

ФЕМТОСЕКУНДНАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ КОГЕРЕНТНОГО АНТИСТОКСОВА РАССЕЯНИЯ СВЕТА С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ ПЕРЕСТРАИВАЕМЫХ ПО ЧАСТОТЕ ФАЗОВО-МОДУЛИРОВАННЫХ ИМПУЛЬСОВ, ГЕНЕРИРУЕМЫХ В МИКРОСТРУКТУРИРОВАННОМ ВОЛОКНЕ

*С. О. Коноров^а, Д. А. Акимов^а, А. А. Иванов^б,
М. В. Алфимов^б, А. М. Желтиков^{а,с*}*

^а *Физический факультет, Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова
119899, Москва, Россия*

^б *Центр фотохимии Российской академии наук
117421, Москва, Россия*

^с *Международный лазерный центр,
Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова
119899, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 11 ноября 2003 г.

Предложена и экспериментально реализована новая схема фемтосекундной спектроскопии когерентного антистоксова рассеяния, основанная на использовании импульсов с фазовой модуляцией. В рамках разработанной теории этой разновидности когерентной нелинейной спектроскопии показано, что линейное отображение время–частота, определяемое импульсами с линейной модуляцией фазы, позволяет измерять спектры нелинейного отклика среды путем изменения времени задержки между импульсами накачки. Для экспериментальной реализации предложенной методики предлагается использовать микроструктурированные волокна со специальным профилем дисперсии для генерации перестраиваемых по частоте импульсов с гладкой огибающей и регулируемой модуляцией фазы. Экспериментально исследованы длительность, спектр и фазовая модуляция импульсов антистоксова излучения, генерируемого в микроструктурированных волокнах фемтосекундными импульсами излучения хром-форстеритового лазера. Перестраиваемые по частоте фемтосекундные импульсы, формируемые в микроструктурированных волокнах, использованы для получения сигнала когерентного антистоксова рассеяния из раствора толуола.

PACS: 42.65.Wi, 42.81.Qb

1. ВВЕДЕНИЕ

Когерентное антистоксово рассеяние света (КАРС) [1, 2] является одним из наиболее широко распространенных методов нелинейной спектроскопии. Техника КАРС обеспечивает высокое пространственное, временное и спектральное разрешение [3] при исследовании возбужденных газовых сред, плазмы, пламен и процессов го-

рения, а также используется для когерентной микроскопии биологических объектов [4] и ионизованных пространственно-неоднородных газовых сред [5]. Фемтосекундная КАРС-спектроскопия [6] позволяет изучать быстропротекающие процессы и динамику колебательных волновых пакетов в молекулярных системах в газовой, жидкой и твердотельной фазах. Возможности КАРС-спектроскопии и КАРС-микроскопии, включая чувствительность, а также временное, пространственное и спектральное разрешение этих методик, существенно

*E-mail: zheltikov@top.phys.msu.su

расширяются за счет использования методов поляризационного [1, 3] и фазового [7] управления процессами четырехфотонного рассеяния.

Идейное и техническое развитие методики КАРС во многом определяется совершенствованием источников перестраиваемого излучения. Ранние эксперименты по КАРС-спектроскопии выполнялись с использованием стоксова сигнала, получаемого в результате процесса вынужденного комбинационного рассеяния в кювете с комбинационно-активным газом [8]. Появление перестраиваемых лазерных источников открыло новую фазу в области нелинейной спектроскопии [1]. Использование в качестве источников перестраиваемого излучения параметрических генераторов света и лазеров на органических красителях радикально расширило сферу приложений КАРС-спектроскопии, позволив во многих случаях превратить технику КАРС из метода лабораторных исследований в инженерный инструмент практического исследования автомобильных и ракетных двигателей [9, 10].

В настоящей работе нами предложена и экспериментально реализована новая схема фемтосекундной КАРС-спектроскопии, основанная на использовании импульсов с фазовой модуляцией. В рамках разработанной теории этой разновидности когерентной нелинейной спектроскопии показано (разд. 2), что линейное отображение время–частота, определяемое импульсами с линейной модуляцией фазы, позволяет измерять спектры нелинейного отклика среды путем изменения времени задержки между импульсами накачки. Ключевая идея экспериментальной реализации предложенной экспериментальной методики (разд. 3) заключается в использовании микроструктурированных волокон [11–14] со специальным профилем дисперсии для генерации перестраиваемых по частоте импульсов с гладкой огибающей и регулируемой модуляцией фазы. Благодаря высокой степени локализации электромагнитного излучения в сердцевине и возможности формирования требуемого профиля дисперсии микроструктурированные волокна позволяют радикально увеличить эффективность нелинейно-оптического преобразования частоты фемтосекундных импульсов [15–19], открывая возможности создания принципиально новых источников перестраиваемого по частоте излучения для нелинейной спектроскопии. Перестраиваемые по частоте фемтосекундные импульсы, формируемые в микроструктурированных волокнах, используются для получения сигнала КАРС из раствора толуола (разд. 4).

2. СПЕКТРОСКОПИЯ КАРС С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ ЧИРПИРОВАННЫХ ИМПУЛЬСОВ

Короткие световые импульсы с фазовой модуляцией (ФМ) широко используются для решения задач лазерной спектроскопии и квантового управления [20–27]. В настоящем разделе мы исследуем возможности использования чирпированных импульсов для измерения спектра нелинейного отклика комбинационно-активной среды. С физической точки зрения возможность проведения спектральных измерений методами время-разрешенной (нестационарной) спектроскопии с использованием чирпированных импульсов основана на том, что зависимость частоты от времени в импульсах с линейной фазовой модуляцией позволяет перейти с помощью линейного преобразования от частотной переменной к переменной времени (рис. 1). Спектр нелинейной восприимчивости среды при этом может быть получен путем измерения зависимости сигнала нелинейного рассеяния от времени задержки между импульсами возбуждения и зондирования [28–31].

