

Снижение квантового шума в волноводной когерентной спектроскопии комбинационного рассеяния света

А. М. Желтиков¹⁾

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

Поступила в редакцию 3 августа 2004 г.

Показано, что волноводные режимы нелинейно-оптических взаимодействий позволяют снизить уровень квантовых шумов в спектрах когерентного комбинационного рассеяния света (ККР). Получены выражения для оптимальной длины волновода, обеспечивающей максимальное значение квантового предела отношения сигнала к шуму в волноводном ККР, и найдена максимальная величина этого отношения в квантовом пределе с учетом явления оптического пробоя. Определены условия, при которых квантовый предел отношения сигнала к шуму для ККР-спектроскопии газовой фазы, основанной на использовании фемтосекундных лазерных импульсов, может быть увеличен более чем на четыре порядка по сравнению с режимом жесткой фокусировки.

PACS: 42.65.Dr, 61.46.+w

Когерентное комбинационное рассеяние света (ККР) [1, 2] является одним из наиболее эффективных и информативных методов нелинейной спектроскопии. Современная техника ККР [3, 4] обеспечивает высокое пространственное, временное и спектральное разрешение при исследовании возбужденных газовых сред, плазмы, пламен и процессов горения [5, 6], а также активно используется для исследования фемтосекундной динамики и управления колебательными волновыми пакетами в молекулярных системах [7] и когерентной микроскопии биологических объектов [8]. В последние годы динамично развиваются новые направления фемтосекундного ККР, такие как трехмерная микроскопия когерентного антистоксова рассеяния света (КАРС) [8] и когерентно-управляемое КАРС [9].

Волноводные режимы ККР [10–14] позволяют существенно повысить чувствительность и расширить область применимости ККР-спектроскопии. В частности, планарные пленочные волноводы обеспечивают уровень чувствительности ККР-спектроскопии, достаточный для измерения КАРС-спектров молекулярных монослоев [11, 12]. Повышение чувствительности КАРС-спектроскопии газовых сред достигается за счет использования полых волноводов [13, 15, 16], включая полые фотонно-кристаллические волокна [17].

Квантовые и классические источники шумов накладывают фундаментальные ограничения на чувствительность методов ККР спектроскопии [1, 2]. В настоящей работе мы покажем, что волноводные режи-

мы нелинейно-оптических взаимодействий позволяют снизить уровень квантовых шумов в спектрах ККР. Будут определены условия, при которых квантовый предел отношения сигнала к шуму для ККР-спектроскопии газовой фазы, основанной на использовании фемтосекундных лазерных импульсов, может быть увеличен более чем на четыре порядка по сравнению с режимом жесткой фокусировки.

Возникновение шумов в спектрах ККР обусловлено классическими и квантовыми механизмами. Основным источником классических шумов в ККР-спектроскопии являются флуктуации интенсивностей полей накачки. Классический предел отношения сигнал/шум при этом определяется среднеквадратичными отклонениями мощностей накачки и соотношением резонансной и нерезонансной составляющих нелинейно-оптической восприимчивости. Среднеквадратичное отклонение тока фотодетектора, вызванное флуктуациями мощности накачки, записывается в виде [1, 2]

$$\langle \delta_c^2 \rangle = \varepsilon i_d^2, \quad (1)$$

где угловые скобки обозначают усреднение по времени, ε – полное среднеквадратичное отклонение мощностей накачки (для двухчастотного ККР $\omega_{\text{CRS}} = 2\omega_1 - \omega_2$ с полями накачки на частотах ω_1 и ω_2 имеем $\varepsilon = 4\varepsilon_1 + \varepsilon_2$, где ε_1 и ε_2 – среднеквадратичные отклонения мощностей накачки с частотами ω_1 и ω_2 соответственно),

$$i_d = \frac{\eta e}{\hbar \omega_{\text{CRS}}} P_{\text{CRS}} \quad (2)$$

¹⁾e-mail: zheltikov@top.phys.msu.su

– ток фотоприемника, индуцируемый сигналом ККР с мощностью P_{CRS} и частотой ω_{CRS} (η – квантовая эффективность фотодетектора, e – заряд электрона).

