

Фемтосекундная спектроскопия когерентного антистоксова рассеяния света с использованием перестраиваемого излучения, генерируемого в микроструктурированных волокнах

Д.А.Акимов, С.О.Коноров, М.В.Алфимов, А.А.Иванов, В.И.Белоглазов, Н.Б.Скибина, А.Б.Федотов, Д.А.Сидоров-Бирюков, А.Н.Петров, А.М.Жёлтиков

Показано, что микроструктурированные волокна со специальным профилем дисперсии позволяют создать высокоэффективные источники перестраиваемых по частоте сверхкоротких импульсов с гладкой огибающей и регулируемым chirпом для спектроскопии когерентного антистоксова рассеяния света с высоким временным разрешением. Изменены длительность и групповая задержка 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.

Ключевые слова: микроструктурированные волокна, фотонные кристаллы, нелинейная оптика, когерентное антистоксово рассеяние света.

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 горения, 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 (чувствительность, временное, пространственное и спектральное разрешение) существенно расширяются при использовании поляризационного [1, 3] и фазового [7] методов управления процессами четырехфотонного рассеяния.

Идейное и техническое развитие методики КАРС во многом определяются совершенствованием источников перестраиваемого излучения. Ранние эксперименты по КАРС-спектроскопии выполнялись с использованием

стоксова сигнала, получаемого в результате вынужденного комбинационного рассеяния в кювете с комбинационно-активным газом [8]. Появление перестраиваемых лазерных источников открыло новый этап 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].

В настоящей работе сообщается о разработке и создании источника перестраиваемых по длине волны фемтосекундных импульсов на основе антистоксова преобразования частоты сверхкоротких импульсов накачки в микроструктурированных волокнах [10]. 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 [11–13]. Представлены результаты исследования спектра, chirпа и формы импульсов антистоксова излучения, генерируемого в микроструктурированных волокнах. Перестраиваемые по частоте фемтосекундные импульсы, формируемые в микроструктурированных волокнах, будут использованы для получения сигнала КАРС из раствора толуола.

2. Экспериментальная техника

Лазерная система, использовавшаяся в наших экспериментах, состояла из задающего лазера на кристалле Cr^{4+} :форстерита, стретчера, узла оптической развязки, регенеративного усилителя, компрессора и кристалла для удвоения частоты. Для накачки задающего лазера использовался волоконный иттербиевый лазер PUL-

Д.А.Акимов, С.О.Коноров, А.Б.Федотов. Московский государственный университет им. М.В.Ломоносова, физический факультет, Россия, 119992 Москва, Воробьевы горы; e-mail: konorovst@rambler.ru
М.В.Алфимов, А.А.Иванов, А.Н.Петров. Центр фотохимии РАН, Россия, 117421 Москва, ул. Новаторов, 7а

В.И.Белоглазов, Н.Б.Скибина. Институт технологии и обработки стеклянных структур, Россия, 410044 Саратов, просп. Строителей, 1
А.М.Жёлтиков. Московский государственный университет им. М.В.Ломоносова, физический факультет, Россия, 119992 Москва, Воробьевы горы; Международный учебно-научный лазерный центр МГУ им. М.В.Ломоносова, Россия, 119992 Москва, Воробьевы горы; e-mail: zheltikov@top.phys.msu.su

Поступила в редакцию 17 ноября 2003 г., после доработки – 17 февраля 2004 г.

10LP. Задающий лазер генерировал импульсы с характерной длительностью 30–50 фс, длиной волны 1.24 мкм и частотой повторения 120 МГц. Средняя мощность излучения лазера составляла около 180 мВт. Фемтосекундные импульсы длительностью 30–50 фс расширялись в стретчере на дифракционных решетках и усиливались 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.

Микроструктурированные волокна изготовливались по технологии, подробно описанной в работе [14]. Изображение поперечного сечения микроструктурированного волокна, использовавшегося в наших экспериментах, показано на вставке к рис. 1. Микроструктурированная оболочка волокна характеризовалась высоким содержанием воздуха и обеспечивала высокую степень локализации светового поля в сердцевине волокна. Эффективный размер основной волноводной моды в микроструктурированном волокне, использовавшемся в описываемых ниже экспериментах, составлял 4 мкм. Волокно конструировалось таким образом, чтобы обеспечить оптимальный профиль дисперсии волноводных мод [12, 15] (см. вставку на рис. 1), позволяющий достичь максимальных эффективностей преобразования энергии основного излучения хром-форстеритового лазера в антистоксов сигнал с длиной волны 650–730 нм.

