условия (48) характерных длин: $l_{nl} > 0,05$ мм, $l_d^{(2)} \approx 40$ мкм, $l_d^{(3)} \approx$

≈ 42 мкм, $l_d^{(4)} \approx 62$ мкм, $l_\psi \approx 15$ мкм. Таким образом, все условия (48) оказываются выполненными, $\beta l_{\min} > 90$, где l_{\min} — минимальная из длин l_{nl} , $l_d^{(k)}$, l_a , l_ψ , что свидетельствует о применимости ОНУШ. Применимость ОНУШ для описания световых импульсов длительностью порядка T_0 при выполнении условий (48) ранее проверялась путём сравнения решения уравнений типа ОНУШ с результатами численного интегрирования уравнений Максвелла для электрического и магнитного полей [111, 119].

Таким образом, анализ особенностей солитонной динамики сверхкоротких световых импульсов в микро- и наноструктурированных световодах с высокой нелинейностью позволяет указать пути формирования импульсов электромагнитного излучения с длительностью, близкой к периоду светового поля. Для такого режима эволюции светового поля удаётся получить простые аналитические выражения, связывающие длительность и энергию формируемых в световоде сверхкоротких импульсов с характеристиками дисперсии и нелинейности световода.

9. Молекулярные модуляторы и синтез предельно коротких импульсов

Разработка методов генерации аттосекундных импульсов электромагнитного излучения [120–123] является одним из наиболее значительных достижений оптической физики последнего десятилетия. Использование аттосекундных импульсов позволяет выполнить прямые измерения временных постоянных сверхбыстрой динамики электронов в атомных и молекулярных системах [124–127], произвести прямые измерения параметров сверхкоротких всплесков светового поля [128, 129], а также осуществить управление быстропротекающими электронными процессами в газовой и конденсированной фазах [130, 131].

Наиболее широко распространённая технология формирования аттосекундных импульсов электромагнитного излучения основана на использовании явления генерации оптических гармоник высокого порядка в газовых струях [120–123, 132–135]. Рекордно короткая длительность импульса, полученная к настоящему времени с использованием этого метода, составляет 80 ас (0,08 фс) [135]. Явление вынужденного комбинационного рассеяния открывает широкие возможности в области генерации предельно коротких световых импульсов, включая импульсы аттосекундной длительности. Комбинационное рассеяние света на колебательных или вращательных модах молекул в газовой среде или на фоновых модах твёрдого тела, предварительно возбуждённых узкополосными лазерными источниками [17, 33, 34] или сверхкоротким лазерным импульсом [18, 35, 36], приводит при выполнении условий фазового согласования к эффективной генерации множественных стоксовых и антистоксовых компонент в спектре взаимодействующего с комбинационно-активной средой импульса. Сфазированные световым полем комбинационно-активные моды молекул газа или фононов твёрдого тела при этом выполняют роль элементарных модуляторов фазы пробного импульса, позволяя сформировать импульсы предельно короткой длительности. Для увеличения длины взаимодействия импульсов накачки и пробного импульса с комбинационно-активной газовой средой

используются наполненные газом полые волноводы [19]. На основе ВКР в комбинационно-активных газах экспериментально реализована генерация световых импульсов длительностью несколько фемтосекунд [18]. Активно исследуются пути генерации субфемтосекундных импульсов. ВКР в направлении назад в условиях ионизации среды открывает возможности компрессии световых импульсов высокой энергии, позволяет формировать импульсы аттосекундной длительности и достигать сверхвысоких уровней мощности и интенсивности светового поля [136, 137].

Эффективное возбуждение комбинационно-активных колебаний с частотой Ω осуществляется в условиях, когда действующее на квантовую систему световое поле содержит частотные компоненты ω_1 и ω_2 , разделённые спектральным интервалом Ω (см. рис. 1). Для выполнения этого условия можно использовать режим бигармонической накачки, в котором сфазированное возбуждение колебаний осуществляется с помощью пары узкополосных лазерных полей с несущими частотами ω_1 и ω_2 . В импульсном режиме комбинационное возбуждение среды производится с помощью одного светового импульса, ширина спектра которого превышает частоту колебаний Ω .

Поле накачки возбуждает в среде комбинационно-активные моды Q , свободное затухание которых описывается следующим выражением:

$$Q(t) = Q_0 \exp\left(-\frac{t}{T_2}\right) \sin\left[\left(\Omega^2 - \frac{1}{T_2^2}\right)^{1/2} t\right], \quad (49)$$

где Q_0 — амплитуда колебаний, пропорциональная энергии импульса накачки, T_2 — время дефазировки молекулярных колебаний, Ω — собственная частота молекулярных колебаний.

Решение уравнения эволюции огибающей $B(t, z)$ пробного импульса, поступающего в среду с некоторой задержкой относительно импульса накачки, для случая плоских волн в условиях, когда время дефазировки T_2 значительно превышает период молекулярных колебаний и длительности световых импульсов, имеет вид

$$B(\tau, z) = B(\tau, 0) \exp\left[-i\gamma \frac{\sin(\Delta K_{mn}z)}{\Delta K_{mn}} \sin(\Omega\tau + \Delta K_{mn}z)\right]. \quad (50)$$

Здесь $B(\tau, 0)$ — начальная огибающая пробного импульса,

$$\Delta K_{mn} = \frac{\Omega(1/v_2^n - 1/v_1^m)}{2} \quad (51)$$

— параметр, характеризующий расстройку групповых скоростей v_1^m и v_2^n импульса накачки и пробного импульса в собственных модах волновода с модовыми индексами m и n соответственно, $\tau = t - z/v_2^n$,

$$\gamma = \frac{2\pi}{c} \omega_2 N Q_0 \frac{\partial \alpha}{\partial Q}, \quad (52)$$

N — концентрация комбинационно-активных молекул в газе, $\partial \alpha / \partial Q$ — производная поляризуемости молекул газа по колебательной координате.

При малых групповых расстройках ΔK_{mn} выражение (50) для огибающей пробного импульса может быть

записано в следующем виде:

$$B(\tau, z) = B(\tau, 0) \sum_{s=-\infty}^{\infty} J_s(\gamma z) \exp(-is\Omega\tau), \quad (53)$$

где $J_s(x)$ — функция Бесселя порядка s .

Спектр пробного импульса, как видно из выражения (53), представляет суперпозицию эквидистантных стоковых и антистоковых компонент $\omega_s = \omega_2 + s\Omega$ ($s = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$), отстоящих друг от друга на частоту молекулярных колебаний Ω . Число этих компонент возрастает при увеличении энергии накачки (приводящем к росту параметра γ) и увеличении длины взаимодействия. Минимальная длительность импульса, которая может быть получена путём компенсации chirpa импульса (53), определяется числом M стоковых и антистоковых компонент, генерируемых в процессе распространения импульса через среду, $\tau \approx (2c\Delta k M)^{-1}$. С учётом свойств функций Бесселя максимальное значение M , в свою очередь, определяется параметром γL (где L — длина комбинационно-активной среды) согласно приближённой формуле $M \approx \gamma L$. Увеличение длины взаимодействия, таким образом, является ключевым условием синтеза предельно коротких световых импульсов. Увеличение длины среды ограничено эффектами группового запаздывания и дисперсии групповой скорости. При правильном выборе параметров волновода волноводная составляющая дисперсии уменьшает групповую задержку и дисперсию групповых скоростей для стоковых и антистоковых компонент. Данное обстоятельство играет особенно важную роль для газов с высокочастотными комбинационно-активными колебаниями, включая молекулярный водород.

10. Волоконно-оптические синтезаторы предельно коротких световых импульсов

В разрабатываемых в настоящее время полностью волоконных синтезаторах импульсов длительностью в несколько циклов светового поля используется идея когерентного сложения оптических солитонов, несущая частота которых сдвинута в результате ВКР-усиления низкочастотного крыла спектра солитона за счёт ослабления его высокочастотной части. Методика генерации предельно коротких импульсов, основанная на когерентном сложении солитонов, иллюстрируется результатами расчёта [138], представленными на рис. 8а. Распространение лазерного импульса с начальной длительностью 100 фс и энергией 30 нДж в МС-световоде с большой площадью моды приводит к формированию множественных солитонов, каждый из которых испытывает низкочастотный спектральный сдвиг. Представленный на рис. 8а спектр излучения на выходе МС-световода является результатом интерференции пяти солитонов с центральными частотами $\nu_1 \approx 211$ ТГц, $\nu_2 \approx 198$ ТГц, $\nu_3 \approx 191$ ТГц, $\nu_4 \approx 164$ ТГц, $\nu_5 \approx 149$ ТГц, длительностями $T_1 \approx 22$ фс, $T_2 \approx 27$ фс, $T_3 \approx 29$ фс, $T_4 \approx 30$ фс, $T_5 \approx 35$ фс и энергиями 1,6; 2,6; 2,9; 4,6; 5,5 нДж. Времена задержки второго, третьего, четвёртого и пятого солитонов относительно первого солитона составляют 220, 400, 1080 и 1890 фс соответственно. Использование оптического модулятора, генерирующего ступенчатый профиль групповой задержки, показанный штриховой линией на рис. 8а, позволяет осуществить когерентное сложение

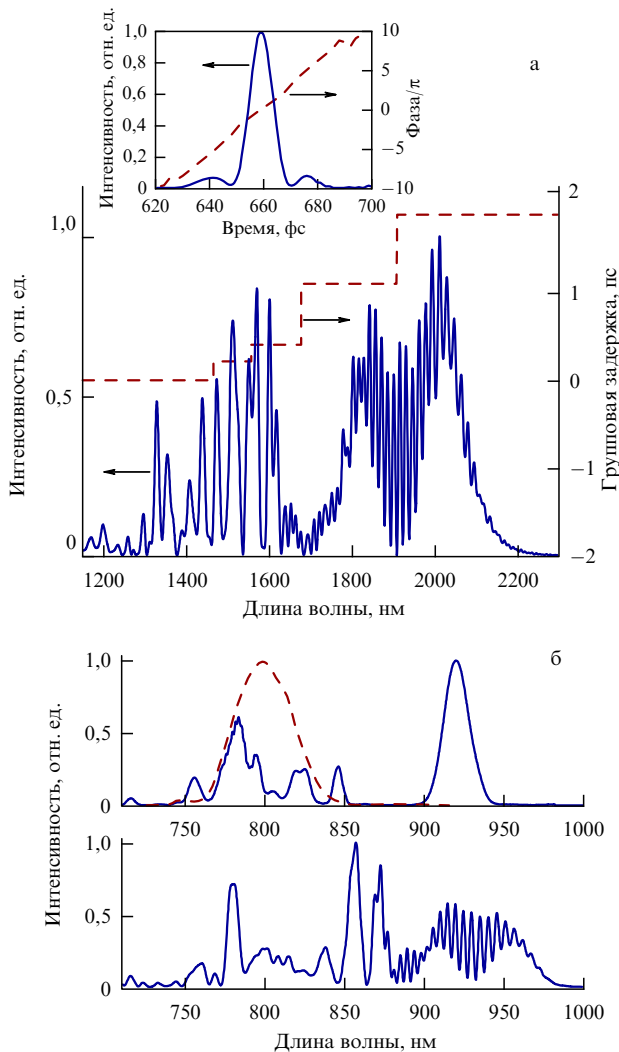


Рис. 8. (а) Спектр пяти оптических солитонов, формируемых в МС-световоде с большой площадью моды лазерными импульсами с начальной длительностью 100 фс и энергией 30 нДж. На вставке показана временная огибающая (сплошная линия) и фаза (штриховая линия) светового импульса, получаемого путём внесения ступенчатого профиля групповой задержки, показанного штриховой линией. (б) Экспериментальные спектры излучения [107], формируемого на выходе МС-световода с большой площадью моды импульсами титан-сапфирового лазера с начальной энергией 0,6 нДж (вверху) и 7 нДж (внизу). Спектр входного импульса показан штриховой линией.

