

Волоконно-оптический синтезатор управляемых последовательностей сверхкоротких импульсов для однопучковой микроспектроскопии когерентного комбинационного рассеяния света

А. М. Желтиков

Физический факультет, Международный лазерный центр МГУ им. М.В. Ломоносова
119992 Москва, Россия

Поступила в редакцию 10 апреля 2007 г.

Показано, что в режиме модуляционной неустойчивости микроструктурированный световод совмещает функции преобразователя спектра лазерного излучения и синтезатора профиля фазы, обеспечивающего возможность осуществления однопучковой микроспектроскопии когерентного комбинационного рассеяния и когерентного управления процессами комбинационного возбуждения молекулярных систем.

PACS: 42.65.Wi, 42.81.Qb

Методы когерентного комбинационного рассеяния света [1] открывают уникальные возможности для исследования быстропротекающих процессов в веществе и реализации новых принципов микроскопии физических, химических и биологических систем [2]. В последние годы широкое распространение получила техника нелинейно-оптической микроспектроскопии, основанная на использовании процесса когерентного антистоксова рассеяния света (КАРС) [3–6]. 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 все более широкое применение в биомедицинской оптике, включая решение задач визуализации деталей пространственной структуры и исследования отдельных процессов внутри живых клеток [4, 5].

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 (см. вставку

на рис.1). Пробное световое поле с частотой ω_3 взаимодействует с возбуждениями среды, сфазированными комбинационно-резонансными полями, испы-

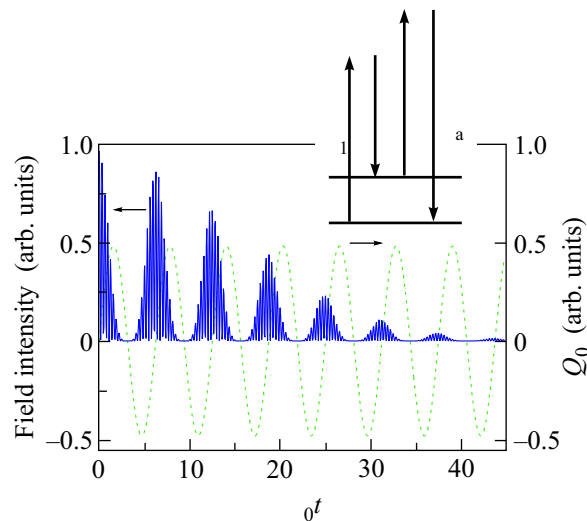


Рис.1. Вынуждающая сила $F(t)$, соответствующая световому полю, задаваемому выражением (4) (сплошная линия), и обеспечивающая сфазированное возбуждение молекулярных колебаний $Q(t) \propto \sin(\Omega_0 t)$ (штриховая линия). Выбраны следующие параметры поля (4): $\tau = 30/\Omega_0$, $a_1 = 2a_2 = 2a_3$. На вставке показана схема процесса КАРС

тывая неупругое рассеяние, приводящее к генерации сигнального поля на частоте $\omega_a = \omega_1 - \omega_2 + \omega_3$, несущего спектроскопическую информацию о системе и позволяющего получить высококонтрастные изобра-

жения 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 все шире используются [7–14] световоды нового типа – микроструктурированные (МС) волокна [15, 16]. Помимо существенного упрощения и удешевления КАРС-систем, перестраиваемые по частоте источники излучения и преобразователи частоты на основе МС световодов открывают возможности реализации привлекательный для биомедицинских приложений волоконно-оптический формат источника излучения для нелинейной микроспектроскопии [17].

Дальнейшее упрощение схемы взаимодействия световых полей в КАРС-микроспектроскопии возможно при использовании световых импульсов со специальными профилями фазы. Как показано в работах [18, 19], применение пространственных модуляторов света на основе жидких кристаллов, формирующих требуемые профили фазы сверхкоротких импульсов, позволит реализовать технику КАРС-микроспектроскопии в однопучковой геометрии. Сфазированное возбуждение комбинационных мод при этом возможно при выполнении следующих двух условий: (i) достаточной ширине спектра светового поля $\Delta\omega$ ($\Delta\omega \gg \Omega_0$) и (ii) формировании 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 недавних экспериментах [12], за счет 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 [20] понимается как неустойчивость светового поля относительно слабой модуляции временной огибающей поля на определенной 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 Шредингера, модуляционная неустойчивость возникает в области частот [20]