Рассмотрим общий случай генерации нелинейного сигнала в результате процесса когерентного антистоксова рассеяния света

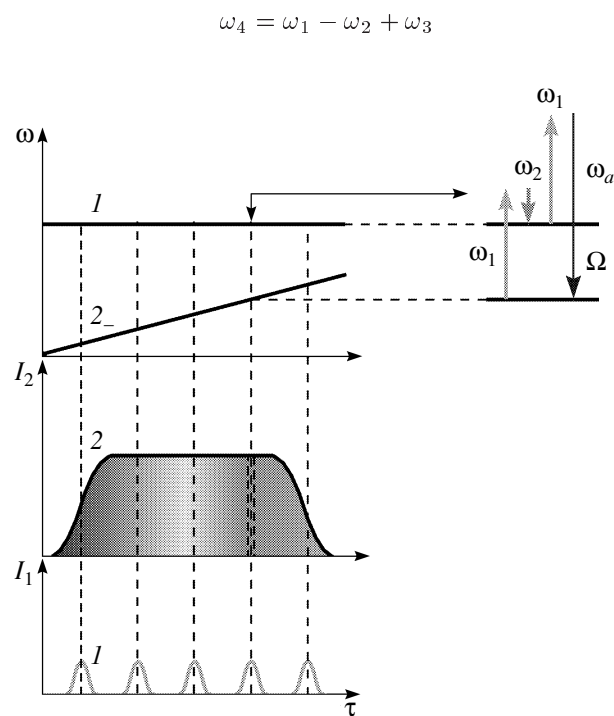


Рис. 1. Принцип фемтосекундной КАРС-спектроскопии с использованием ФМ-импульсов

с участием световых импульсов, распространяющихся вдоль оси z ,

$$E_i = A_i(t - z/v_i, z) \exp[i(k_i z - \omega_i t)] + \text{с.с.}, \quad (1)$$

где A_i , ω_i , k_i и v_i — соответственно медленно меняющаяся амплитуда, частота, волновое число и групповая скорость i -го импульса ($i = 1, 2, 3, 4$).

Выражение для медленно меняющейся амплитуды сигнала КАРС в первом порядке теории дисперсии имеет следующий вид [32]:

$$\begin{aligned} \left(\frac{\partial}{\partial z} - \frac{1}{v_4} \frac{\partial}{\partial t} \right) A_4(t - z/v_4, z) = \\ = -\frac{2\pi\omega_4^2}{ik_4 c^2} P^{NL} \exp[-i(k_4 z - \omega_4 t)]. \end{aligned} \quad (2)$$

Здесь нелинейная поляризация среды третьего порядка по полю имеет вид [18]

$$\begin{aligned} P^{NL}(t, z) = \int_0^\infty \int_0^\infty \int_0^\infty \chi(t_1, t_2, t_3, z) E_1(t - t_1, z) \times \\ \times E_2(t - t_2, z) E_3(t - t_3, z) dt_2 dt_3 dt_1, \end{aligned} \quad (3)$$

где $\chi(t_1, t_2, t_3, z)$ — нелинейная кубическая восприимчивость среды, ответственная за процесс КАРС, во временном представлении.

В случае когда комбинация частот $\omega_1 - \omega_2$ настроена в резонанс с некоторым комбинационно-активным переходом исследуемой среды, нелинейная кубическая восприимчивость может быть записана в виде

$$\chi(t_1, t_2, t_3, z) = \chi(t_1, z) \delta(t_1 - t_2) \delta(t_3). \quad (4)$$

В спектральном представлении нелинейная восприимчивость (4) зависит только от комбинации частот $\omega_1 - \omega_2$. Подставляя (4) в (3) и проводя интегрирование по t_1 и t_3 , получаем следующее выражение для нелинейной поляризации:

$$\begin{aligned} P^{NL}(t, z) = \\ = \int_0^\infty \chi(t_1, z) E_1(t - t_1, z) E_2(t - t_1, z) dt_1 E_3(t, z). \end{aligned} \quad (5)$$

Выражение (5) совместно с уравнением (2) описывает процесс четырехволнового взаимодействия в условиях комбинационного резонанса для плоских волн накачки без учета эффектов дисперсионного распывания.

Рассмотрим генерацию сигнала КАРС в условиях взаимодействия трех лазерных импульсов, один

из которых (для определенности — импульс с частотой ω_2) имеет линейную частотную модуляцию, а два других — спектрально ограничены. Будем предполагать, что ФМ-импульс задержан по времени относительно спектрально ограниченных импульсов, а разность частот импульсов накачки $\omega_1 - \omega_2$ сканируется в области резонанса с некоторым комбинационно-активным переходом в исследуемой нелинейной среде (рис. 1). Представим амплитуды световых импульсов, используемых для возбуждения и зондирования среды, в следующем виде:

$$A_1(\theta, z) = B_1(\theta), \quad (6)$$

$$A_2(\theta, z) = B_2(\theta) \exp[i\alpha(\theta - \tau)^2], \quad (7)$$

$$A_3(\theta, z) = B_3(\theta), \quad (8)$$

где $\theta = t - z/v_j$ — бегущее время, B_j — огибающая j -го импульса накачки, не содержащая фазовой модуляции ($j = 1, 2, 3$), α — скорость изменения частоты (чирп), τ — время задержки между первым и вторым импульсами.