солитонов, приводящее к формированию импульса длительностью около 10 фс. Временная огибающая и чирп такого импульса показаны на вставке к рис. 8а. Суммарная энергия импульса с пьедесталом составляет примерно 27 нДж, в его центральной части сконцентрирована энергия около 12 нДж.

На рисунке 8б представлены результаты экспериментов [138], выполненных с использованием импульсов титан-сапфирового лазера с начальным спектром, показанным штриховой линией, и начальной энергией 0,6 и 7 нДж. Видно, что смещённые по частоте солитоны формируют высококонтрастную интерференционную картину в спектральной области от 880 до 980 нм. Наблюдаемая спектральная интерференция свидетельствует о том, что каждый из формируемых в световоде солитонов имеет плоский профиль спектральной фазы. Этот ре-

зультат указывает на возможность практического использования МС-световодов с большой площадью сердцевины для синтеза мощных световых импульсов предельно короткой длительности.

11. Синтезаторы управляемых последовательностей сверхкоротких импульсов для однопучковой микроспектроскопии когерентного комбинационного рассеяния света

Методы когерентного КР открывают уникальные возможности для исследования быстротекущих процессов в веществе и реализации новых принципов микроскопии физических, химических и биологических систем [13, 21, 24, 25]. В последние годы широкое распространение получила техника нелинейно-оптической микроспектроскопии, основанная на использовании процесса когерентного антистоксова рассеяния света [26, 27]. Основные преимущества техники КАРС как метода биомедицинской диагностики обусловлены высоким пространственным разрешением, обеспечиваемым нелинейной природой процесса КАРС, высокой чувствительностью, связанной с когерентным характером явления, а также высокой селективностью в условиях точной настройки световых полей в резонанс с комбинационно-активными модами исследуемых молекул. Благодаря этому уникальному сочетанию новых возможностей и преимуществ техника КАРС-микроскопии находит всё более широкое применение в биомедицинской оптике, включая решение задач визуализации деталей пространственной структуры и исследования отдельных процессов внутри живых клеток [139].

Техника КАРС-микроспектроскопии основана на возбуждении комбинационно-активных степеней свободы атомных и молекулярных систем, связанных с колебательными и вращательными движениями, а также электронными переходами в системе. Для возбуждения комбинационно-активной моды с собственной частотой Ω_0 используются световые поля с частотами ω_1 и ω_2 , разность которых настроена в комбинационный резонанс с частотой Ω_0 . Пробное световое поле с частотой ω_3 взаимодействует с возбуждениями среды, сфазированными комбинационно-резонансными полями, испытывая неупругое рассеяние, приводящее к генерации сигнального поля на частоте $\omega_a = \omega_1 - \omega_2 + \omega_3$. Сигнальное поле несёт спектроскопическую информацию о системе и позволяет получить высококонтрастные изображения мельчайших деталей пространственной структуры объектов различной природы.

В наиболее широко используемом двухчастотном варианте КАРС-микроспектроскопии частота пробного поля ω_3 выбирается равной частоте поля накачки ω_1 , что позволяет реализовать КАРС-взаимодействие, приводящее к генерации сигнала на частоте $\omega_a = 2\omega_1 - \omega_2 = \omega_1 + \Omega_0$, с использованием двух лазерных источников — источника фиксированной частоты ω_1 и перестраиваемого по частоте источника поля ω_2 . В качестве перестраиваемого по частоте источника излучения в КАРС-спектрометрах и КАРС-микроскопах всё шире используются [82–89] микроструктурированные волокна [75–79]. Помимо существенного упрощения и удешевления КАРС-систем перестраиваемые по частоте источники излучения и преобразователи частоты на

основе МС-световодов открывают возможности реализации привлекательного для биомедицинских приложений волоконно-оптического формата источника излучения для нелинейной микроспектроскопии.

Дальнейшее упрощение схемы взаимодействия световых полей в КАРС-микроспектроскопии возможно при использовании световых импульсов со специальными профилями фазы. Как показано в работах [140, 141], применение пространственных модуляторов света на основе жидких кристаллов, формирующих требуемые профили фазы сверхкоротких импульсов, позволит реализовать технику КАРС-микроспектроскопии в однопучковой геометрии. При этом сфазированное возбуждение комбинационных мод возможно при выполнении следующих двух условий: 1) достаточная ширина спектра светового поля $\Delta\omega$ ($\Delta\omega \gg \Omega_0$) и 2) формирование профиля фазы $\Phi(\omega)$ светового поля, для которого выполняется условие $\Phi(\omega) = \Phi(\omega - \Omega_0)$. Как и в случае двухчастотного КАРС, существенное техническое упрощение оптической схемы однопучковой КАРС-микроспектроскопии может быть достигнуто, как показано в экспериментах [88], за счёт преобразования частоты в МС-световодах. До настоящего времени, однако, формирование требуемого для когерентного комбинационного возбуждения профиля фазы поля осуществляется с помощью пространственных модуляторов света. Ниже будет показано, что МС-световод, работающий в режиме модуляционной неустойчивости, может совмещать функции преобразователя спектра лазерного излучения и синтезатора профиля фазы, требуемого для когерентного управления комбинационным возбуждением и однопучковой КАРС-микроспектроскопии.

Явление модуляционной неустойчивости в оптических волокнах [14] понимается как неустойчивость светового поля относительно слабой модуляции временной огибающей поля на определённой частоте, возникающей в результате шумовых процессов или как следствие взаимодействия со слабым внешним сигналом. Параметрическое усиление слабой модуляции временной огибающей поля приводит к появлению интенсивных боковых компонент в спектральном представлении и распаду стационарного поля на последовательность коротких импульсов во времени.

Для световых полей, описываемых нелинейным уравнением Шрёдингера, модуляционная неустойчивость возникает в области частот [14]

$$\Omega < \Omega_c = 2 \left(\frac{\gamma P}{|\beta_2|} \right)^{1/2}, \quad (54)$$

где $\gamma = n_2\omega/(cS_{\text{eff}})$ — коэффициент оптической нелинейности, n_2 — нелинейный показатель преломления волокна, ω — частота излучения, c — скорость света,

$$S_{\text{eff}} = \frac{\left[\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} |F(x, y)|^2 dx dy \right]^2}{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} |F(x, y)|^4 dx dy} \quad (55)$$

— эффективная площадь волноводной моды, $F(x, y)$ — поперечное распределение поля в волноводной моде, $\beta_2 = \partial^2\beta/\partial\omega^2$, β — постоянная распространения волноводной моды, P — пиковая мощность лазерного импульса.

Максимальное усиление модуляционной неустойчивости достигается на частоте

$$\Omega_m = \frac{\Omega_c}{\sqrt{2}} = \left(\frac{2\gamma P}{|\beta_2|} \right)^{1/2}. \quad (56)$$

Модуляционная неустойчивость светового поля возникает под действием шумовой составляющей поля, связанной со спонтанным излучением [14], а также может быть индуцирована слабым внешним пробным полем, приводящим к временной модуляции огибающей основного лазерного поля [142]. В режиме коротких лазерных импульсов модуляционная неустойчивость может вызываться параметрическим усилением новых спектральных компонент, возникающих в результате спектрального уширения лазерного поля, обусловленного фазовой самомодуляцией [143]. В присутствии дополнительного лазерного импульса наблюдается явление модуляционной неустойчивости, индуцируемой фазовой кросс-модуляцией [144].

Во временном представлении параметрическое усиление стоковой и антистоковой компонент с частотами $\omega_0 \mp \Omega_m$, обусловленное модуляционной неустойчивостью поля с начальной центральной частотой ω_0 , приводит к формированию последовательности световых импульсов [14], разделённых временным интервалом $T_m = 2\pi/\Omega_m$. Как следует из выражения (56), управление временным интервалом T_m может осуществляться варьированием пиковой мощности светового импульса, а также изменением дисперсии и нелинейности световода. Явление модуляционной неустойчивости в стандартных световодах позволяет преобразовать импульсы с характерной начальной длительностью 100 пс в последовательность фемтосекундных импульсов с частотами повторения, лежащими в субтерагерцевом диапазоне [142].

Для иллюстрации особенностей взаимодействия световых полей в оптических волноводах в условиях модуляционной неустойчивости рассмотрим поле

$$E(t) = E_0 \exp\left(-\frac{t^2}{\tau^2}\right) \left[a_1 \cos \omega_0 t + a_2 \cos(\omega_0 + \Omega) t + a_3 \cos(\omega_0 - \Omega) t \right], \quad (57)$$

состоящее из трёх спектральных составляющих с центральными частотами ω_0 и $\omega_0 \mp \Omega$ и амплитудами a_j ($j = 1, 2, 3$), соответствующими центральной частоте начального поля ω_0 и частотам $\omega_0 \mp \Omega$, возникающим под действием модуляционной неустойчивости в световоде. Гауссова огибающая в выражении (57) учитывает конечную длительность τ временной огибающей поля, соответствующую конечной ширине спектра для каждой из частотных составляющих поля.

Для расчёта комбинационного отклика молекулярной системы представим обобщённую молекулярную координату Q , соответствующую колебательному, вращательному или иному типу движения, в виде

$$Q(t) = \int_0^\infty h(\eta) F(t - \eta) d\eta, \quad (58)$$

где $h(\eta)$ — функция Грина для рассматриваемого типа молекулярного движения, F — вынуждающая сила.

Гамильтониан молекулярной системы с поляризуемостью α в поле лазерного излучения E запишем в

виде

$$H = H_0 + V, \quad (59)$$

где H_0 — гамильтониан системы в отсутствие светового поля,

$$V = -\alpha(Q)E^2$$

— часть гамильтониана, описывающая комбинационное взаимодействие рассматриваемой степени свободы молекулы, соответствующей обобщённой координате Q , со световым полем E .