Наиболее важным из источников квантовых шумов является дробовой шум фотодетектора. Среднеквадратичное отклонение фототока приемника, используемого для регистрации сигнала ККР, вызванное дробовым шумом, записывается в виде [1, 2]

$$\langle \delta_q^2 \rangle = 2e\Delta\nu i_d, \quad (3)$$

где $\Delta\nu$ – ширина полосы фотодетектора, связанная с его постоянной времени T соотношением $\Delta\nu = 1/T$.

Мощность полезного сигнала в спектроскопии ККР определяется как резонансной составляющей сигнала, связанной с исследуемой комбинационно-активной модой среды, так и нерезонансным фоном:

$$P_{\text{CRS}} = (P_r^2 + 4P_r P_{nr})^{1/2}, \quad (4)$$

где P_r – мощность резонансной составляющей сигнала, P_{nr} – мощность нерезонансного фона. Полный сигнал на фотодетекторе определяется выражением

$$P = P_{nr} + (P_r^2 + 4P_r P_{nr})^{1/2}. \quad (5)$$

С учетом формул (1)–(5) отношение сигнала к шуму в спектроскопии ККР может быть представлено в виде

$$\frac{S}{N} = \left(\frac{\langle i_d^2 \rangle}{\langle \delta_c^2 \rangle + \langle \delta_q^2 \rangle} \right)^{1/2} = \left(\frac{P_r^2 + 4P_r P_{nr}}{\varepsilon P^2 + 2\hbar\omega_{\text{CRS}}\Delta\nu P/\eta} \right)^{1/2}. \quad (6)$$

В случае интенсивного нерезонансного фона имеем следующий классический предел отношения сигнала к шуму в спектроскопии ККР:

$$\frac{S}{N} \approx 2 \left(\frac{P_r}{\varepsilon P_{nr}} \right)^{1/2}. \quad (7)$$

Нерезонансный когерентный фон, однако, может быть эффективно подавлен с помощью поляризационной техники [1] путем введения временной задержки между лазерными импульсами [4] или методами когерентного контроля [9]. При подавленном когерентном фоне классический предел отношения сигнала к шуму, как следует из формулы (6), имеет вид

$$\left(\frac{S}{N} \right) \approx \frac{1}{\varepsilon^{1/2}}. \quad (8)$$

Квантовый предел S/N при этих условиях определяется следующим выражением:

$$\left(\frac{S}{N} \right) \approx \left(\frac{\eta P_{\text{CRS}}}{2\hbar\omega_{\text{CRS}}\Delta\nu} \right)^{1/2}. \quad (9)$$

Покажем, что в режиме волноводного ККР квантовый предел отношения сигнала к шуму может быть существенно снижен по сравнению с режимом жестко сфокусированных полей накачки. Воспользуемся для этой цели следующим общим выражением для интенсивности сигнала двухчастотного ККР в режиме фазового согласования [1, 2]:

$$I_{\text{CRS}} \propto |\chi^{(3)}|^2 I_1^2 I_2 l^2, \quad (10)$$

где I_1, I_2 – интенсивности полей накачки, $\chi^{(3)}$ – нелинейно-оптическая восприимчивость, ответственная за процесс ККР, l – эффективная длина нелинейно-оптического взаимодействия. Для сфокусированных полей накачки эффективная длина нелинейно-оптического взаимодействия определяется конфокальным параметром, который для гауссовых пучков определяется выражением

$$l_t \simeq \pi a^2 / \lambda, \quad (11)$$

где a – радиус перетяжки сфокусированного пучка, λ – длина волны излучения. Фактор увеличения мощности сигнала ККР в волноводе с радиусом сердцевины a в режиме фазового согласования, таким образом, составляет

$$\xi = \frac{(P_{\text{CRS}})_w}{(P_{\text{CRS}})_t} \approx \frac{\lambda^2 l^2}{\pi^2 a^4}, \quad (12)$$

где $(P_{\text{CRS}})_w$ и $(P_{\text{CRS}})_t$ – мощности сигнала ККР в волноводе и в режиме жесткой фокусировки при одинаковых мощностях импульсов накачки.