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

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

$$S_{\text{eff}} = \left[\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} |F(x, y)|^2 dx dy \right]^2 \times \left[\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} |F(x, y)|^4 dx dy \right]^{-1}, \quad (2)$$

– 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

$$\Omega_m = \frac{\Omega_c}{\sqrt{2}} = \left(\frac{2\gamma P}{|\beta_2|} \right)^{1/2}. \quad (3)$$

Модуляционная неустойчивость светового поля возникает под действием шумовой составляющей поля, связанной со спонтанным излучением [20], а также может быть индуцирована слабым внешним пробным полем, приводящим к временной модуляции огибающей основного лазерного поля [21]. В режиме коротких лазерных импульсов модуляционная неустойчивость может вызываться параметрическим усилением новых спектральных компонент, возникающих в результате спектрального уширения лазерного поля, обусловленного фазовой самомодуляцией (ФСМ) [22]. В присутствии дополнительного лазерного импульса наблюдается явление модуляционной неустойчивости, индуцируемой фазовой кросс-модуляцией [23].

Во временном представлении параметрическое усиление стоксовой и антистоксовой компонент с частотами $\omega_0 \mp \Omega_m$, обусловленное модуляционной неустойчивостью поля с начальной центральной частотой ω_0 , приводит к формированию последовательности световых импульсов [20], разделенных временным интервалом $T_m = 2\pi/\Omega_m$. Как следует из выражения (3), управление временным интервалом T_m может осуществляться путем варьирования 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 субтерагерцовом диапазоне [21].

Для иллюстрации особенностей взаимодействия световых полей, модифицированных явлением модуляционной неустойчивости в световодах, рассмотрим поле

$$E(t) = E_0 \exp\left(-\frac{t^2}{\tau^2}\right) [a_1 \cos \omega_0 t + a_2 \cos(\omega_0 + \Omega)t + a_3 \cos(\omega_0 - \Omega)t], \quad (4)$$

состоящее из трех 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 (4) учитывает конечную длительность τ временной огибающей поля, соответствующую конечной ширине спектра для каждой из частотных составляющих поля.

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

$$Q(t) = \int_0^\infty h(\eta) F(t - \eta) d\eta, \quad (5)$$

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

$$H = H_0 + V, \quad (6)$$

где H_0 – гамильтониан системы в отсутствии светового поля, $V = -\alpha(Q)E^2$ – часть гамильтониана, описывающая комбинационное взаимодействие рассматриваемой степени свободы молекулы, соответствующей обобщенной координате Q , со световым полем E .

Выражение для вынуждающей внешней силы в формуле (5) при этом имеет вид

$$F = -\frac{\partial V}{\partial Q} = \frac{\partial \alpha}{\partial Q} E^2. \quad (7)$$

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 (5):

$$h(\eta) \propto \exp(-\Gamma\eta) \sin(\bar{\Omega}\eta), \quad (8)$$

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 (7), соответствующая световому полю, задаваемому выражением (4) (показана сплошной линией на рис.1), осуществляет сфазированное возбуждение молекулярных колебаний (штриховая линия на рис.1), 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 (5) 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, $Q_0 \propto [(\Omega - \Omega_0)^2 + \Gamma^2]^{-1/2}$.

За счет высокой оптической нелинейности и возможности активного формирования профиля дисперсии МС световоды позволяют существенно увеличить эффективность параметрического спектрального преобразования сверхкоротких световых импульсов [24–26]. Ввиду того, что световоды этого класса характеризуются сложными профилями дисперсии и высокими оптическими нелинейностями, выражения (1) и (3) 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 счет модуляционной неустойчивости последовательностях импульсов, требуется учет эффектов, связанных с дисперсией высоких порядков и запаздывающей (рамановской) частью нелинейно-оптического отклика материала волокна. Такой анализ может быть выполнен

на основе численного решения обобщенного нелинейного уравнения Шредингера [20] для огибающей светового поля $A = A(z, t)$:

$$\frac{\partial A}{\partial \xi} = i \sum_{k=2}^6 \frac{(i)^k}{k!} \beta^{(k)} \frac{\partial^k A}{\partial \tau^k} + P_{nl}(\xi, \tau). \quad (9)$$

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. Нелинейная поляризация $P_{nl}(\xi, \tau)$ в уравнении (9) учитывает запаздывающую часть нелинейно-оптического отклика и частотную зависимость эффективной площади волноводной моды [27]:

$$P_{nl}(\xi, \tau) = i \hat{F}^{-1} \left[\frac{n_2 \omega}{c S_{\text{eff}}(\omega)} \bar{p}_{nl}(\xi, \omega_0 - \omega) \right]. \quad (10)$$