Выражение для вынуждающей внешней силы в формуле (58) при этом имеет вид

$$F = -\frac{\partial V}{\partial Q} = \frac{\partial \alpha}{\partial Q} E^2. \quad (60)$$

Для широкого класса молекулярных систем оптический отклик может быть описан в рамках модели демпфированного гармонического осциллятора, приводящей к следующему выражению для функции Грина в формуле (58):

$$h(\eta) \propto \exp(-\Gamma\eta) \sin(\bar{\Omega}\eta), \quad (61)$$

где $\bar{\Omega} = (\Omega_0^2 - \Gamma^2)^{1/2}$, Ω_0 — собственная частота, Γ — постоянная затухания.

При выполнении условия $\Omega = \Omega_0$ внешняя сила (60), соответствующая световому полю, задаваемому выражением (57) (показана сплошной линией на рис. 9), осуществляет сфазированное возбуждение молекулярных колебаний (штриховая линия на рис. 9), обеспечивая тем самым селективное резонансное комбинационное возбуждение молекулярного движения с собственной частотой Ω_0 . В режиме длинных лазерных импульсов, $\tau \gg \Gamma^{-1}$, интегрирование в выражении (58) приводит к гармоническому молекулярному отклику

$$Q(t) = Q_0 \sin(\Omega t + \phi)$$

(где ϕ — фаза молекулярного колебания), для которого зависимость амплитуды Q_0 от отстройки частоты Ω от собственной частоты молекулярного движения Ω_0 описывается лоренцевым профилем,

$$Q_0 \propto [(\Omega - \Omega_0)^2 + \Gamma^2]^{-1/2}.$$

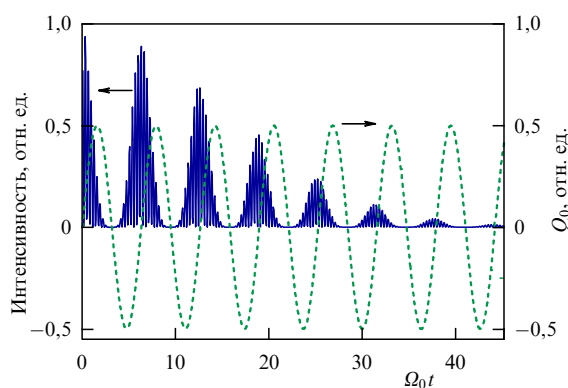


Рис. 9. Вынуждающая сила $F(t)$, соответствующая световому полю, задаваемому выражением (57) (сплошная линия), и обеспечивающая сфазированное возбуждение молекулярных колебаний $Q(t) \propto \sin(\Omega_0 t)$ (штриховая линия). Выбраны следующие параметры поля (57): $\tau = 30/\Omega_0$, $a_1 = 2a_2 = 2a_3$.

За счёт высокой оптической нелинейности и возможности активного формирования профиля дисперсии МС-световоды позволяют существенно увеличить эффективность параметрического спектрального преобразования сверхкоротких световых импульсов [145–147]. Ввиду того что световоды этого класса характеризуются сложными профилями дисперсии и высокими оптическими нелинейностями, выражения (54) и (56) могут быть использованы лишь для качественного понимания параметрического преобразования светового поля в результате явлений модуляционной неустойчивости. Для детального количественного анализа спектрально-временной эволюции сверхкоротких импульсов в таких световодах, включая понимание формы сверхкоротких световых импульсов в синтезируемых за счёт модуляционной неустойчивости последовательностях импульсов, требуется учёт эффектов, связанных с дисперсией высоких порядков и запаздывающей (связанной с комбинационным рассеянием) частью нелинейно-оптического отклика материала волокна. Такой анализ может быть выполнен на основе численного решения обобщённого нелинейного уравнения Шрёдингера (43). Расчёты выполнялись для лазерных импульсов с центральной длиной волны 1070 нм, начальной длительностью 2 пс и начальной пиковой мощностью 10 кВт (начальный спектр таких импульсов показан линией 1 на рис. 10а), распространяющихся в световоде с характерным для МС-волокон профилем дисперсии групповой скорости (линия 2 на рис. 10а). На рисунке 10а,б представлены полученные путём численного решения уравнения (43) спектр излучения и временная огибающая поля на выходе такого световода длиной 12 см. Модуляционная неустойчивость приводит к появлению интенсивных боковых компонент в спектре излучения на выходе световода (рис. 10а). Во временной огибающей поля при этих условиях формируется последовательность световых импульсов (рис. 10б), частота повторения которых определяется дисперсией и нелинейностью световода, а также пиковой мощностью лазерных импульсов. Благодаря высокой нелинейности МС-световодов имеется возможность формирования периодических последовательностей импульсов длительностью менее 10 фс (рис. 10б).

На рисунке 11 показан отклик комбинационно-активной моды Q на поле, формируемое на выходе рассматриваемого МС-световода длиной 12 см в результате нелинейно-оптического преобразования световых импульсов с начальной длительностью 2 пс, центральной длиной волны 1070 нм и начальной пиковой мощностью 10 кВт [148]. Как следует из представленных на рис. 11 зависимостей, последовательность синтезируемых в МС-световоде импульсов позволяет осуществить селективное возбуждение комбинационно-активных молекулярных мод с частотой $\Omega_0 = \Omega$. Явление модуляционной неустойчивости в МС-световоде при этом обеспечивает эффективное преобразование спектра лазерного излучения и формирует профиль фазы поля $\Phi(\omega)$, для которого выполняется условие $\Phi(\omega) \approx \Phi(\omega - \Omega_0)$, необходимое [140, 141] для сфазированного возбуждения молекулярных колебаний.

Эксперименты по исследованию модуляционных неустойчивостей в МС-световодах [145–147] подтверждают возможность эффективной генерации боковых компонент в спектрах сверхкоротких лазерных импуль-

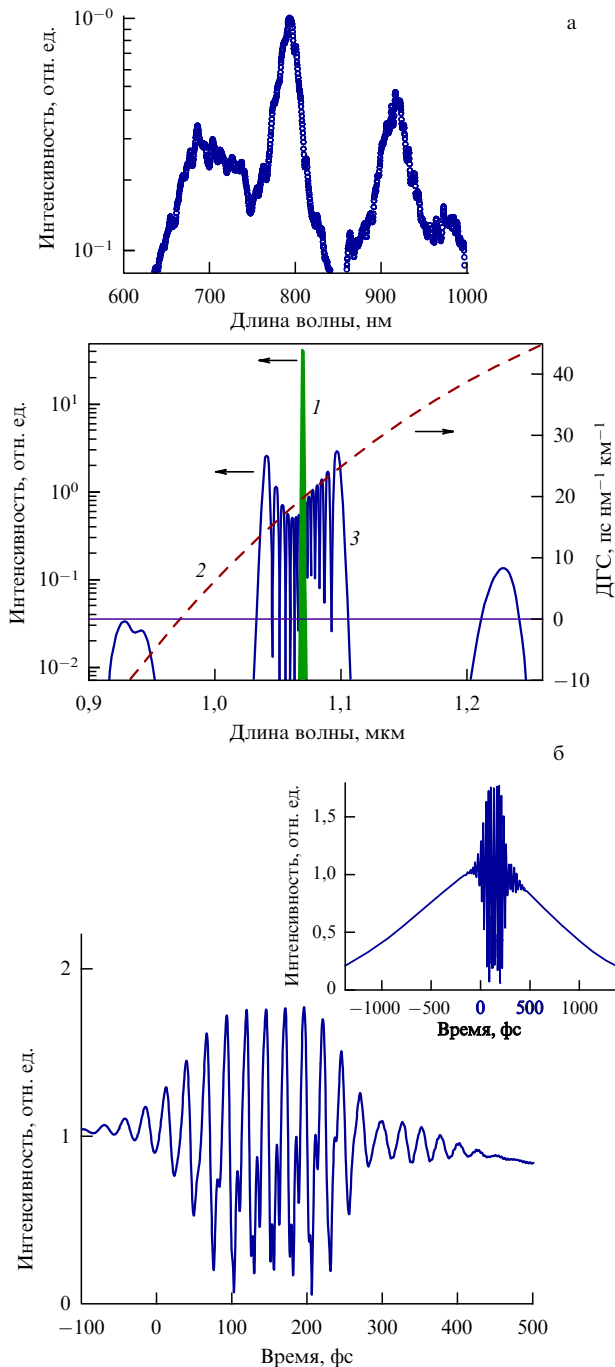


Рис. 10. (а) Начальный спектр световых импульсов (1), профиль дисперсии групповой скорости световода (2) и спектр излучения на выходе МС-световода длиной 12 см (3) для лазерных импульсов с центральной длиной волны 1070 нм, начальной длительностью 2 пс и начальной пиковой мощностью 10 кВт. На вставке представлен характерный спектр излучения фемтосекундного титан-сапфирового лазера на выходе кварцевого МС-световода с коэффициентом оптической нелинейности $\gamma \approx 50 \text{ Вт}^{-1} \text{ км}^{-1}$. Начальная длительность лазерного импульса 50 фс, начальная энергия импульса 0,5 нДж. (б) Временная огибающая интенсивности светового поля на выходе МС-световода длиной 12 см для лазерных импульсов с центральной длиной волны 1070 нм, начальной длительностью 2 пс и начальной пиковой мощностью 10 кВт. На вставке показан общий вид светового импульса на выходе световода.

сов с частотами Ω в спектральных диапазонах, характерных для собственных частот комбинационно-активных колебательных и вращательных молекулярных мод. На

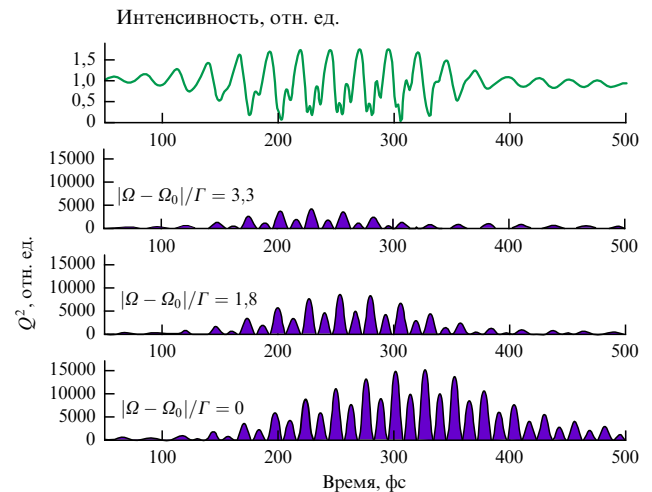


Рис. 11. Интенсивность светового поля на выходе МС-световода (верхний график) и амплитуда комбинационного отклика молекулярных колебаний для различных значений частотной отстройки $|\Omega - \Omega_0|/\Gamma$, принимающей значения 0, 1,8, 3,3 (сверху вниз); $\Omega_0/\Gamma \approx 24,2$.