3. Обсуждение экспериментальных результатов

Для возбуждения волноводных мод в центральной жиле микроструктурированного волокна излучение хром-форстеритового лазера фокусировалось (рис. 2) с помощью объектива $10\times$. Распространение импульсов накачки через микроструктурированное волокно сопровождалось нелинейно-оптическими взаимодействиями, в резуль-

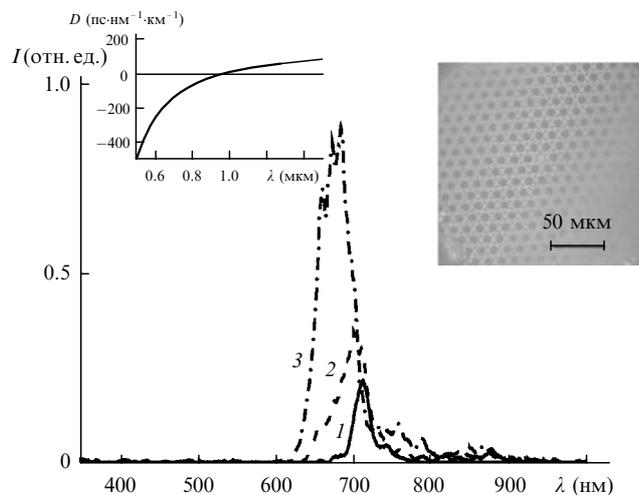


Рис. 1. Спектр антистоксова сигнала, генерируемого в микроструктурированном волокне импульсами излучения хром-форстеритового лазера с $\lambda = 1.24$ мкм при энергии излучения, вводимого в волокно, 170 (1), 220, (2) и 270 нДж (3). На вставках – дисперсия групповой скорости $D(\lambda)$ для основной моды и изображение поперечного сечения микроструктурированного волокна.

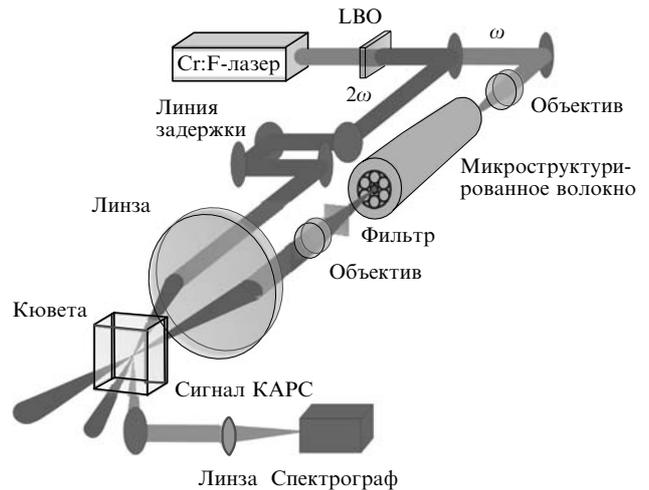


Рис. 2. Схема фемтосекундной КАРС-спектроскопии с использованием излучения, генерируемого в микроструктурированном волокне.

тате которых возникали новые частотные компоненты, регистрировавшиеся 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 соответственно) в центральной волноводной жиле приводили к генерации интенсивного антистоксова излучения в области 650–730 нм (см. рис. 1). Анализ фазового согласования для подобных процессов в микроструктурированных волокнах выполнен в работах [15, 16]. Перестройка центральной частоты антистоксова сигнала производилась путем изменения интенсивности излучения накачки.

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) [17]. 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, при различных временах задержки τ между импульсом второй гармоники E_{sh} и антистоксовым сигналом E_a . Измеряемая при этом спектрограмма

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

позволяет получить информацию о форме огибающей, длительности, спектре и чирпе импульса антистоксова излучения, генерируемого в микроструктурированном волокне. Результаты измерений, выполненных с использованием импульсов излучения второй гармоники с центральной длиной волны около 620 нм и длительностью около 90 фс, представлены на рис. 3. Как следует из приведенных на рисунке экспериментальных данных, импульс антистоксова излучения имеет длительность около 1 пс и характеризуется гладкой временной огибающей, а также наличием положительного чирпа.