Используя выражения (6)–(8) и переходя к бегущей системе координат θ, z , получим следующее выражение для амплитуды КАРС-сигнала:

$$\begin{aligned} \frac{\partial A_4(\theta, \tau, z)}{\partial z} = \frac{2i\pi\omega_4^2}{k_4 c^2} \times \\ \times \int_0^\infty \chi(t_1, z) B_1(\theta - t_1) B_2^*(\theta - \tau - t_1) \times \\ \times \exp[i(\Delta\omega t_1 - \alpha(\theta - \tau - t_1)^2 - \Delta k z)] dt_1 B_3(\theta), \end{aligned} \quad (9)$$

где $\Delta k = k_4 - k_1 + k_2 - k_3$ — фазовая расстройка, $\Delta\omega = \omega_1 - \omega_2$. Центральная частота сигнала КАРС при этом равна

$$\omega_4 = \omega_1 - \omega_2 + \omega_3.$$

Для случая пространственно-однородной среды, $\chi(t_1, z) = \chi(t_1)$, и малых изменений огибающих импульсов накачки на характерных временах затухания нелинейной поляризации T , $t_1 \leq T$, имеем

$$B_{1,3}(\theta - t_1) \approx B_{1,3}(\theta), \quad B_2(\theta - \tau - t_1) \approx B_2(\theta - \tau).$$

Интегрирование уравнения (9) при этом дает

$$\begin{aligned} A_4(\theta, \tau, z) = \frac{2i\pi\omega_4^2}{k_4 c^2} \times \\ \times K(\Delta\omega + 2\alpha(\theta - \tau), \alpha) B_1(\theta) B_2^*(\theta - \tau) B_3(\theta) \times \\ \times \exp[-i\alpha(\theta - \tau)^2] \frac{\exp[-i\Delta k z] - 1}{-i\Delta k}, \end{aligned} \quad (10)$$

где

$$K(\omega, \alpha) = \int_0^{\infty} \chi(t_1) \exp[i\omega t_1] \exp[-i\alpha t_1^2] dt_1. \quad (11)$$

При выполнении условия $\alpha T^2 \ll 1$ имеем

$$K(\omega, \alpha) \approx K(\omega, 0) \approx \chi'(\omega). \quad (12)$$

Таким образом, регистрация формы импульса КАРС (т.е. измерение амплитуды импульса сигнала КАРС как функции бегущего времени θ или времени задержки τ) в этом режиме позволяет определить спектр комбинационно-резонансной нелинейной восприимчивости среды третьего порядка. В частности, зависимости от времени задержки τ энергии сигнала КАРС и спектра сигнала КАРС в условиях фазового синхронизма ($\Delta k = 0$) определяются следующими выражениями:

$$W_4(\tau) \propto \left| \int_{-\infty}^{\infty} K(\Delta\omega + 2\alpha(\theta - \tau)) \times \right. \\ \left. \times B_1(\theta) B_2^*(\theta - \tau) B_3(\theta) [-i\alpha(\theta - \tau)^2] l d\theta \right|^2, \quad (13)$$

$$S_4(\Delta\omega, \tau) = \left| \int A_4(\theta, \tau, z) \exp(i\Delta\omega\theta) d\theta \right|^2, \quad (14)$$

где l — длина области нелинейного взаимодействия.

В стандартной схеме двухчастотной КАРС-спектроскопии вместо пары импульсов с огибающими $B_1(\theta)$ и $B_3(\theta)$ используется один лазерный импульс:

$$B_1(\theta) = B_3(\theta), \quad k_1 = k_3, \quad \omega_1 = \omega_3,$$

$$\Delta k = k_4 - 2k_1 + k_2.$$

Пусть длительность спектрально ограниченного импульса τ_1 много меньше длительности ФМ-импульса τ_2 :

$$\tau_1 \ll \tau_2.$$

Спектральное разрешение КАРС-спектроскопии с одним chirпированным импульсом при этом, как следует из выражений (10), (13), (14), определяется длительностью короткого, спектрально ограниченного импульса с огибающей $B_1(\theta)$ и параметром chirпа α ФМ-импульса. В предельном случае (рис. 1) спектрально ограниченного импульса, имеющего вид δ -функции,

$$B_1(\theta) = B_1\delta(\theta),$$

и ФМ-импульса с постоянной на рассматриваемых масштабах времени амплитудой, $B_2(\theta) = B_2 = \text{const}$, выражения (13), (14) для энергии и спектра сигнала КАРС приводят к следующим формулам:

$$W_4(\tau) \propto |K(\Delta\omega - 2\alpha\tau) B_1^2 B_2^* l|^2, \quad (15)$$

$$S_4(\Delta\omega, \tau) \propto |K(\Delta\omega - 2\alpha\tau)|^2 |B_1^2 B_2|^2 l^2. \quad (16)$$

Измерение спектра либо энергии сигнала КАРС как функций времени задержки τ , таким образом, позволяет получить спектр нелинейно-оптической восприимчивости. Конечная длительность короткого, спектрально ограниченного импульса ограничивает спектральное разрешение этого метода измерений на уровне $\delta\omega \approx \alpha\tau_1$ и приводит к неоднородным по спектру искажениям фазы сигнала. В разд. 4 настоящей статьи будет описана экспериментальная реализация предложенной выше кросс-корреляционной техники КАРС-спектроскопии, основанная на использовании спектрально ограниченных фемтосекундных импульсов хром-форстеритового лазера и ФМ-импульсов, формируемых в результате нелинейно-оптического преобразования фемтосекундных импульсов хром-форстеритового лазера в микроструктурированном волокне.

3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ТЕХНИКА

Лазерная система, использовавшаяся в наших экспериментах (рис. 2), состояла из задающего лазера на кристалле Cr^{4+} : форстерит, стретчера, узла оптической развязки, регенеративного усилителя, компрессора и кристалла для удвоения частоты. Для накачки задающего лазера использовался волоконный иттербиевый лазер. Задающий лазер генерировал импульсы с характерной длительностью 30–50 фс и частотой повторения 120 МГц. Центральная длина волны этих импульсов составляла 1270 нм при спектральной ширине 26 нм. Средняя мощность излучения лазера составляла около 180 мВт. Фемтосекундные импульсы длительностью 30–50 фс с горизонтальной поляризацией поступали на вход решеточного стретчера, увеличивавшего их длительность до 700 пс. Усиление импульсов производилось при помощи регенеративного усилителя, накачиваемого излучением Nd: YLF-лазера. Усиленные импульсы с энергией до 100 мкДж поступали на решеточный компрессор, где происходило сжатие импульсов до длительности 75–150 фс с потерей примерно половины энергии. Удвоение частоты излучения хром-форстеритового лазера осуществлялось с помощью кристалла LBO.