вставке к рис. 10а представлен характерный спектр излучения фемтосекундного титан-сапфирового лазера на выходе кварцевого МС-световода с высокой оптической нелинейностью [146]. В спектре выходного излучения наблюдаются интенсивные боковые компоненты, смещённые относительно центральной частоты светового поля на $\Omega/2\pi \approx 50 \text{ ТГц}$.

В выполненных ранее экспериментах по однопучковой КАРС-микроскопии для формирования резонансных молекулярным колебаниям последовательностей световых импульсов использовались МС-световод и пространственный модулятор света на основе жидких кристаллов [88]. Приведённые выше результаты численного анализа показывают, что МС-световод с надлежащим образом выбранными параметрами нелинейности и дисперсии может совмещать в себе функции нелинейно-оптического преобразователя спектра лазерных импульсов и синтезатора профиля фазы, обеспечивающего резонансное комбинационное возбуждение комбинационно-активных мод. Таким образом, МС-световоды позволяют создать компактные и эффективные волоконно-оптические компоненты для когерентного управления процессами комбинационного возбуждения и однопучковой КАРС-микроскопии. В отличие от легко реализуемых схем формирования периодических последовательностей сверхкоротких импульсов путём когерентного сложения полей различных частот, рассмотренный здесь метод синтеза последовательностей сверхкоротких импульсов, во-первых, допускает управление периодом следования импульсов путём изменения начальной пиковой мощности лазерного излучения и, во-вторых, реализуется в полностью оптоволоконном формате.

12. Когерентное комбинационное рассеяние сверхкоротких световых импульсов на оптических фонах

Когерентное комбинационное возбуждение оптических фонных мод в твёрдых телах представляет значительный интерес в контексте современных задач оптической

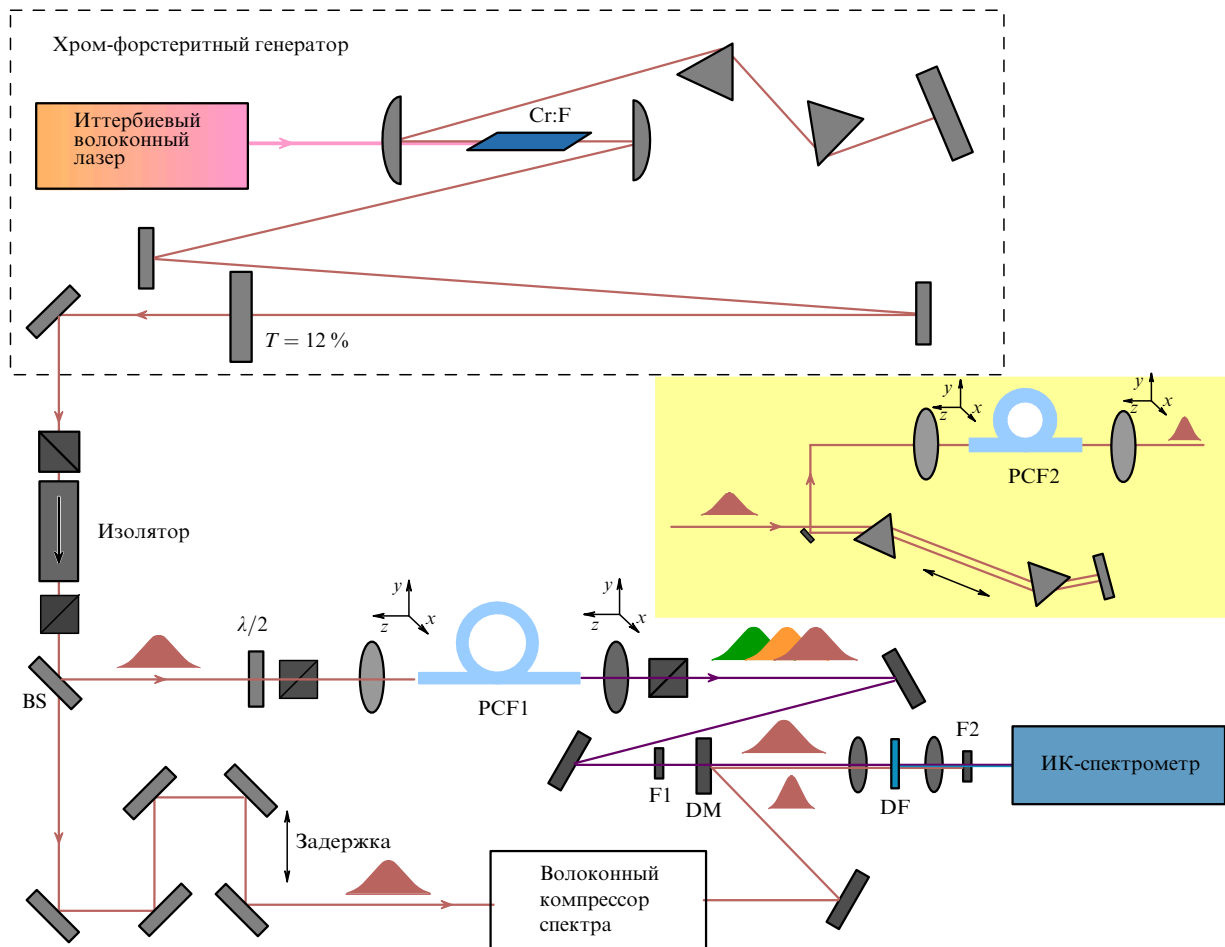


Рис. 12. Схема КАРС-спектрометра: Cr: F — хром-форстеритный фемтосекундный лазер; BS — светоделительная пластина; PCF1, PCF2 — МС-световоды; F1, F2 — фильтры; DM — дихроичное зеркало; DF — плёнка синтетического алмаза. На вставке показана схема спектральной компрессии на основе МС-световода.

физики сверхбыстрых процессов. Использование методов когерентного комбинационного рассеяния сверхкоротких импульсов позволяет выяснить физическую картину электрон-фононных взаимодействий в твёрдых телах [149], изучить сверхбыструю динамику решётки в условиях фазовых переходов [150], а также разработать методы когерентного управления оптическими фононами [151, 152] и реализовать новые методы формирования предельно коротких световых импульсов путём фазировки ВКР-компонент высокого порядка, генерируемых сверхкороткими световыми импульсами в комбинационно-активных твердотельных материалах [153].

На рисунке 12 представлена схема эксперимента [154], реализующего когерентное комбинационное возбуждение оптических фононов в плёнках искусственного алмаза. Используемая для этой цели лазерная система состоит из задающего источника фемтосекундных импульсов на основе кристалла хром-форстерита и микроструктурированных световодов, осуществляющих управляемое спектральное и временное преобразование сверхкоротких световых импульсов. Специально разработанная схема задающего хром-форстеритного лазера с увеличенной длиной резонатора позволяет обеспечить выходную мощность лазерного излучения с центральной длиной волны 1,25 мкм на уровне 340 мВт при частоте повторения 18 МГц и длительности импульса 50–70 фс. Излучение хром-форстеритного лазера, про-

шедшее спектральную компрессию в нелинейном световоде, используется в качестве поля накачки (частота ω_1) в схеме когерентного комбинационного возбуждения оптических фононов. Перестраиваемое по частоте излучение стоксовой волны (частота ω_2) генерируется путём солитонного сдвига частоты фемтосекундных импульсов хром-форстеритного лазера в МС-световоде (PCF1 на рис. 12). Перестройка центральной длины волны солитона на выходе световода осуществлялась путём изменения входной мощности фемтосекундных импульсов. Параметры смещённых по частоте импульсов на выходе световода измерялись с помощью метода кросс-корреляционного оптического стробирования с разрешением по частоте (XFROG). Для реализации этой методики импульсы, формируемые на выходе световода, смешивались в нелинейно-оптическом кристалле с опорными импульсами хром-форстеритного лазера. Как видно из результатов измерений, представленных на рис. 13а, использовавшийся в экспериментах МС-световод обеспечивал перестройку центральной длины волны стоксовых импульсов в диапазоне 1,35–1,75 мкм. Длительность стоксовых импульсов при этом варьировалась от 55 до 65 фс.

Комбинационное возбуждение оптического фонона симметрии $\Gamma^{(25+)}(F_{2g})$ в плёнке синтетического алмаза (разность частот $\omega_1 - \omega_2$) настраивается в резонанс с частотой фононной моды $\Omega_p/(2\pi c) \approx 1332 \text{ см}^{-1}$. Спектр

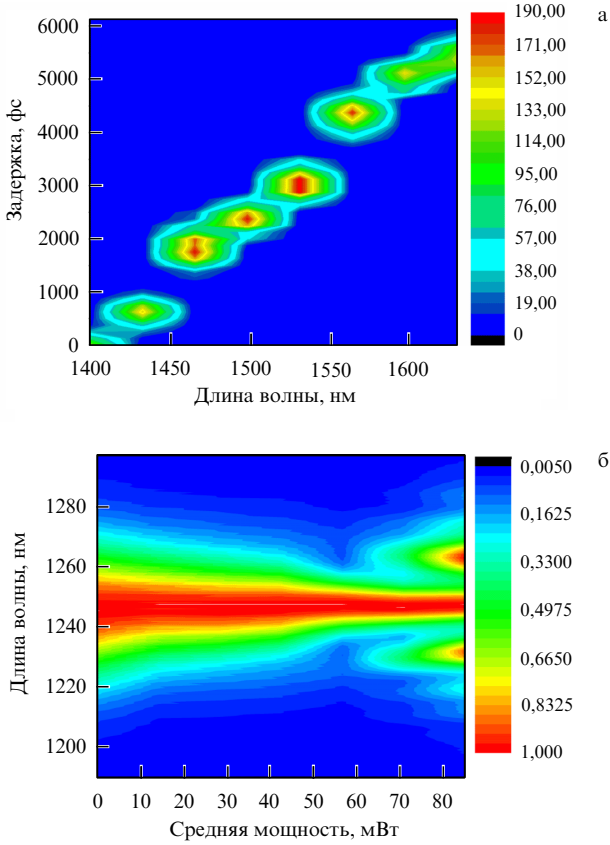


Рис. 13. (а) Карта результатов спектрально-временной характеристики перестраиваемых по частоте солитонов на выходе МС-световода РСF1. (б) Спектры лазерного импульса на выходе МС-световодного спектрального компрессора (РСF2), измеренные для различных мощностей импульсов хром-форстеритного лазера.