Различные частотные компоненты импульсов антистоксова излучения, формируемых в микроструктурированном волокне, характеризуются разными групповыми

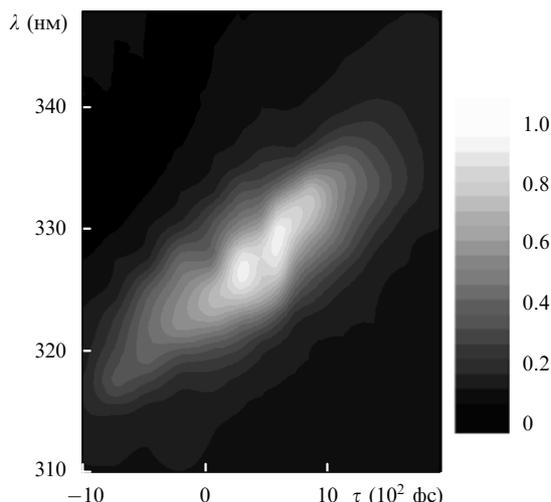


Рис.3. Зависимость интенсивности сигнала суммарной частоты, генерируемого в кристалле ВВО излучением второй гармоники хром-форстеритового лазера и антистоксовым излучением из микроструктурированного волокна, от длины волны и времени задержки τ между импульсами второй гармоники и антистоксова сигнала.

задержками. Мгновенная частота ω и время задержки τ , как видно из результатов измерений, представленных на рис.3, находятся во взаимно однозначном соответствии. Подобное взаимно однозначное отображение $\tau \leftrightarrow \omega$ позволяет производить спектральные измерения путем изменения времени задержки между импульсами накачки [18]. 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 с частотой 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 $\omega_{\text{CARS}} = 2\omega_1 - \omega_2$. Структура волокна оптимизировалась для эффективной генерации антистоксова сигнала в частотном диапазоне, позволяющем осуществлять 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 (см. 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.4 представлены спектры сигнала КАРС, измеренные для различных времен задержки между импульсами второй гармоники излучения хром-форстеритового лазера и 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 положительно chirпированном импульсе антистоксова излучения увеличивается от его фронта к спаду (см. рис.3), при малых τ , соответствующих заднему

фронту импульса антистоксова излучения, возбуждаются низкочастотные комбинационные моды ($\tau \approx -200 \text{ фс}$, рис.4). В частности удается разрешить комбинационно-активную моду молекулы толуола с частотой 1004 см^{-1} (длина волны сигнала КАРС $\lambda_{\text{CARS}} \approx 584 \text{ нм}$). Мгновенная длина волны λ_2 chirпированного антистоксова импульса, соответствующего возбуждению этой комбинационно-активной моды, составляет $\sim 661 \text{ нм}$. При увеличении времени задержки мгновенная разность частот $\omega_1 - \omega_2$ растет, что приводит к возбуждению комбинационных мод более высоких частот ($\tau \approx 100 - 200 \text{ фс}$, рис.4).

4. Заключение

Выполненные эксперименты показывают, что микроструктурированные волокна со специальным профилем дисперсии позволяют создать высокоэффективные источники перестраиваемых по частоте коротких световых импульсов для нелинейной спектроскопии и сформировать короткие импульсы антистоксова излучения с гладкой временной огибающей и регулируемым chirпом при использовании нано- и субнаноиджоулевых фемтосекундных импульсов накачки. Использование микроструктурированных волокон, таким образом, позволяет радикально снизить требования к энергии импульсов накачки в перестраиваемых источниках для нелинейной спектроскопии 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 нужны импульсы с характерной энергией порядка нескольких миллиджоулей. Аналогичные требования предъявляются к импульсам, применяемым 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 микроиджоулей. Микроструктурированные волокна позволяют достичь эффективной генерации коротких световых импульсов перестраиваемых