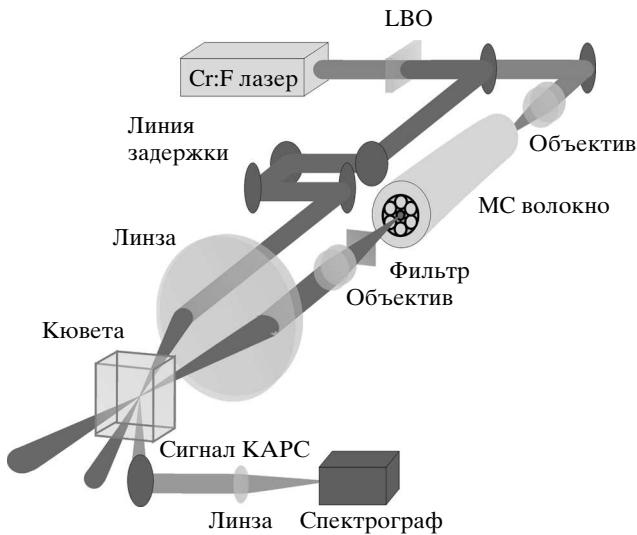


Рис. 2. Схема экспериментальной установки для КАРС-спектроскопии с использованием ФМ-импульсов, генерируемых в микроструктурированном волокне

Микроструктурированные волокна изготавливались из стекла и плавленного кварца по технологии, подробно описанной в работах [33–38]. Изображения поперечных сечений микроструктурированных волокон, использовавшихся в наших экспериментах, представлены на вставках к рис. 3а, 4. Стекловолоконные волокна конструировались таким образом, чтобы обеспечить оптимальный профиль дисперсии волноводных мод [17, 39–41], позволяющий достичь максимальных эффективностей преобразования энергии излучения хром-форстеритового лазера в антистоксов сигнал с длиной волны 650–730 нм.

Распространение фемтосекундных импульсов через микроструктурированные волокна сопровождалось нелинейно-оптическими взаимодействиями, приводившими к возникновению новых частотных компонент, регистрировавшихся в спектре излучения на выходе волокна. Параметрические процессы четырехволнового взаимодействия вида

$$2\omega_p = \omega_s + \omega_a$$

(ω_p — частота излучения накачки, ω_s и ω_a — частоты стоксова и антистоксова сигналов) в центральной волноводной жиле кварцевого волокна (вставка на рис. 3а) приводили к генерации интенсивного антистоксова излучения в области 530 нм со спектральной шириной около 35 нм (рис. 3а). Наблюдалась также эффективная генерация третьей гармоники излучения накачки с амплитудой сигнала, сравни-

мой с амплитудой антистоксовой компоненты (вставка на рис. 3б). Нелинейно-оптическая трансформация спектра импульсов хром-форстеритового лазера, передаваемых вдоль субмикронных кварцевых каналов различного диаметра, приводила к генерации новых частотных компонент в широкой спектральной области, включая область частот, превышающих частоту третьей гармоники излучения накачки (рис. 3б).

Длина волны антистоксова излучения, генерируемого в боковых субмикронных каналах волокна, определяется дисперсией волноводных мод, участвующих в нелинейно-оптическом процессе [18, 42]. Поперечный размер канала является ключевым параметром, определяющим дисперсионные свойства волноводных мод и, следовательно, длину волны антистоксова излучения. Субмикронные каналы различного диаметра, микроструктурно интегрированные в используемом волокне, таким образом, позволяют преобразовывать частоту фемтосекундных импульсов с генерацией перестраиваемого по длине волны антистоксова излучения. Для целей КАРС-спектроскопии комбинационно-активных мод молекул толуола (см. разд. 4) использовалось антистоксово излучение, генерируемое в области 650–730 нм в сердцевине стеклянного волокна (вставка на рис. 4). Эффективность генерации антистоксова излучения в этой спектральной области при использовании импульсов накачки длительностью около 100 фс с энергией 250 нДж в наших экспериментах составляла примерно 15%. Перестройка центральной частоты антистоксова сигнала производилась путем изменения интенсивности излучения накачки (рис. 4).

4. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ ЭКСПЕРИМЕНТОВ

Для измерения длительности и чирпа антистоксова сигнала, генерируемого в микроструктурированном волокне, использовалась кросс-корреляционная методика, аналогичная технике XFROG (кросс-корреляционное оптическое стробирование с разрешением по частоте) [43]. Данная методика основана на измерении спектра сигнала суммарной частоты, генерируемого путем смешения в кристалле ВВО антистоксова излучения из микроструктурированного волокна и импульса второй гармоники хром-форстеритового лазера, для различных значений времени задержки τ между импульсом второй гармоники E_{SH} и антистоксовым сигналом E_a . Измеряемая при этом спектрограмма