спонтанного КР исследуемой алмазной плёнки представлен на вставке I к рис. 14. Возбуждение фонона регистрируется с помощью пробного поля (частота ω_3), испытывающего когерентное комбинационное рассеяние на оптическом фоне, возбуждённом полями накачки и стока импульса. В результате этого процесса генерируется излучение на антистоксовой частоте $\omega_a = \omega_1 - \omega_2 + \omega_3 = \Omega_p + \omega_3$ (когерентное антистоксово рассеяние света), используемое для изучения процесса возбуждения и релаксации оптического фонона. В экспериментальной схеме [154] пробные импульсы формировались путём спектральной компрессии [155, 156] импульсов хром-форстеритного лазера с дополнительной модуляцией фазы в МС-световоде (РСF2 на рис. 12). Модуляция фазы лазерных импульсов осуществляется с помощью призмной пары и приводит к увеличению длительности импульсов до 700 фс. Коэффициент спектральной компрессии, определяемый как отношение ширины спектра выходных импульсов к ширине спектра излучения на входе в световод, при этих условиях варьировался в диапазоне 3,5–4,0 (рис. 13б). Спектральная компрессия пробных импульсов обеспечивала значительное улучшение спектрального разрешения и повышение контраста антистоксова сигнала, связанного с КР на оптических фонах, по отношению к нерезонансному фону, обусловленному нерезонансными четырёхволновыми процессами.

Характерные спектры антистоксова сигнала, измеренные [154] путём сканирования частоты стока

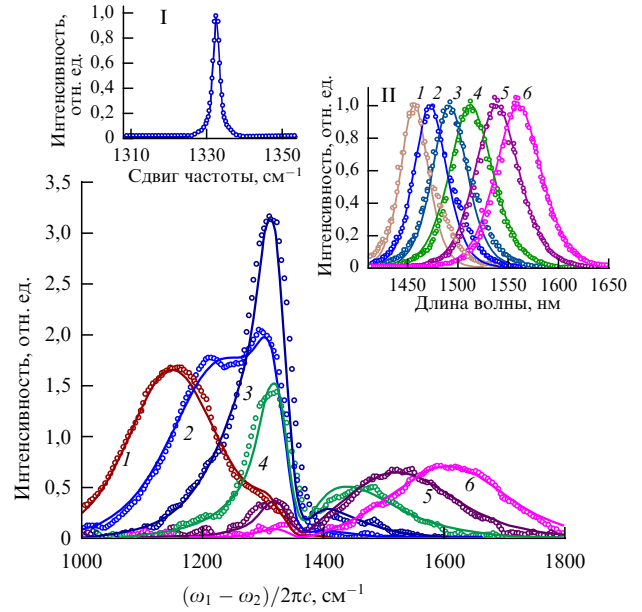


Рис. 14. Спектры сигнала КАРС из плёнки синтетического алмаза. Импульсы накачки и пробного поля формируются спектральным компрессором на основе МС-световода РСF2. В качестве стоковых импульсов используются перестраиваемые по частоте солитоны, формируемые в МС-световоде РСF1. Спектр спонтанного комбинационного рассеяния алмазной плёнки показан на вставке I. На вставке II представлены спектры (1–6) стоковых импульсов, формируемых МС-световодом РСF1, с помощью которых получены спектры КАРС (1–6). Экспериментальные результаты представлены кружками. Сплошными линиями показаны результаты наилучшей аппроксимации экспериментальных КАРС-спектров в предположении лоренцева профиля спектральной линии оптического фона с $\Omega_p/(2\pi c) = 1332 \text{ см}^{-1}$, $\Gamma_p/(2\pi c) = 2 \text{ см}^{-1}$, $|\chi_r^{(3)}/\chi_{nr}^{(3)}| = 17$.

импульса вблизи частоты комбинационного резонанса с оптическим фоном, $\omega_2 \approx \omega_1 - \Omega_p$, представлены на рис. 14. Спектральная линия оптического фона в плёнке синтетического алмаза существенно шире (около $2,0 \text{ см}^{-1}$) той же фонной линии для природного алмаза ($1,65 \text{ см}^{-1}$ при температуре 300 К [157]). Спектроскопия когерентного КР, таким образом, может быть использована для оптической диагностики разупорядочения в кристаллических системах. Спектры КАРС, представленные на рис. 14, имеют характерную асимметрию, обусловленную интерференцией резонансной и нерезонансной составляющих нелинейно-оптической восприимчивости $\chi^{(3)}$ (см. раздел 2).

Для получения количественной информации о свойствах оптического фона воспользуемся следующим выражением для интенсивности антистоксова сигнала:

$$I(\omega_a) \propto \left| \iiint d\omega_1 d\omega_2 d\omega_3 \chi^{(3)} E_1(\omega_1) E_2^*(\omega_2) E_1(\omega_3) \times \right. \\ \left. \times \delta(\omega_a - \omega_1 + \omega_2 - \omega_3) \right|^2. \quad (62)$$

Здесь $E_1(\omega_{1,3})$ — спектр поля накачки и пробного импульса, $E_2(\omega_2)$ — спектр стока импульса. При моделировании спектра антистоксова сигнала с помощью формулы (62) используются полученные экспериментально спектры $E_1(\omega_{1,3})$ и $E_2(\omega_2)$ (см. рис. 13, 14). О надёжности процедуры моделирования свидетельствует согласие результатов расчётов с данными измерений для

спектра нелинейного сигнала вдали от комбинационного резонанса (спектр б на рис. 14, измеренный с использованием стока импульса со спектром б на вставке П к рис. 14).

Нелинейно-оптическая восприимчивость представляется в виде суммы (см. раздел 2) действительной нерезонансной части $\chi_{nr}^{(3)}$ и комплексной резонансной восприимчивости, аппроксимируемой лоренцевым профилем:

$$\chi^{(3)} = \chi_{nr}^{(3)} + \chi_r^{(3)} \frac{\Gamma_p}{2} \left[\Omega_p - (\omega_1 - \omega_2) + \frac{i\Gamma_p}{2} \right]^{-1}, \quad (63)$$

$\chi_r^{(3)}$ — амплитуда резонансной части нелинейно-оптической восприимчивости, Γ_p — ширина линии фонона.

Полагая на основании спектральных измерений $\Gamma_p/(2\pi c) \approx 2 \text{ см}^{-1}$ и $\Omega_p/(2\pi c) \approx 1332 \text{ см}^{-1}$ и используя отношение $|\chi_r^{(3)}/\chi_{nr}^{(3)}|$ в качестве единственного свободно варьируемого (подгоночного) параметра, находим, что наилучшее согласие между выражением (63) и экспериментальным спектральным профилем (см. рис. 14) достигается при $|\chi_r^{(3)}/\chi_{nr}^{(3)}| = 17 \pm 2$. Величина комбинационной нелинейности исследованной в экспериментах синтетической алмазной плёнки в 1,24 раза ниже комбинационной нелинейности природного алмаза [158] в условиях, когда все оптические поля поляризованы вдоль кристаллографического направления [110]. Тем не менее комбинационная нелинейность алмазной плёнки остаётся достаточно сильной, что открывает возможности для разработки на основе синтетических алмазных плёнок устройств для эффективного преобразования частоты сверхкоротких импульсов и синтеза предельно коротких импульсов путём фазировки ВКР-компонент высокого порядка.

Функция нелинейного комбинационного отклика алмазной плёнки, получаемая фурье-преобразованием нелинейной восприимчивости (63), имеет вид

$$f(t) = (1 - f_R) \delta(t) + f_R H(t) \frac{\tau_1^2 + \tau_2^2}{\tau_1 \tau_2} \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right) \sin\left(\frac{t}{\tau_1}\right), \quad (64)$$

где $\tau_1 = \Omega_p^{-1} \approx 4,0 \text{ фс}$, $\tau_2 = 2/\Gamma_p \approx 5,3 \text{ пс}$,

$$f_R = \left(1 + \frac{\kappa \chi_{nr}^{(3)}}{\chi_r^{(3)}}\right)^{-1}$$

— весовой коэффициент, определяющий вклад нелинейности комбинационного типа в суммарный нелинейный отклик. Для параметров исследованной в экспериментах синтетической алмазной плёнки имеем $f_R \approx 2,48 \%$, что с высокой точностью согласуется с результатом измерений для природного алмаза, $f_{R0} \approx 2,53 \%$. Важно отметить, что малость f_R не означает слабость нелинейного комбинационного отклика материала. В самом деле, коэффициент ВКР-усиления алмазной плёнки, вычисляемый по формуле $g_R = 4n_2 n_0 \omega (3c)^{-1} |\chi_r^{(3)}/\chi_{nr}^{(3)}|$, где n_0 — линейный показатель преломления, составляет $g_R \approx 2,3 \text{ см ГВт}^{-1}$ (при $\lambda = 800 \text{ нм}$, $n_2 \approx 5,4 \times 10^{-16} \text{ см}^2 \text{ Вт}^{-1}$), что более чем на два порядка превышает коэффициент ВКР-усиления плавленого кварца ($g_R \approx 0,01 \text{ см ГВт}^{-1}$).

Значительное усиление оптической нелинейности алмазных плёнок может быть достигнуто за счёт

сфазированного возбуждения оптических фононов последовательностью предельно коротких световых импульсов. Для иллюстрации этой возможности рассмотрим последовательность предельно коротких световых импульсов, длительность которых на характерных временных масштабах задачи может считаться бесконечно малой:

$$I(t) \propto I_0 \sum_{m=0}^M \delta(t - m\Delta t). \quad (65)$$

Для сфазированного возбуждения фононной моды с собственной частотой Ω_p временной интервал Δt между импульсами последовательности выбирается равным периоду комбинационно-активной моды $\tau_v = 2\pi/\Omega_p$. Выражение для амплитуды комбинационно-активной моды Ω_p , являющейся решением гармонического осциллятора с собственной частотой Ω_p и постоянной затухания Γ_p для $t > M\Delta t$, при этом имеет вид

$$Q_p(t) \propto \frac{I_0 M}{\Omega_p} \zeta \sin(\Omega_p t + \varphi_p). \quad (66)$$

Здесь $\zeta = [1 - \exp(-M\Gamma_p \Delta t)] [1 - \exp(-\Gamma_p \Delta t)]^{-1}$, φ_p — сдвиг фазы, определяемый конкретным физическим механизмом электрон-фононной связи.

При выполнении условий $\Gamma_p \Delta t \ll 1$, $M\Gamma_p \Delta t \gg 1$, $\Delta t = \tau_v$ имеем $\zeta \approx (2\pi\Gamma_p)^{-1} \Omega_p$. При этих условиях максимальный фактор усиления нелинейного отклика, связанного с КР на оптических фононах, определяется отношением Ω_p/Γ_p . Для исследованных в экспериментах [154] плёнок искусственного алмаза имеем $\zeta \approx 110$. Таким образом, при использовании достаточно протяжённой последовательности сверхкоротких импульсов имеется возможность более чем на два порядка повысить оптическую нелинейность, связанную с комбинационным рассеянием на оптических фононах.