Согласно формулам (9) и (12), увеличение квантового предела отношения сигнал/шум для волноводного ККР в режиме фазового согласования пропорционально длине l эффективного нелинейного взаимодействия в волноводе и обратно пропорционально квадрату радиуса волновода a :

$$\mu = \frac{(S/N)_{q,w}}{(S/N)_{q,t}} \approx \frac{\lambda l}{\pi a^2} \quad (13)$$

где $(S/N)_{q,w}$ и $(S/N)_{q,t}$ – квантовые пределы отношения сигнал/шум для спектра ККР в волноводе и в режиме жесткой фокусировки при одинаковых мощностях импульсов накачки.

Ключевым фактором, ограничивающим увеличение квантового предела отношения сигнал/шум в волноводном режиме являются волноводные потери. Фактор, описывающий влияние оптических потерь и фазовой расстройки волноводных мод на эффективность ККР, может быть представлен в следующем виде [1, 2]:

$$M = \exp[-(\Delta\alpha + \alpha_{\text{CRS}})l] \frac{\sinh^2(\Delta\alpha l/2) + \sin^2(\Delta\beta l/2)}{(\Delta\alpha l/2)^2 + (\Delta\beta l/2)^2} l^2, \quad (14)$$

где $\Delta\alpha = (2\alpha_1 + \alpha_2 - \alpha_{\text{CRS}})/2$, α_1 , α_2 , α_{CRS} – коэффициенты затухания излучения на длинах волн ω_1 , ω_2 , ω_{CRS} , соответственно, $\Delta\beta$ – расстройка постоянных распространения волноводных мод, участвующих в нелинейно-оптическом взаимодействии.

Фазовое рассогласование для волноводного ККР, связанное с расстройкой $\Delta\beta$, устраняется для данного набора волноводных мод за счет взаимной компенсации материальной и волноводной составляющих дисперсии [16]. На рис.1 эта возможность иллюстрируется для процесса ККР $\omega_{\text{CRS}} = 2\omega_1 - \omega_2$

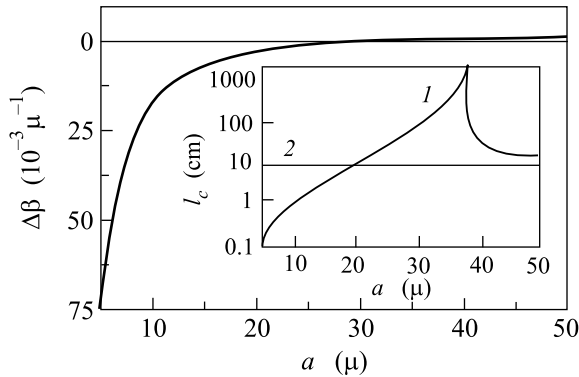


Рис.1. Зависимость расстройки постоянных распространения мод заполненного атмосферным воздухом полого волновода, участвующих в процессе ККР $\omega_{\text{CRS}} = 2\omega_1 - \omega_2$ (ω_1 и ω_2 – частоты полей накачки), от внутреннего радиуса волновода a . Основные волноводные моды полей накачки с длинами волн $\lambda_1 = 2\pi c/\omega_1 = 532$ нм и $\lambda_2 = 2\pi c/\omega_2 = 660$ нм приводят к генерации сигнала ККР в основной волноводной моде. Учтена материальная дисперсия воздуха. Горизонтальной линией показано условие фазового согласования, $\Delta\beta = 0$. На вставке приведены зависимости длины когерентности $l_c = \pi/2|\Delta\beta|$ для рассматриваемого процесса ККР в заполненном воздухом полом волноводе (1) и в атмосферном воздухе в отсутствие волновода (2) от внутреннего радиуса полого волновода