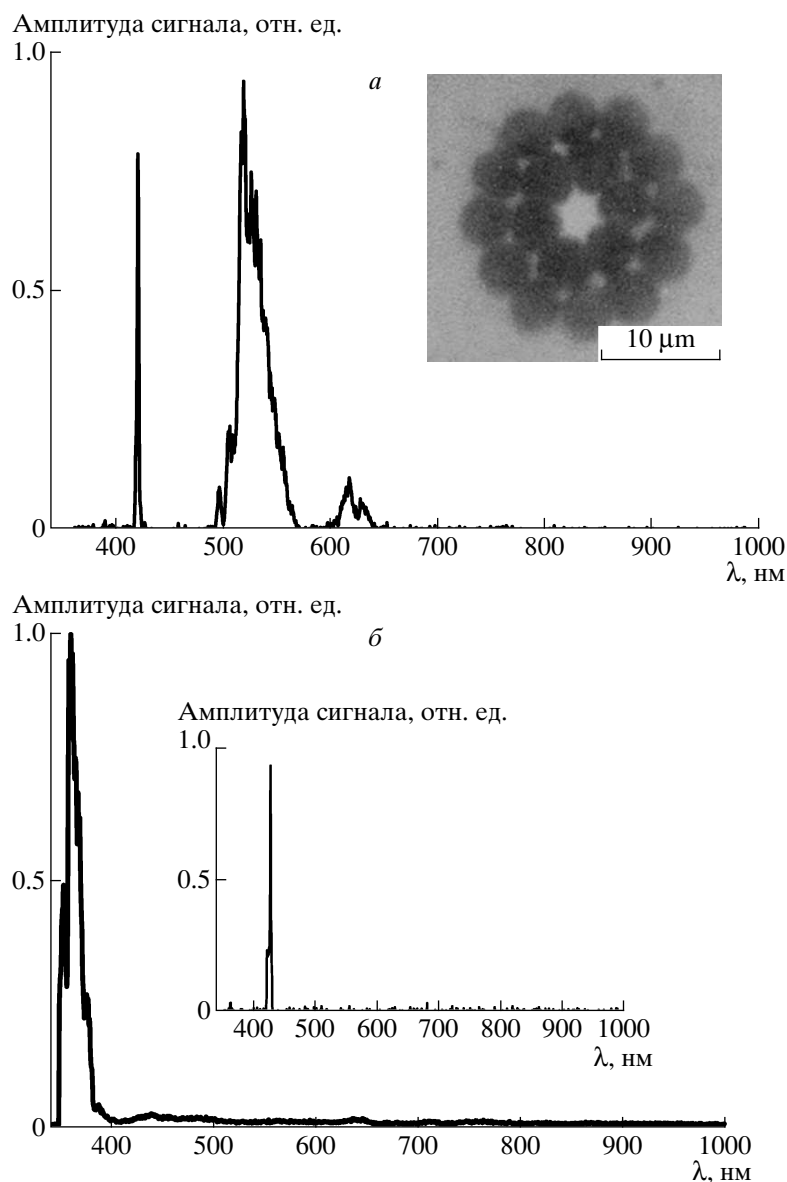


Рис. 3. *a* — Генерация антистоксова излучения и третьей гармоники в центральной жиле кварцевого микроструктурированного волокна диаметром 3 мкм. На вставке показано поперечное сечение микроструктурированного волокна. *б* — Генерация высокочастотной спектральной компоненты с длиной волны около 370 нм в субмикронном канале микроструктурированного волокна. Длина волокна 7 см. Энергия вводимого в волокно импульса около 50 нДж. На вставке показан спектр излучения на частоте третьей гармоники, генерируемого в субмикронных каналах микроструктурированного волокна

$$S(\omega, \tau) \propto \left| \int_{-\infty}^{\infty} E_a(t) E_{SH}(t - \tau) \exp(-i\omega t) dt \right|^2$$

позволяет получить информацию о форме огибающей, длительности, спектре и чирпе импульса антистоксова излучения, генерируемого в микроструктурированном волокне. Результаты измерений, выпол-

ненных с использованием импульсов излучения второй гармоники с центральной длиной волны около 620 нм длительностью около 90 фс, представлены на рис. 5. Как следует из приведенных на рисунке экспериментальных данных, импульс антистоксова излучения имеет длительность около 1 пс и характеризуется гладкой временной огибающей и наличием

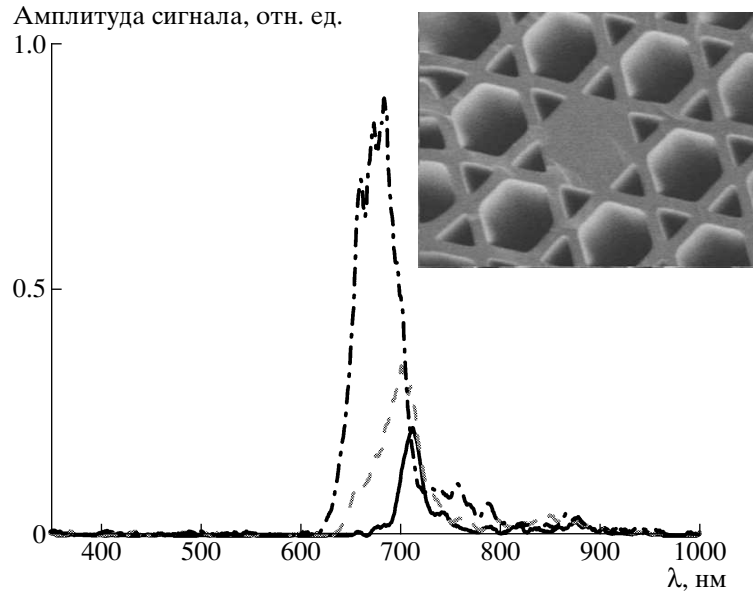


Рис. 4. Спектр антистоксова сигнала, генерируемого в стеклянном микроструктурированном волокне импульсами излучения хром-форстеритового лазера с длиной волны 1.24 мкм. Энергия вводимого в волокно излучения составляет 200 нДж (сплошная линия), 250 нДж (штриховая линия), 275 нДж (штрих-пунктирная линия). На вставке показано поперечное сечение микроструктурированного волокна

положительного чирпа.

Различные частотные компоненты импульсов антистоксова излучения, формируемых в микроструктурированном волокне, характеризуются различными групповыми задержками. Мгновенная частота ω и время задержки τ , как видно из результатов измерений, представленных на рис. 5, находятся во взаимно однозначном соответствии. Подобное взаимно однозначное отображение $\tau - \omega$ позволяет проводить спектральные измерения путем изменения времени задержки между импульсами накачки [28–31]. В наших экспериментах антистоксов сигнал, генерируемый в микроструктурированном волокне, использовался в качестве одного из импульсов накачки в схеме спектроскопии КАРС.