Здесь S_{eff} – эффективная площадь моды, определенная выражением (2), $\hat{F}^{-1}(\bullet)$ – оператор обратного преобразования Фурье. Нелинейная поляризация включает как электронную (керровскую), так и фоновую (рамановскую) части оптической нелинейности:

$$\bar{p}_{nl}(\xi, \omega - \omega_0) = \hat{F} \left[A(\xi, \tau) \int_{-\infty}^{\infty} R(t) |A(\xi, \tau - t)|^2 dt \right], \quad (11)$$

где $\hat{F}(\bullet)$ – оператор прямого преобразования Фурье,

$$R(t) = (1 - f_R) \delta(t) + f_R \Theta(t) \frac{\tau_1^2 + \tau_2^2}{\tau_1 \tau_2} e^{-\frac{t}{\tau_2}} \sin\left(\frac{t}{\tau_1}\right), \quad (12)$$

– функция рамановского отклика, 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 плавного кварца имеем [20] $f_R \approx 0.18$, $\tau_1 \approx 12.5$ фс, $\tau_2 \approx 32$ фс.

Расчеты 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.2), распространяющихся в световоде с характерным для МС волокон профилем дисперсии групповой скорости (показан линией 2 на рис.2). На рис.2 и 3 представлены полученные путем численного решения уравнения (9) спектр излучения и временная огибающая поля на выходе такого световода длиной 12 см. Модуляционная неустойчивость приводит к появлению интенсивных боковых компонент

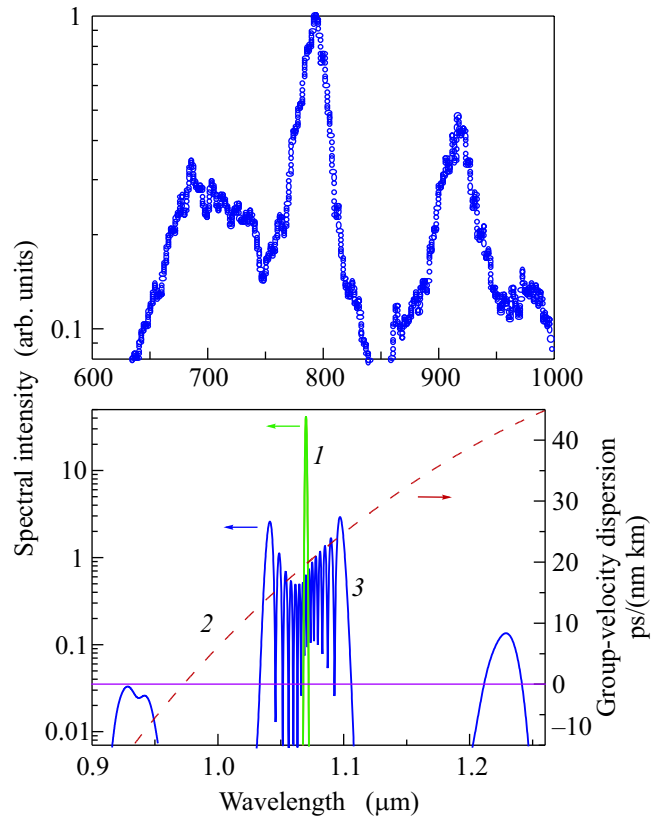


Рис.2. Начальный спектр световых импульсов (1), профиль дисперсии групповой скорости световода (2) и спектр излучения на выходе МС световода длиной 12 см (3) для лазерных импульсов с центральной длиной волны 1070 нм, начальной длительностью 2 пс и начальной пиковой мощностью 10 кВт. На вставке представлен характерный спектр излучения фемтосекундного титан-сапфирового лазера на выходе кварцевого МС световода с коэффициентом оптической нелинейности $\gamma \approx 50 \text{ Вт}^{-1} \cdot \text{км}^{-1}$. Начальная длительность лазерного импульса – 50 фс. Начальная энергия импульса – 0.5 нДж

в спектре излучения на выходе световода (рис.2). Во временной огибающей поля при этих условиях формируется последовательность световых импульсов (рис.3), частота повторения которых определяется дисперсией и нелинейностью световода, а также пиковой мощностью лазерных импульсов.