(ω_1 и ω_2 – частоты полей накачки) в полом волноводе, заполненном воздухом при атмосферном давлении. Основные волноводные моды полей накачки с длинами волн $\lambda_1 = 2\pi c/\omega_1 = 532$ нм и $\lambda_2 = 2\pi c/\omega_2 = 660$ нм в рассматриваемом случае приводят к генерации нелинейного сигнала в основной волноводной моде. Условие фазового согласования $\Delta\beta = 0$ для рассматриваемого процесса достигается при внутреннем радиусе волновода a около 32 мкм. В широком диапазоне значений a , начиная примерно с 25 мкм, длина когерентности $l_c = \pi/2|\Delta\beta|$ для волноводного ККР (кривая 1 на вставке к рис.1) превосходит длину когерентности для того же нелинейного процесса в ат-

мосферном воздухе в отсутствие волновода (кривая 2 на вставке к рис.1).

Как следует из анализа выражения (14) в режиме фазового согласования, $\Delta\beta l \ll 1$, имеется оп-

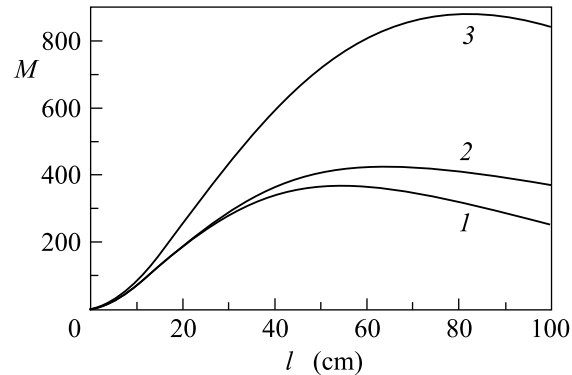


Рис.2. Зависимость фактора M (выражение (14)), учитывающего влияние оптических потерь и фазовой расстройки волноводных мод на эффективность ККР, от длины нелинейно-оптического взаимодействия l : (1) $\alpha_1 = 0.03 \text{ см}^{-1}$, $\alpha_2 = \alpha_{\text{CRS}} = 0.01 \text{ см}^{-1}$; (2) $\alpha_1 = \alpha_2 = \alpha_{\text{CRS}} = 0.02 \text{ см}^{-1}$; (3) $\alpha_1 = \alpha_2 = 0.01 \text{ см}^{-1}$, $\alpha_{\text{CRS}} = 0.02 \text{ см}^{-1}$

тимальная длина волновода, обеспечивающая максимальное увеличение квантового предела отношения сигнал/шум (рис.2):

$$l_{\text{opt}} = \frac{1}{\Delta\alpha} \ln \left(\frac{2\alpha_1 + \alpha_2}{\alpha_{\text{CRS}}} \right). \quad (15)$$

Для внутренних радиусов полого волновода порядка $a \approx 5$ мкм увеличение квантового предела сигнала к шуму в волноводном режиме, как видно из результатов, представленных на рис.3, может достигать четырех порядков. Для высокоинтенсивных лазерных импульсов, однако, уменьшение радиуса сердцевины волновода, в свою очередь, ограничено явлением оптического пробоя. Вводя I_b для обозначения интенсивности, соответствующей критической плотности энергии лазерного излучения на пороге оптического пробоя, получаем следующее выражение для минимального радиуса сердцевины волновода: $a_{\text{min}}^2 = P/\pi I_b$, где P – мощность импульса накачки.