Вторая гармоника излучения хром-форстеритового лазера с частотой ω_1 и антистоксов сигнал из микроструктурированного волокна (частота ω_2) возбуждали комбинационно-активные моды молекул толуола в растворе. Рассеянное на сфазированных колебаниях среды излучение второй гармоники хром-форстеритового лазера приводило к возникновению сигнала КАРС на частоте

$$\omega_{CARS} = 2\omega_1 - \omega_2.$$

Структура волокна оптимизировалась для эффективной генерации антистоксова сигнала в частот-

ном диапазоне, позволяющем зондирование комбинационно-активных мод молекул толуола в области $1000-1200 \text{ см}^{-1}$. Световые пучки накачки с частотами ω_1 и ω_2 фокусировались в кювету с раствором толуола под небольшим углом (рис. 2). Сигнал КАРС генерировался в неколлинеарной геометрии в области взаимодействия пучков накачки в кювете с толуолом в виде узконаправленного пучка, пространственно разделенного с излучениями накачки. Этот сигнал отделялся от пучков накачки и регистрировался с помощью спектрометра.

На рис. 6 представлены спектры сигнала КАРС, измеренные для различных значений времени задержки между импульсами второй гармоники излучения хром-форстеритового лазера и импульсами антистоксова излучения, формируемыми в микроструктурированном волокне. Изменение времени задержки τ соответствует изменению мгновенной разности частот $\omega_1 - \omega_2$, что позволяет возбуждать различные комбинационные моды молекул толуола. Так как мгновенная частота в положительном чирпированном импульсе антистоксова излучения увеличивается от его переднего фронта к заднему (см. рис. 5), при малых τ , соответствующих заднему фронту импульса антистоксова излучения, возбуждаются низкочастотные комбинационные моды ($\tau \approx -200$ фс на рис. 6). В частности, уда-

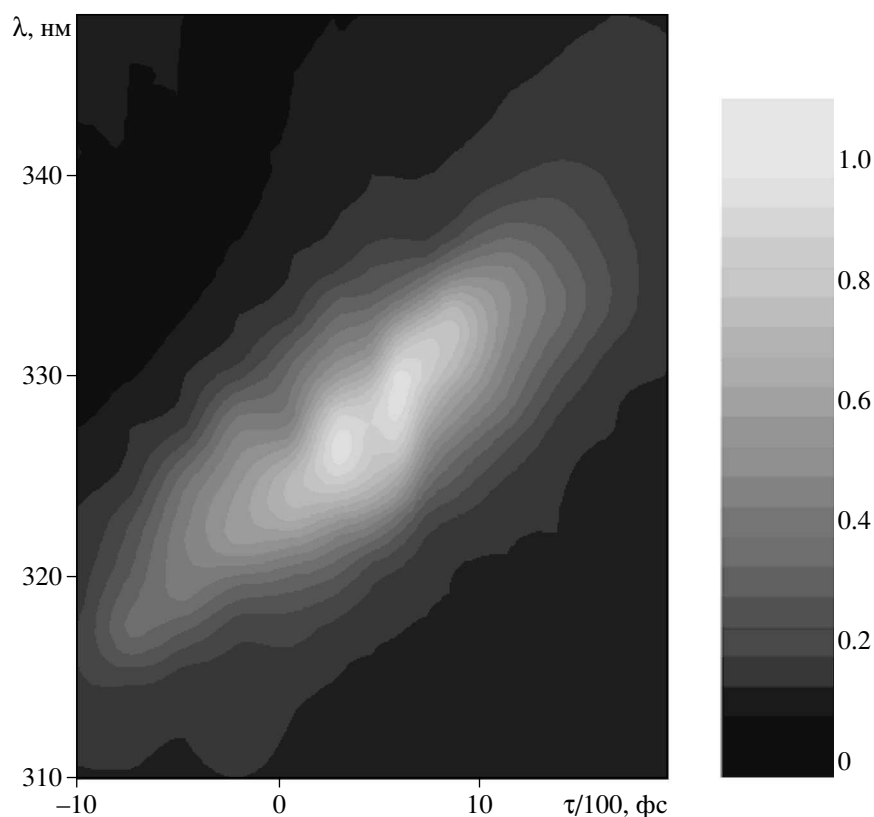


Рис. 5. Зависимость интенсивности сигнала суммарной частоты, генерируемого в кристалле ВВО излучением второй гармоники хром-форстеритового лазера и антистоксовым излучением из микроструктурированного волокна, от длины волны и времени задержки τ между импульсом второй гармоники и антистоксовым сигналом

ется разрешить комбинационно-активную моду молекулы толуола с частотой 1004 см^{-1} (длина волны сигнала КАРС $\lambda_{\text{CAFS}} \approx 584 \text{ нм}$). Мгновенная длина волны chirпированного антистоксова импульса, соответствующего возбуждению этой комбинационно-активной моды, составляет $\tau_2 \approx 661 \text{ нм}$. При увеличении времени задержки мгновенная разность частот $\omega_1 - \omega_2$ растет, что приводит к возбуждению комбинационных мод более высоких частот ($\tau \approx 100\text{--}200 \text{ фс}$ на рис. 6).