На рис.4 представлен 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. Как следует из представленных на рис. 4 зависимостей, последовательность синтезируемых в МС световоде импульсов

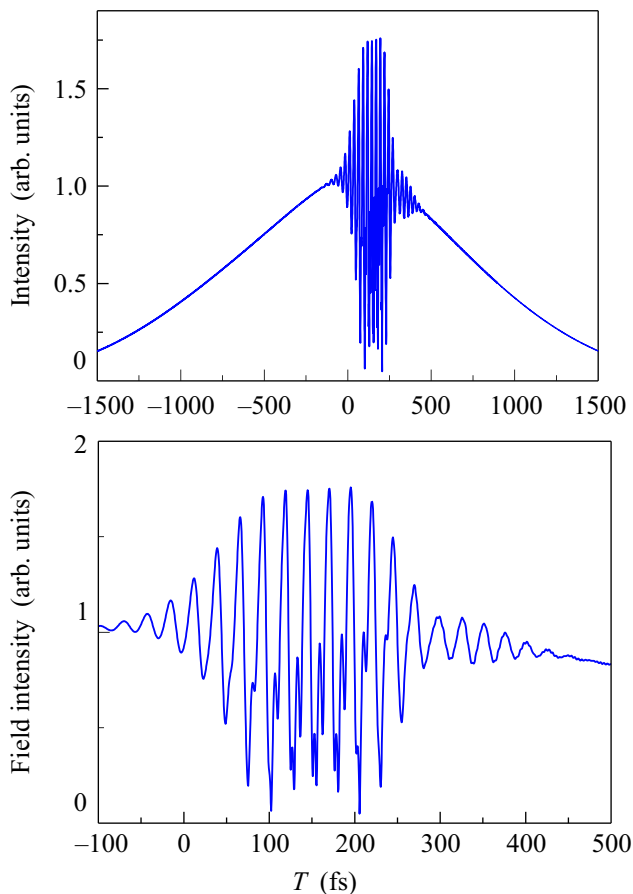


Рис.3. Временная огибающая интенсивности светового поля на выходе МС световода длиной 12 см для лазерных импульсов с центральной длиной волны 1070 нм, начальной длительностью 2 пс и начальной пиковой мощностью 10 кВт. На вставке показан общий вид светового импульса на выходе световода

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 [18, 19] для сфазированного возбуждения молекулярных колебаний.

Эксперименты по исследованию модуляционных неустойчивостей в МС световодах [24–26] подтверждают возможность эффективной генерации боковых компонент в спектрах сверхкоротких лазерных импульсов с частотами Ω в спектральных диапазонах, характерных для собственных частот комбинационно-активных колебательных и вращательных молекулярных мод. На вставке к рис.2 представлен характерный спектр излучения фем-

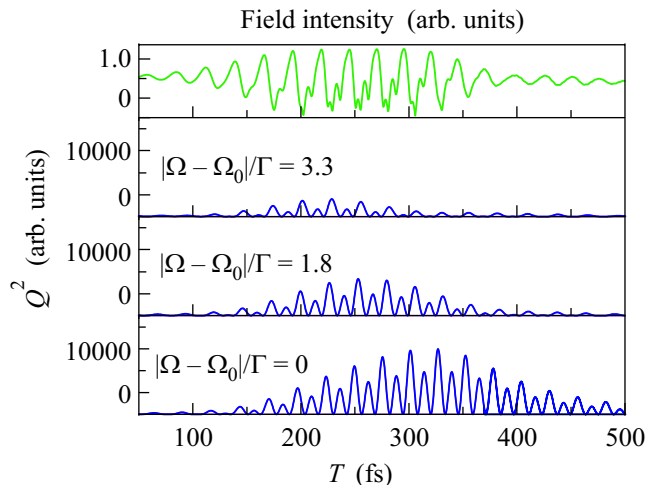


Рис.4. Интенсивность светового поля на выходе МС световода (верхний график) и амплитуда комбинационного отклика молекулярных колебаний для различных значений частотной отстройки $|\Omega - \Omega_0|/\Gamma$, принимающей значения 0, 1.8, 3.3 (сверху вниз); $\Omega_0/\Gamma \approx 24.2$

тосекундного титан-сапфирового лазера на выходе кварцевого МС световода с высокой оптической нелинейностью [25]. В спектре выходного излучения наблюдаются интенсивные боковые компоненты, смещенные относительно центральной частоты светового поля на $\Omega/2\pi \approx 50$ ТГц.