13. Оптическая регистрация физических явлений на аттосекундной временной шкале

Комбинационное рассеяние сверхкоротких импульсов на электронных состояниях атомов и молекул представляет особый интерес для исследования сверхбыстрых процессов в молекулярных и атомарных системах на аттосекундной временной шкале. Методы КАРС-спектхронографии ранее с успехом использовались для исследования кинетики возбуждения и релаксации населённости электронных состояний атомов в газовых и плазменных средах [24]. Спектроскопия КАРС, в частности, позволяет регистрировать комбинационно-активные переходы между состояниями сверхтонкой структуры редкоземельных атомов [159]. В сочетании с методом селективного комбинационного заселения возбуждённых состояний сверхтонкой структуры атомов методика КАРС открывает широкие возможности в области оптической метрологии и оптической обработки сигналов и информации [160]. В последние годы методы когерентного комбинационного рассеяния рентгеновского излучения находят всё более широкое применение для исследования фемто- и аттосекундной динамики колебательных волновых пакетов, формируемых в возбуждённых, быстро распадающихся состояниях молекулярных квантовых систем [161].

Ниже мы остановимся на возможностях когерентного антистоксова рассеяния света как метода оптической регистрации и исследования свойств явления автоионизации в атомарных и молекулярных средах. Автоионизационные (АИ) процессы являются важной составляющей многоэлектронной динамики в широком классе квантовых систем, включая важные с фундаментальной точки зрения и практически значимые процессы автоионизации молекул воды и оже-распада вакансий на внутренних электронных оболочках атомов [162]. Возможность использования методов спектроскопии когерентного КР для исследования динамики автоионизации в наносекундном масштабе времени была экспериментально продемонстрирована около двух десятилетий назад [24, 163]. В последние годы были выполнены уникальные эксперименты по прямому измерению времени оже-распада вакансий на внутренних электронных оболочках атомов с аттосекундным временным разрешением [122, 125]. Методика этих экспериментов основана на измерении спектра испускаемых электронов в зависимости от времени задержки между аттосекундным рентгеновским импульсом, создающим вакансию на внутренней оболочке атома, и предельно коротким лазерным импульсом, формирующим распределение испускаемых электронов в импульсном пространстве. Использование техники когерентного комбинационного рассеяния света открывает возможности регистрации и изучения процессов автоионизации в формате полностью оптического эксперимента.

Автоионизационное состояние многоэлектронной системы, возникающее в результате интерференции волновой функции ψ_E электрона с энергией E в непрерывном спектре и связанного электронного состояния φ , описывается в рамках модели Фано [164, 165]:

$$\Psi_E = \frac{\sin \Delta}{\pi V_E} \Phi - \psi_E \cos \Delta. \quad (67)$$

Здесь

$$\Phi = \varphi + \text{v.p.} \int \frac{V_{E'} \psi_{E'}}{E - E'} dE' \quad (68)$$

— волновая функция связанного состояния, модифицированного взаимодействием с состояниями непрерывного спектра, Δ — сдвиг фазы радиальной части состояния Фано, $V_E = \langle \varphi | H | \psi_E \rangle$, H — гамильтониан электронной системы. Интеграл в выражении (68) вычисляется в смысле главного значения.

Процесс автоионизации приводит к испусканию электронов со спектром, описываемым профилем Фано–Бейтлера [164–166],

$$\sigma(\varepsilon) = \frac{(q + \varepsilon)^2}{1 + \varepsilon^2}, \quad (69)$$

где $\varepsilon = (E - E_0)/\Gamma$, E_0 — энергия, соответствующая центру спектра, $\Gamma = \pi |V_E|^2$ — полная ширина спектра автоионизации,

$$q = \frac{\langle \Phi | T | \varphi_i \rangle}{\pi V_E^* \langle \psi_E | T | \varphi_i \rangle} \quad (70)$$

— параметр Фано [164], T — оператор дипольного момента.

Для анализа линейного оптического отклика АИ-состояния во временном представлении воспользуемся стандартным выражением для комплексной амплитуды рассеяния резонанса Фано:

$$f(\varepsilon) = \frac{q + \varepsilon}{1 - i\varepsilon}. \quad (71)$$

Преобразование Фурье амплитуды рассеяния (71) приводит к следующему выражению для временного отклика:

$$f(t) = \frac{\Gamma}{\hbar} (q - i) \Theta(t) \exp\left(-i \frac{E_0}{\hbar} t\right) \exp\left(-\frac{\Gamma}{\hbar} t\right) + i\delta(t), \quad (72)$$

где $\Theta(t)$ — функция единичной ступеньки (функция Хевисайда).

Функция линейного оптического отклика (72) отражает интерференционную природу АИ-состояния. Слагаемое, описывающее затухающие гармонические колебания, соответствует переходам между связанными состояниями электрона. Переходы в состояния непрерывного спектра описываются вторым слагаемым в выражении (72), имеющим вид дельта-функции (ср. с выражением (3) для чисто нерезонансного электронного нелинейно-оптического отклика).

Функция нелинейно-оптического временного отклика АИ-состояний вычисляется с помощью методов теории возмущений [167, 168] или как преобразование Фурье выражения для нелинейно-оптической восприимчивости вида (9) с заменой суммирования по промежуточным состояниям на интегрирование по непрерывному спектру. Анализ нелинейно-оптического отклика многоэлектронных систем показывает, что методы когерентного КР позволяют разделить interfering каналы релаксации АИ-состояний многоэлектронных систем, обусловленные переходами в связанные и свободные электронные состояния, и измерить постоянные времена для каждого из таких каналов на фемто- и аттосекундной временной шкале [161]. Для иллюстрации этой возможности рассмотрим пару interfering АИ-состояний, комбинационное возбуждение которых осуществляется (рис. 15) с помощью рентгеновского или ультрафиолетового аттосекундного импульса накачки (частота ω_1) и сверхкороткого лазерного стокова импульса (частота ω_2). Автоионизационное состояние k на рис. 15 является результатом интерференции модифицированного квантового состояния Φ дискретного спектра и состояния непрерывного спектра ψ_E . Комбинационные переходы, связывающие состояние Φ и состояние континуума ψ_E со связанным состоянием g , описываемым волновой функцией φ_g , образуют interfering каналы rw1 и rw2 . Пробный импульс в рассматриваемой схеме КАРС-спектрохронографии зондирует распад пакета АИ-состояний, приготовленного импульсами накачки и Стокса.

На рисунке 16а–в представлены результаты расчётов для сигнала КАРС на частоте $\omega_4 = \omega_1 - \omega_2 + \omega_3$, генерируемого в результате взаимодействия задержанного по времени рентгеновского или ультрафиолетового аттосекундного пробного импульса (частота ω_3) с АИ-пакетом, состоящим из двух АИ-состояний с временами релаксации τ_{r1} и τ_{r2} и частотными отстройками $\Delta_k = \omega_k - \omega_g - (\omega_1 - \omega_2)$, где $k = 1, 2$. Интенсивность сигнала КАРС при этом определяется четырьмя параметрами

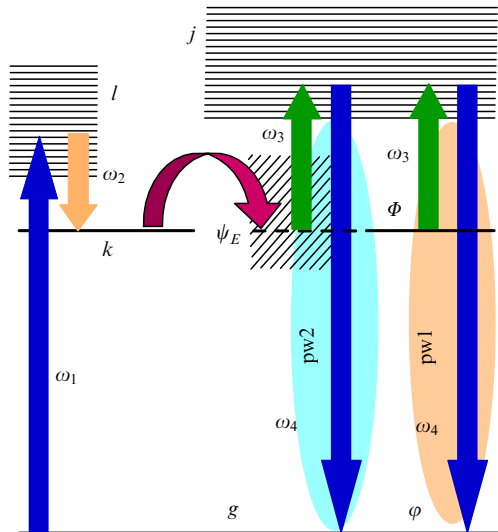


Рис. 15. Когерентное антистоксово рассеяние света на АИ-состояниях. Разность частот $\omega_1 - \omega_2$ аттосекундного рентгеновского импульса накачки и сверхкороткого лазерного стоксова импульса настроена в резонанс с комбинационным переходом между начальным состоянием g и АИ-состоянием k . Задержанный по времени пробный импульс с частотой ω_3 используется для зондирования распада пакета АИ-состояний, приготовленного импульсами накачки и Стокса. Показаны также системы промежуточных состояний l и j , дающих вклад в нелинейно-оптическую поляризацию среды, приводящую к генерации сигнала КАРС. АИ-состояние k является результатом интерференции модифицированного квантового состояния Φ дискретного спектра и состояния непрерывного спектра ψ_E . Комбинационные переходы, связывающие состояние Φ и состояние континуума ψ_E со связанным состоянием g , описываемым волновой функцией φ , образуют интерферирующие квантовые каналы pw1 и pw2.

рами Фано — параметрами q'_1 и q'_2 , характеризующими связь соответственно первого и второго АИ-состояний с состоянием g через взаимодействие с полями накачки и Стокса, а также параметрами q''_1 и q''_2 , характеризующими связь первого и второго АИ-состояний с состоянием g через взаимодействие с пробным и антистоксовым полями (см. рис. 15). Измерение интенсивности частотно-разрешённого сигнала КАРС в зависимости от времени задержки τ между пробным импульсом и импульсами накачки и Стокса (аттосекундная КАРС-спектрохронография) позволяет разделить каналы релаксации многоэлектронной системы, связанные с интерферирующими АИ-состояниями, и определить времена релаксации и параметры связи между состояниями дискретного и непрерывного спектров для каждого из АИ-состояний. Методика КАРС-спектрохронографии позволяет регистрировать и изучать автоионизационные явления в полностью оптическом формате [161, 169], т.е. с использованием только оптических средств возбуждения и зондирования квантовой системы и регистрации оптического отклика. Для широкого класса физических объектов и аттосекундных явлений полностью оптическая схема эксперимента является не только более удобной с практической точки зрения, но и единственно возможной [170]. Это относится, в частности, к быстропротекающим электронным процессам в объёме жидкостей и твёрдых тел, где методы измерения, основанные на регистрации заряженных частиц, оказываются неприменимыми.