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Выполненные эксперименты показывают, что микроструктурированные волокна со специальным профилем дисперсии позволяют создать высокоэффективные источники перестраиваемых по частоте коротких световых импульсов для нелинейной спектроскопии. Микроструктурированные волокна позволяют формировать короткие импульсы антистоксова излучения с гладкой временной огибающей и регулируемым chirпом при использовании нано-

и субнаноджоулевых фемтосекундных импульсов накачки. Использование микроструктурированных волокон позволяет, таким образом, радикально снизить требования к энергии импульсов накачки в перестраиваемых источниках для нелинейной спектроскопии и квантового управления по сравнению с лазерами на красителях и оптическими параметрическими усилителями. Лазеры на органических красителях, как правило, используются в КАРС-экспериментах для получения нано- и пикосекундных импульсов с перестраиваемой длиной волны. Для накачки подобных лазеров обычно требуются импульсы с характерной энергией порядка нескольких миллиджоулей. Аналогичные требования предъявляются к импульсам, используемым для накачки наносекундных параметрических генераторов света. Современные фемтосекундные оптические параметрические усилители, используемые в экспериментах по КАРС-спектроскопии, накачиваются лазерными импульсами с энергиями порядка десятков-сотен микроджоулей. Микро-

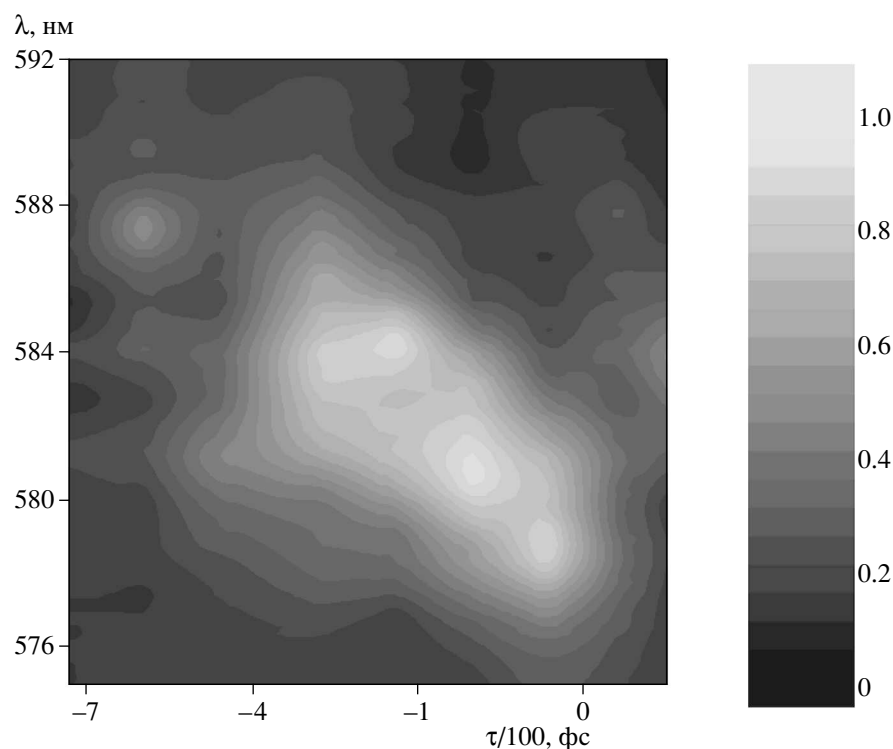


Рис. 6. Зависимость интенсивности сигнала КАРС из раствора толуола от длины волны и времени задержки τ между импульсом второй гармоники и антистоксовым сигналом

структурированные волокна позволяют достичь эффективной генерации коротких световых импульсов перестраиваемого по частоте антистоксова излучения при рекордно низких, наноджоулевых энергиях импульсов накачки. Представленные эксперименты показывают возможность использования антистоксовых импульсов, формируемых в микроструктурированных волокнах, для время-разрешенной КАРС-спектроскопии.

Авторы признательны В. И. Белоглазову, Н. Б. Скибиной, Ю. Н. Кондратьеву, В. С. Шевандину, К. В. Дукельскому, А. В. Хохлову за изготовление микроструктурированных волокон.

Работа выполнена при финансовой поддержке гранта № МД-42.2003.02 Президента Российской Федерации, грантов РФФИ № 02-02-17098 и № 03-02-16929, а также грантов CRDF (№ RP2-2558) и European Research Office of the US Army (контракт № 62558-03-M- 0033).

ЛИТЕРАТУРА

1. С. А. Ахманов, Н. И. Коротеев, *Методы нелинейной оптики в спектроскопии рассеяния света*, Наука, Москва (1981).
2. G. L. Eesley, *Coherent Raman Spectroscopy*, Pergamon, Oxford (1981).
3. А. М. Желтиков, Н. И. Коротеев, УФН **169**, 385 (1999).
4. A. Zumbusch, G. R. Holtom, and X. Sunney Xie, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 4142 (1999).
5. D. A. Akimov, S. O. Konorov, D. A. Sidorov-Biryukov, A. N. Naumov, A. B. Fedotov, and A. M. Zheltikov, *Proc. SPIE* **4749**, 101 (2002).
6. *Femtosecond Coherent Raman Spectroscopy, Special Issue of J. Raman Spectr.* **31**, № 1/2 (2000), ed. by W. Kiefer.
7. N. Dudovich, D. Oron, and Y. Silberberg, *Nature* **418**, 512 (2002).
8. D. von der Linde, A. Lauberau, and W. Kaiser, *Phys. Rev. Lett.* **26**, 954 (1971).
9. *Nonlinear Raman Spectroscopy, Special Issue of J. Raman Spectr.*, **33**, № 11/12 (2002), ed. by P. Radi and A. M. Zheltikov.
10. *Nonlinear Raman Spectroscopy, Special Issue of J. Raman Spectr.*, **34**, № 11/12 (2003), ed. by P. Radi and A. M. Zheltikov.