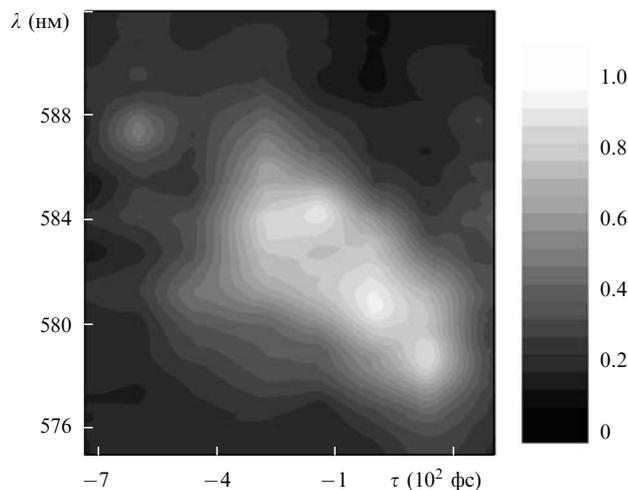


Рис.4. Зависимость интенсивности сигнала КАРС из раствора толуола от длины волны и времени задержки τ между импульсами второй гармоники и антистоксова сигнала.

мого по частоте антистоксова излучения при рекордно низких, наноджоулевых энергиях импульсов накачки. Представленные выше эксперименты показывают возможность использования антистоксовых импульсов, формируемых в микроструктурированных волокнах, для времязрешенной КАРС-спектроскопии.

Работа выполнена при поддержке гранта МД-42.2003.02 Президента Российской Федерации, РФФИ (гранты № 02-02-17098 и № 03-02-16929), а также грантов Volkswagen Foundation (I/76 869).

1. Ахманов С.А., Коротеев Н.И. *Методы нелинейной оптики в спектроскопии рассеяния света* (М.: Наука, 1981).
2. Eesley G.L. *Coherent Raman Spectroscopy* (Oxford: Pergamon, 1981).
3. Желтиков А.М., Коротеев Н.И. *УФН*, **169**, 385 (1999).
4. Zumbusch A., Holtom G.R., Sunney Xie X. *Phys. Rev. Lett.*, **82**, 4142 (1999).
5. Akimov D.A., Konorov S.O., Sidorov-Biryukov D.A., Naumov A.N., Fedotov A.B., Zheltikov A.M. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **4749**, 101 (2002).
6. Kiefer W. (Ed.). *Femtosecond Coherent Raman Spectroscopy. Spec. Issue J. Raman Spectroscopy*, **31** (1–2) (2000).
7. Dudovich N., Oron D., Silberberg Y. *Nature*, **418**, 512 (2002).
8. Von der Linde D., Lauberau A., Kaiser W. *Phys. Rev. Lett.*, **26**, 954 (1971).
9. Radi P., Zheltikov A.M. (Eds.). *Nonlinear Raman Spectroscopy, Spec. Issue J. Raman Spectroscopy*, **33** (11–12) (2002).
10. Russell P.St.J. *Science*, **299**, 358 (2003).
11. Zheltikov A.M. (Ed.). *Supercontinuum Generation. Spec. Issue Appl. Phys. B*, **77** (2–3) (2003).
12. Konorov S.O., Zheltikov A.M. *Opt. Express*, **11**, 2440 (2003).
13. Желтиков А.М. *УФН*, **174**, 73 (2004).
14. Коноров С.О., Колеватова О.А., Федотов А.Б., Серебрянников Е.Е., Сидоров-Бирюков Д.А., Михайлова И.М., Наумов А.Н., Белоглазов В.И., Скибина Н.Б., Мельников Л.А., Щербаков А.В., Желтиков А.М. *ЖЭТФ*, **96** (5), 587 (2003).
15. Akimov D.A., Serebryannikov E.E., Zheltikov A.M., Schmitt M., Maksimenka R., Kiefer W., Dukel'skii K.V., Shevandin V.S., Kondrat'ev Yu.N. *Opt. Lett.*, **28**, 1948 (2003).
16. Fedotov A.B., Bugar I., Sidorov-Biryukov D.A., Serebryannikov E.E., Chorvat Jr. D., Scalora M., Chorvat D., Zheltikov A.M. *Appl. Phys. B*, **77**, 313 (2003).
17. Dudley J.M., Gu X., Xu L., Kimmel M., Zeek E., O'Shea P., Trebino R., Coen S., Windeler R.S. *Opt. Express*, **10**, 1215 (2002).
18. Naumov A.N., Zheltikov A.M. *Appl. Phys. B*, **77**, 369 (2003).