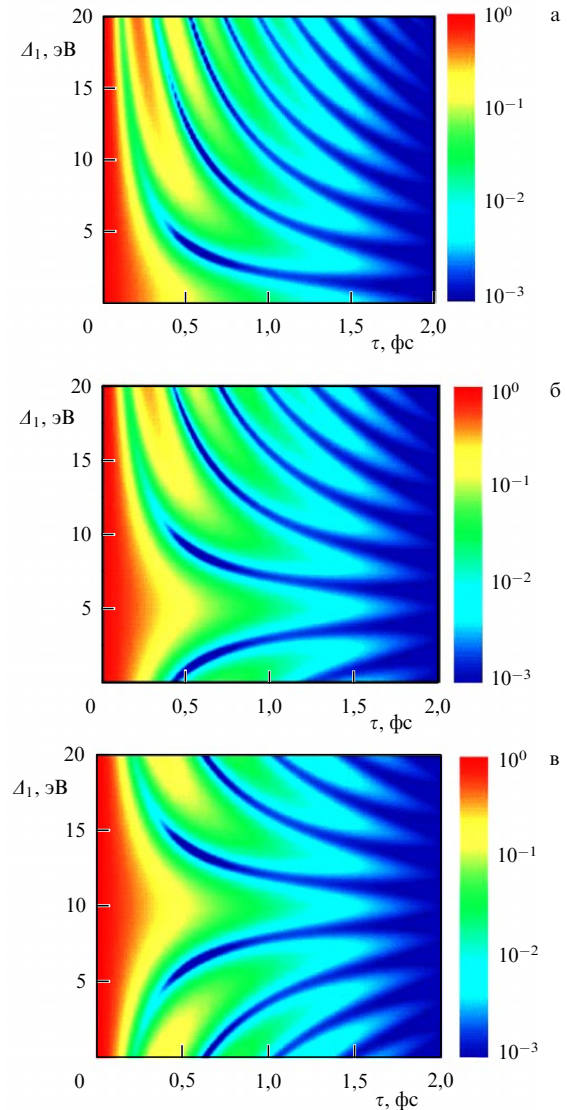


Рис. 16. КАРС-спектрохронография пакета АИ-состояний: интенсивность сигнала КАРС как функция частотной отстройки Δ_1 и времени задержки τ между пробным импульсом и импульсами накачки и Стокса для $\tau_{r1} = 0,8$ фс, $\tau_{r2} = 0,4$ фс, $q'_1 = q'_2 = q''_1 = q''_2 = 1$, $\Delta_2 = 0$ (а), 5 эВ (б), 10 эВ (в).

14. Заключение

Прогресс лазерных технологий приводит к появлению новых областей оптической физики, предметом которых является исследование физических явлений на фемто- и аттосекундной временной шкале. В основе многих новых подходов и методов этого быстро развивающегося направления лежит явление комбинационного рассеяния света. В режиме сверхкоротких импульсов комбинационное рассеяние приводит к новым явлениям, позволяющим осуществить высокоэффективное преобразование частоты сверхкоротких импульсов и сформировать предельно короткие импульсы электромагнитного излучения в широких диапазонах спектра, напряжённости поля и длительности импульсов. Использование явления комбинационного рассеяния сверхкоротких импульсов открывает уникальные возможности для исследования быстропротекающих процессов на фемто- и аттосекундной временной шкале в полностью оптическом

формате и развития новых подходов высокочувствительной, высокоселективной микроскопии физических, химических и биологических объектов.

Автор сердечно признателен А.Б. Федотову, Д.А. Сидорову-Бирюкову, А.А. Воронину, Е.Е. Серебрянникову, И.В. Федотову, А.Д. Саввину, А.А. Ланину, Л.В. Дорожиной-Амитоновой, Ю.М. Михайловой, П.А. Жохову, В.Т. Платоненко, В.П. Митрохину (физический факультет МГУ им. М.В. Ломоносова), А.А. Иванову, М.В. Алфимову (Центр фотохимии РАН), А. Балтушке, А.-Я. Ферхуфу (Венский технологический университет), Э. Гулиелмакису, Г. Корну, Ф. Краусу (Институт квантовой оптики им. М. Планка, Гархинг), В.Я. Панченко (Институт передовых лазерных и информационных технологий РАН), Р. Майлсу, М. Шнейдеру, Ш. Зукеверу (Принстонский университет), А.В. Соколову, М. Скалли (Техасский университет), М.Ю. Иванову (Империял колледж, Лондон), Санны Ши (Гарвардский университет), К.В. Анохину (Институт нормальной физиологии им. П.К. Анохина РАМН), Чинг-ю Вангу, Минглие Ху, Янфенг Ли (Университет г. Тяндзин), М. Мотцкусу (Гейдельбергский университет) за полезные обсуждения, поддержку и плодотворное сотрудничество.

Список литературы

- Raman C V, Krishnan K S *Nature* **121** 507 (1928)
- Raman C V, Krishnan K S *Nature* **121** 711 (1928)
- Raman C V, Krishnan K S *Nature* **122** 12 (1928)
- Raman C V *Nature* **123** 50 (1929)
- Landsberg G, Mandelstam L *Naturwissenschaften* **16** 557 (1928)
- Фабелинский И Л *УФН* **168** 1341 (1998) [Fabelinskii I L *Phys. Usp.* **41** 1229 (1998)]
- Фабелинский И Л *УФН* **173** 1137 (2003) [Fabelinskii I L *Phys. Usp.* **46** 1105 (1998)]
- Гинзбург В Л, Фабелинский И Л *Вестн. РАН* **73** 215 (2003) [Ginzburg V L, Fabelinskii I L *Herald Russ. Acad. Sci.* **73** 152 (2003)]
- Woodbury E J, Ng W K *Proc. IRE* **50** 2347 (1962)
- Bloembergen N *Nonlinear Optics* (New York: W.A. Benjamin, 1965)
- Maker P D, Terhune R W *Phys. Rev.* **137** A801 (1965)
- Shen Y R *The Principles of Nonlinear Optics* (New York: Wiley, 1984)
- Желтиков А М *Сверхкороткие импульсы и методы нелинейной оптики* (М.: Физматлит, 2006)
- Agrawal G P *Nonlinear Fiber Optics* (San Diego: Academic Press, 2001)
- Schmitt M et al. *J. Phys. Chem. A* **102** 4059 (1998)
- Gräfe S et al. *J. Raman Spectrosc.* **38** 998 (2007)
- Sokolov A V et al. *Phys. Rev. Lett.* **85** 562 (2000)
- Zhavoronkov N, Korn G *Phys. Rev. Lett.* **88** 203901 (2002)
- Желтиков А М *УФН* **172** 743 (2002) [Zheltikov A M *Phys. Usp.* **45** 687 (2002)]
- Druet S A J, Taran J-P E *Prog. Quantum Electron.* **7** 1 (1981)
- Ахманов С А, Коротеев Н И *Методы нелинейной оптики в спектроскопии рассеяния света* (М.: Наука, 1981)
- Ахманов С А, Коротеев Н И *УФН* **123** 405 (1977) [Akhmanov S A, Koroteev N I *Sov. Phys. Usp.* **20** 899 (1977)]
- Коротеев Н И *УФН* **152** 493 (1987) [Koroteev N I *Sov. Phys. Usp.* **30** 628 (1987)]
- Желтиков А М, Коротеев Н И *УФН* **169** 385 (1999) [Zheltikov A M, Koroteev N I *Phys. Usp.* **42** 321 (1999)]
- Zheltikov A M *J. Raman Spectrosc.* **31** 653 (2000)
- Zumbusch A, Holtom G R, Xie X S *Phys. Rev. Lett.* **82** 4142 (1999)
- Evans C L et al. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **102** 16807 (2005)
- Scully M O et al. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **99** 10994 (2002)
- Kocharovskiy V et al. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **102** 7806 (2005)
- Pestov D et al. *Science* **316** 265 (2007)
- Zheltikov A M, Shneider M N, Miles R B *Appl. Phys. B* **83** 149 (2006)
- Zheltikov A, L'Huillier A, Krausz F "Nonlinear optics", in *Springer Handbook of Lasers and Optics* (Ed. F Träger) (New York: Springer, 2007) p. 157
- Harris S E, Sokolov A V *Phys. Rev. Lett.* **81** 2894 (1998)
- Sokolov A V, Yavuz D D, Harris S E *Opt. Lett.* **24** 557 (1999)
- Nazarkin A et al. *Phys. Rev. Lett.* **83** 2560 (1999)
- Wittmann M, Nazarkin A, Korn G *Phys. Rev. Lett.* **84** 5508 (2000)
- Дианов Е М и др. *Письма в ЖЭТФ* **41** 242 (1985) [Dianov E M et al. *JETP Lett.* **41** 294 (1985)]
- Mitschke F M, Mollenauer L F *Opt. Lett.* **11** 659 (1986)
- Желтиков А М *УФН* **176** 623 (2006) [Zheltikov A M *Phys. Usp.* **49** 605 (2006)]
- Zheltikov A M *Opt. Commun.* **282** 985 (2009)
- Oron D et al. *Phys. Rev. A* **65** 043408 (2002)
- Simon M et al. *Phys. Rev. A* **73** 020706(R) (2006)
- Reeves W H et al. *Nature* **424** 511 (2003)
- Konorov S O, Fedotov A B, Zheltikov A M *Opt. Lett.* **28** 1448 (2003)
- Akimov D A et al. *Appl. Phys. B* **76** 515 (2003)
- Zheltikov A M *Phys. Rev. A* **79** 023823 (2009)
- Blow K J, Wood D *IEEE J. Quantum Electron.* **25** 2665 (1989)
- Stolen R H et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **6** 1159 (1989)
- Bergé L et al. *Rep. Prog. Phys.* **70** 1633 (2007)
- Couairon A, Mysyrowicz A *Phys. Rep.* **441** 47 (2007)
- Mlejnek M, Wright E M, Moloney J V *Opt. Lett.* **23** 382 (1998)
- Lin Q et al. *Opt. Express* **14** 4786 (2006)
- Gordon J P *Opt. Lett.* **11** 662 (1986)
- Santhanam J, Agrawal G P *Opt. Commun.* **222** 413 (2003)
- Lin C H et al. *Phys. Rev. A* **13** 813 (1976)
- Ripoche J-F et al. *Opt. Commun.* **135** 310 (1997)
- Nibbering E T J et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **14** 650 (1997)
- Nitsch W, Kiefer W *Opt. Commun.* **23** 240 (1977)
- Stapelfeldt H, Seideman T *Rev. Mod. Phys.* **75** 543 (2003)
- Zheltikov A M *J. Raman Spectrosc.* **39** 756 (2008)
- Morgen M et al. *J. Chem. Phys.* **102** 8780 (1995)
- Fedotov I V, Savvin A D, Fedotov A B, Zheltikov A M *Opt. Lett.* **32** 1275 (2007)
- Zheltikov A M *Opt. Lett.* **32** 2052 (2007)
- Calegari F et al. *Phys. Rev. Lett.* **100** 123006 (2008)
- Желтиков А М *УФН* **177** 737 (2007) [Zheltikov A M *Phys. Usp.* **50** 705 (2007)]
- Walrafen G E, Krishnan P N *Appl. Opt.* **21** 359 (1982)
- Hollenbeck D, Cantrell C D *J. Opt. Soc. Am. B* **19** 2886 (2002)
- Lines M E *J. Appl. Phys.* **62** 4363 (1987)
- Knight J C et al. *Opt. Lett.* **21** 1547 (1996)
- Cregan R F et al. *Science* **285** 1537 (1999)
- Smith C M et al. *Nature* **424** 657 (2003)
- Желтиков А М *УФН* **174** 1301 (2004) [Zheltikov A M *Phys. Usp.* **47** 1205 (2004)]
- Желтиков А М *Оптика микроструктурированных волокон* (М.: Наука, 2004)
- Zheltikov A M *Nature Mater.* **4** 267 (2005)
- Russell P *Science* **299** 358 (2003)
- Knight J C *Nature* **424** 847 (2003)
- Желтиков А М *УФН* **170** 1203 (2000) [Zheltikov A M *Phys. Usp.* **43** 1125 (2000)]
- Russell P St J *J. Lightwave Technol.* **24** 4729 (2006)
- Желтиков А М *Микроструктурированные световоды в оптических технологиях* (М.: Физматлит, 2009)
- Liu X et al. *Opt. Lett.* **26** 358 (2001)
- Serebryannikov E E et al. *Phys. Rev. E* **72** 056603 (2005)
- Paulsen H N et al. *Opt. Lett.* **28** 1123 (2003)
- Konorov S O et al. *Phys. Rev. E* **70** 057601 (2004)
- Sidorov-Biryukov D A, Serebryannikov E E, Zheltikov A M *Opt. Lett.* **31** 2323 (2006)
- Ivanov A A, Podshivalov A A, Zheltikov A M *Opt. Lett.* **31** 3318 (2006)
- Kano H, Hamaguchi H *Opt. Express* **13** 1322 (2005)
- Andresen E R et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **22** 1934 (2005)
- von Vacano B, Wohlleben W, Motzkus M *Opt. Lett.* **31** 413 (2006)
- Zheltikov A M *J. Raman Spectrosc.* **38** 1052 (2007)