В ранее выполненных экспериментах по однолучевой КАРС-микроскопии для формирования резонансных молекулярным колебаниям последовательностей световых импульсов использовались МС световод и пространственный модулятор света на основе жидких кристаллов. Приведенные 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. Высокочастотная (антистоксова) составляющая в спектре излучения на выходе МС-волокна может быть использована в качестве местного гетеродина для микроспектроскопии КАРС с гетеродинным детектированием [5, 28]. МС световоды, таким образом, позволяют создать компактные и эффективные волоконно-оптические компоненты для когерентного управления процессами комбинационного возбуждения и однолучевой КАРС-микроскопии.

Автор признателен Е.Е. Серебрянникову за помощь и полезные обсуждения. Работа выполнена при поддержке грантов Российского фонда фундаментальных исследований # 03-02-16929 и # 05-02-

90566-ННС, грантов ИНТАС # 03-51-5037 и # 03-51-5288, а также гранта Американского фонда гражданских исследований и разработок (CRDF, проект # RUP2-2695).

1. С. А. Ахманов, Н. И. Коротеев, "Методы нелинейной оптики в спектроскопии рассеяния света, М.: Наука, 1981.
2. А. М. Желтиков, *Сверхкороткие импульсы и методы нелинейной оптики*, М.: Наука, 2006.
3. M. D. Duncan, J. Reintjes, and T. J. Manuccia, *Opt. Lett.* **7**, 350 (1982).
4. A. Zumbusch, G. R. Holtom, and X. S. Xie, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 4142 (1999).
5. C. L. Evans, E. O. Potma, M. Puoris'haag et al., *Proc. Natl. Acad. Sci.* **102**, 16807 (2005).
6. А. М. Желтиков, Н. И. Коротеев, УФН **169**, 385 (1999).
7. H. N. Paulsen, K. M. Hilligsøe, J. Thøgersen et al., *Opt. Lett.* **28**, 1123 (2003).
8. S. O. Konorov, D. A. Akimov, E. E. Serebryannikov et al., *Phys. Rev. E* **70**, 057601 (2004).
9. D. A. Sidorov-Biryukov, E. E. Serebryannikov, and A. M. Zheltikov, *Opt. Lett.* **31**, 2323 (2006).
10. H. Kano and H. Hamaguchi, *Opt. Express* **13**, 1322 (2005).
11. E. R. Andresen, H. N. Paulsen, V. Birkedal et al., *J. Opt. Soc. Am. B* **22**, 1934 (2005).
12. B. von Vacano, W. Wohlleben, and M. Motzkus, *Opt. Lett.* **31**, 413 (2006).
13. А. М. Желтиков, УФН **176**, 623 (2006).
14. A. M. Zheltikov, *Nature Materials* **4**, 265 (2005).
15. P. St. J. Russell, *Science* **299**, 358 (2003).
16. J. C. Knight, *Nature* **424**, 847 (2003).
17. D. A. Zheltikova and A. M. Zheltikov, *Appl. Phys. B* **83**, 11 (2006).
18. N. Dudovich, D. Oron, and Y. Silberberg, *Nature* **418**, 512 (2002).
19. N. Dudovich, D. Oron, and Y. Silberberg, *J. Chem. Phys.* **118**, 9208 (2003).
20. G. P. Agrawal, *Nonlinear Fiber Optics*, Academic, San Diego, 2001.
21. K. Tai, A. Tomita, J. L. Jewell, and A. Hasegawa, *Appl. Phys. Lett.* **49**, 236 (1986).
22. M. J. Potasek and G. P. Agrawal, *Phys. Rev. A* **36**, 3862 (1987).
23. G. P. Agrawal, *Phys. Rev. Lett.* **59**, 880 (1987).
24. E. E. Serebryannikov, S. O. Konorov, A. A. Ivanov et al., *Phys. Rev. E* **72**, 027601 (2005).
25. A. B. Fedotov, S. O. Konorov, E. E. Serebryannikov et al., *Opt. Commun.* **255**, 218 (2005).
26. J. S. Chen, G. K. Wong, S. G. Murdoch et al., *Opt. Lett.* **31**, 873 (2006).
27. E. E. Serebryannikov and A. M. Zheltikov, *J. Opt. Soc. Am. B* **23**, 1882 (2006).
28. Y. Yacoby, R. Fitzgibbon, and B. Lax, *J. Appl. Phys.* **51**, 3072 (1980).