11. J. C. Knight, T. A. Birks, P. St. J. Russell, and D. M. Atkin, *Opt. Lett.* **21**, 1547 (1996).
12. J. C. Knight, J. Broeng, T. A. Birks, and P. St. J. Russell, *Science* **282**, 1476 (1998).
13. P. St. J. Russell, *Science* **299**, 358 (2003).
14. А. М. Желтиков, *УФН* **170**, 1203 (2000).
15. *Nonlinear Optics of Photonic Crystals, Feature Issue of J. Opt. Soc. Amer. B* **19**, №9 (2002), ed. by C. M. Bowden and A. M. Zheltikov.
16. *Supercontinuum Generation, Special Issue of Appl. Phys. B* **77**, №2/3 (2003), ed. by A. M. Zheltikov.
17. D. A. Akimov, E. E. Serebryannikov, A. M. Zheltikov, M. Schmitt, R. Maksimenka, W. Kiefer, K. V. Dukel'skii, V. S. Shevandin, and Yu. N. Kondrat'ev, *Opt. Lett.* **28**, 1948 (2003).
18. S. O. Konorov and A. M. Zheltikov, *Opt. Express* **11**, 2440 (2003).
19. А. М. Желтиков, *УФН* **174**, 73 (2004).
20. E. T. J. Nibbering, D. A. Wiersma, and K. Duppen, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 514 (1992).
21. B. Kohler, V. V. Yakovlev, J. Che, J. L. Krause, M. Messina, K. R. Wilson, N. Schwentner, R. M. Whittnell, and Y. J. Yan, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 3360 (1995).
22. V. V. Lozovoy, S. A. Antipin, F. E. Gostev, A. A. Titov, D. G. Tovbin, O. M. Sarkisov, A. S. Vetchinkin, and S. Ya. Umanskii, *Chem. Phys. Lett.* **284**, 221 (1998).
23. T. Lang and M. Motzkus, *J. Opt. Soc. Amer. B* **19**, 340 (2002).
24. C. J. Bardeen, Q. Wang, and C. V. Shank, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 3410 (1995).
25. A. Assion, T. Baumert, M. Bergt, T. Brixner, B. Kiefer, V. Seyfried, M. Strehle, and G. Gerber, *Science* **282**, 919 (1998).
26. J. L. Herek, W. Wohlleben, R. J. Cogdell, D. Zeidler, and M. Motzkus, *Nature* **417**, 533 (2002).
27. D. Zeidler, S. Frey, W. Wohlleben, M. Motzkus, F. Busch, T. Chen, W. Kiefer, and A. Materny, *J. Chem. Phys.* **116**, 5231 (2002).
28. A. M. Zheltikov and A. N. Naumov, *Quant. Electr.* **30**, 606 (2000).
29. A. M. Zheltikov and A. N. Naumov, *Laser Phys.* **10**, 887 (2000).
30. A. N. Naumov and A. M. Zheltikov, *J. Raman Spectr.* **32**, 960 (2001).
31. A. N. Naumov and A. M. Zheltikov, *Appl. Phys. B* **77**, 369 (2003).
32. Y. R. Shen, *The Principles of Nonlinear Optics*, Wiley, New York (1984).
33. М. В. Алфимов, А. М. Желтиков, А. А. Иванов, В. И. Белоглазов, Б. А. Кириллов, С. А. Магницкий, А. В. Тарасишин, А. Б. Федотов, Л. А. Мельников, Н. Б. Скибина, *Письма ЖЭТФ* **71**, 714 (2000).
34. A. N. Naumov, A. B. Fedotov, A. M. Zheltikov, V. V. Yakovlev, L. A. Mel'nikov, V. I. Beloglazov, N. B. Skibina, and A. V. Shcherbakov, *J. Opt. Soc. Amer. B* **19**, 2183 (2002).
35. A. B. Fedotov, Ping Zhou, A. P. Tarasevitch, K. V. Dukel'skii, Yu. N. Kondrat'ev, V. S. Shevandin, V. B. Smirnov, D. von der Linde, and A. M. Zheltikov, *J. Raman Spectr.* **33**, 888 (2002).
36. D. A. Akimov, M. Schmitt, R. Maksimenka, W. Kiefer, K. V. Dukel'skii, V. S. Shevandin, Yu. N. Kondrat'ev, A. V. Khokhlov, and A. M. Zheltikov, *Appl. Phys. B* **77**, 299 (2003).
37. A. M. Zheltikov, Ping Zhou, V. V. Temnov, Yu. N. Kondrat'ev, S. N. Bagayev, V. S. Shevandin, K. V. Dukel'skii, A. V. Khokhlov, V. B. Smirnov, A. P. Tarasevitch, and D. von der Linde, *Quant. Electr.* **32**, 542 (2002).
38. С. О. Коноров, О. А. Колеватова, А. Б. Федотов, Е. А. Серебрянников, Д. А. Сидоров-Бирюков, Ю. М. Михайлова, А. Н. Наумов, В. И. Белоглазов, Н. Б. Скибина, Л. А. Мельников, А. В. Щербаков, А. М. Желтиков, *ЖЭТФ* **123**, 975 (2003).
39. S. Coen, A. Hing Lun Chau, R. Leonhardt, J. D. Harvey, J. C. Knight, W. J. Wadsworth, and P. St. J. Russell, *J. Opt. Soc. Amer. B* **19**, 753 (2002).
40. J. M. Dudley, L. Provino, N. Grossard, H. Maillotte, R. S. Windeler, B. J. Eggleton, and S. Coen, *J. Opt. Soc. Amer. B* **19**, 765 (2002).
41. A. B. Fedotov, I. Bugar, D. A. Sidorov-Biryukov, E. E. Serebryannikov, D. Chorvat Jr., M. Scalora, D. Chorvat, and A. M. Zheltikov, *Appl. Phys. B* **77**, 313 (2003).
42. S. O. Konorov, A. B. Fedotov, W. Boutu, E. E. Serebryannikov, D. A. Sidorov-Biryukov, Yu. N. Kondrat'ev, V. S. Shevandin, K. V. Dukelskii, A. V. Khokhlov, and A. M. Zheltikov, *Laser Phys.* **14**, 100 (2004).
43. J. M. Dudley, X. Gu, L. Xu, M. Kimmel, E. Zeek, P. O'Shea, R. Trebino, S. Coen, and R. S. Windeler, *Opt. Express* **10**, 1215 (2002).