90. Doronina L V et al. *Opt. Lett.* **34** 3373 (2009)
91. Ishii N et al. *Phys. Rev. E* **74** 036617 (2006)
92. Teisset C et al. *Opt. Express* **13** 6550 (2005)
93. Mamyshev P V, Chernikov S V *Opt. Lett.* **15** 1076 (1990)
94. Kibler B, Dudley J M, Coen S *Appl. Phys. B* **81** 337 (2005)
95. Zheltikov A M *Phys. Rev. E* **75** 037603 (2007)
96. Liu B-W et al. *Opt. Express* **16** 14987 (2008)
97. Akimov D A et al. *Opt. Lett.* **28** 1948 (2003)
98. Limpert J et al. *IEEE J. Selected Topics Quantum Electron.* **12** 233 (2006)
99. Liu B-W et al. *Laser Phys. Lett.* **6** 44 (2009)
100. Воронин А А, Желтиков А М *ЖЭТФ* **133** 687 (2008) [Voronin A A, Zheltikov A M *JETP* **106** 597 (2008)]
101. Song Y-J et al. *Laser Phys. Lett.* **7** 230 (2010)
102. Röser F et al. *Opt. Lett.* **32** 3495 (2007)
103. Südmeyer T et al. *Opt. Lett.* **28** 1951 (2003)
104. Schenkel B, Paschotta R, Keller U *J. Opt. Soc. Am. B* **22** 687 (2005)
105. Ouzounov D et al. *Opt. Express* **13** 6153 (2005)
106. Bessonov A D, Zheltikov A M *Phys. Rev. E* **73** 066618 (2006)
107. Serebryannikov E E, Zheltikov A M *Phys. Rev. A* **76** 013820 (2007)
108. Fedotov A B et al. *Opt. Lett.* **34** 851 (2009)
109. Foster M et al. *Opt. Express* **13** 6848 (2005)
110. Tognetti M V, Crespo H M *J. Opt. Soc. Am. B* **24** 1410 (2007)
111. Voronin A A, Zheltikov A M *Phys. Rev. A* **78** 063834 (2008)
112. Eidam T et al. *Appl. Phys. B* **92** 9 (2008)
113. Федотов И В и др. *Квантовая электроника* **39** 634 (2009) [Fedotov I V et al. *Quantum Electron.* **39** 634 (2009)]
114. Fedotov I V et al., in *CLEO-Europe 2009: Conf. on Lasers and Electro-Optics, Munich, Germany, 14–19 June 2009*
115. Коноров С О и др. *Письма в ЖЭТФ* **81** 65 (2005) [Konorov S O et al. *JETP Lett.* **81** 58 (2005)]
116. Skryabin D V et al. *Science* **301** 1705 (2003)
117. Biancalana F, Skryabin D V, Yulin A V *Phys. Rev. E* **70** 016615 (2004)
118. Herrmann J et al. *Phys. Rev. Lett.* **88** 173901 (2002)
119. Brabec T, Krausz F *Phys. Rev. Lett.* **78** 3282 (1997)
120. Paul P M et al. *Science* **292** 1689 (2001)
121. Drescher M et al. *Science* **291** 1923 (2001)
122. Corkum P B, Krausz F *Nature Phys.* **3** 381 (2007)
123. Krausz F, Ivanov M *Rev. Mod. Phys.* **81** 163 (2009)
124. Hentschel M et al. *Nature* **414** 509 (2001)
125. Drescher M et al. *Nature* **419** 803 (2002)
126. Niikura H et al. *Nature* **417** 917 (2002)
127. Niikura H, Villeneuve D M, Corkum P B *Phys. Rev. Lett.* **94** 083003 (2005)
128. Goulielmakis E et al. *Science* **305** 1267 (2004)
129. Kienberger R et al. *Science* **297** 1144 (2002)
130. Uiberacker M et al. *Nature* **446** 627 (2007)
131. Cavalieri A L et al. *Nature* **449** 1029 (2007)
132. Corkum P B *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994 (1993)
133. Желтиков А М и др., Препринт № 5 (М.: Физический факультет МГУ, 1988)
134. Fedotov A B, Gladkov S M, Koroteev N I, Zheltikov A M *J. Opt. Soc. Am. B* **8** 363 (1991)
135. Goulielmakis E et al. *Science* **320** 1614 (2008)
136. Cheng W et al. *Phys. Rev. Lett.* **94** 045003 (2005)
137. Malkin V M, Fisch N J, Wurtele J S *Phys. Rev. E* **75** 026404 (2007)
138. Voronin A A, Fedotov I V, Fedotov A B, Zheltikov A M *Opt. Lett.* **34** 569 (2009)
139. Evans C L, Xie X S *Annu. Rev. Anal. Chem.* **1** 883 (2008)
140. Dudovich N, Oron D, Silberberg Y *Nature* **418** 512 (2002)
141. Dudovich N, Oron D, Silberberg Y *J. Chem. Phys.* **118** 9208 (2003)
142. Tai K et al. *Appl. Phys. Lett.* **49** 236 (1986)
143. Potasek M J, Agrawal G P *Phys. Rev. A* **36** 3862 (1987)
144. Agrawal G P *Phys. Rev. Lett.* **59** 880 (1987)
145. Serebryannikov E E et al. *Phys. Rev. E* **72** 027601 (2005)
146. Fedotov A B et al. *Opt. Commun.* **255** 218 (2005)
147. Chen J S et al. *Opt. Lett.* **31** 873 (2006)
148. Желтиков А М *Письма в ЖЭТФ* **85** 667 (2007) [Zheltikov A M *JETP Lett.* **85** 539 (2007)]
149. Sabbah A J, Riffe D M *Phys. Rev. B* **66** 165217 (2002)
150. Siders C W et al. *Science* **286** 1340 (1999)
151. Hase M et al. *Nature* **426** 51 (2003)
152. Ishioka K et al. *Appl. Phys. Lett.* **89** 231916 (2006)
153. Zhi M, Wang X, Sokolov A V *Opt. Express* **16** 12139 (2008)
154. Savvin A D et al. *Opt. Lett.* **35** 919 (2010)
155. Oberthaler M, Höpfel R A *Appl. Phys. Lett.* **63** 1017 (1993)
156. Sidorov-Biryukov D A et al. *Opt. Express* **16** 2502 (2008)
157. Solin S A, Ramdas A K *Phys. Rev. B* **1** 1687 (1970)
158. Levenson M D, Flytzanis C, Bloembergen N *Phys. Rev. B* **6** 3962 (1972)
159. Гладков С М и др. *Оптика и спектроскопия* **65** 249 (1988) [Gladkov S M et al. *Opt. Spectrosc.* **65** 149 (1988)]
160. Naumov A N et al. *Laser Phys.* **11** 1319 (2001)
161. Zheltikov A M et al. *Phys. Rev. Lett.* **103** 033901 (2009)
162. Wickenhauser M et al. *Phys. Rev. Lett.* **94** 023002 (2005)
163. Желтиков А М, Ильясов О С, Коротеев Н И *Письма в ЖЭТФ* **54** 143 (1991) [Zheltikov A M, Ilyasov O S, Koroteev N I *JETP Lett.* **54** 139 (1991)]
164. Fano U *Phys. Rev.* **124** 1866 (1961)
165. Armstrong J A, Wynne J J, in *Nonlinear Spectroscopy* (Ed. N Bloembergen) (Amsterdam: North-Holland, 1977) p. 152
166. Beutler H Z. *Phys.* **93** 177 (1935)
167. Armstrong J A, Wynne J J *Phys. Rev. Lett.* **33** 1183 (1974)
168. Armstrong L (Jr.), Beers B L *Phys. Rev. Lett.* **34** 1290 (1975)
169. Zheltikov A M *Phys. Rev. A* **74** 053403 (2006)
170. Verhoef A J et al. *Phys. Rev. Lett.* **104** 163904 (2010)

The Raman effect in femto- and attosecond physics

A.M. Zheltikov

Physics Department, International Laser Center, M.V. Lomonosov Moscow State University,
Vorob'evy gory, 119991 Moscow, Russian Federation
Tel. (7-495) 939-51 74. Fax (7-495) 939-31 13
E-mail: zheltikov@phys.msu.ru

The interaction of ultrashort light pulses with matter is accompanied by a variety of new phenomena involving Raman scattering due to rotational and vibrational modes of molecules, electronic states of atoms and ions, as well as phonons in solids. These effects offer unique opportunities for an all-optical detection of ultrafast processes on the femto- and attosecond time scales, efficient spectral and temporal transformation of ultrashort field waveforms, as well as highly sensitive microscopy of physical, chemical, and biological objects.

PACS numbers: 42.65.Dr, 42.65.Ky, 42.65.Re, 42.65.Wi

DOI: 10.3367/UFNr.0181.201101c.0033

Bibliography — 170 references

Received 26 April 2010, revised 28 June 2010

Uspekhi Fizicheskikh Nauk **181** (1) 33–58 (2011)

Physics–Uspekhi **54** (1) (2011)