С учетом формул (13) и (15) максимальное увеличение квантового предела отношения сигнал/шум составляет

$$\mu_{\text{max}} = \frac{\lambda I_b}{\Delta\alpha P} \ln \left(\frac{2\alpha_1 + \alpha_2}{\alpha_{\text{CRS}}} \right). \quad (16)$$

Воспользуемся выражениями (7), (13) и (16) для анализа возможностей улучшения соотношения сигнал/шум волноводной ККР-спектроскопии газовой

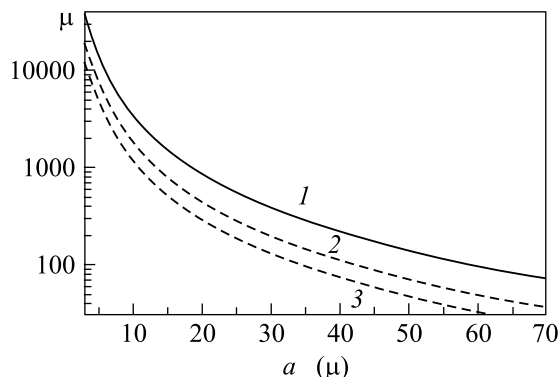


Рис.3. Увеличение квантового предела отношения сигнала к шуму волноводной ККР-спектроскопии относительно режима жесткой фокусировки в зависимости от радиуса полой сердцевины волновода a для $\lambda = 1 \text{ мкм}$, $l = l_{\text{opt}}$, $\alpha_1 = \alpha_2 = \alpha_{\text{CRS}} = 0.01 \text{ см}^{-1}$ (1), 0.02 см^{-1} (2), 0.03 см^{-1} (3)

фазы. Уменьшение классического предела отношения сигнал/шум в этом случае может быть достигнуто за счет использования стабилизированных по мощности фемтосекундных импульсов накачки. Подавление нерезонансного фона в фемтосекундном режиме ККР достигается путем введения времени задержки между лазерными импульсами [1, 4] и использования методов когерентного контроля [9].

Спектроскопия ККР газовой фазы предполагает использование полых волноводов. Для стандартных полых волноводов уменьшение радиуса полой сердцевины приводит к быстрому росту коэффициента оптических потерь, пропорционального λ^2/a^3 . Это обстоятельство накладывает ограничения на уменьшение радиуса сердцевины полых волокон. В экспериментах, как правило, используются полые волокна с диаметром сердцевины, варьируемым в диапазоне 100–500 мкм. Излучение при этом распространяется через волокно в многомодовом режиме. Различие фазовых и групповых скоростей волноводных мод, одновременно возбуждаемых в стандартном полом волноводе, затрудняет времяразрешенные измерения и не позволяет достичь высокой точности калибровки нелинейного сигнала как функции давления газа [15]. Потери локализованных в газовой фазе волноводных мод могут быть радикально снижены за счет использования полых волноводов с периодической (фотонно-кристаллической) оболочкой [18–22]. Такие волноводы позволяют формировать изолированные направляемые моды излучения в полой сердцевине и обеспечивают радикальное увеличение эффективности нелинейно-оптических взаимодействий [23–26].

Интенсивности порядка $I_b \sim 10^{14} \text{ Вт/см}^2$, соответствующие характерным интенсивностям оптического пробоя газа при атмосферном давлении, достигаются в полых фотонно-кристаллических волноводах с характерным радиусом полой сердцевины 5 мкм при мощности лазерных импульсов на уровне 75 МВт. Фемтосекундные импульсы такой мощности формируются стандартными твердотельными лазерными системами с синхронизацией мод и регенеративным усилением. Передача фемтосекундных импульсов таких мощностей через полые фотонно-кристаллические волокна продемонстрирована в работе [27] (см. также [22]). Максимальное увеличение квантового предела отношения сигнал/шум фемтосекундной ККР-спектроскопии для подобных импульсов накачки при $l_{\text{opt}} \approx 100 \text{ см}$, как следует из выражения (16), составляет $\mu_{\text{max}} \sim 1.3 \cdot 10^4$ (рис.3).

Выполненный в настоящей работе анализ показывает, что волноводные режимы нелинейно-оптических взаимодействий позволяют снизить уровень квантовых шумов в спектрах ККР света. Полученные выражения для оптимальной длины волновода, обеспечивающей максимальное значение квантового предела отношения сигнала к шуму в волноводном ККР, и максимальной величины этого отношения в квантовом пределе с учетом явления оптического пробоя указывают на возможность радикального снижения квантового шума для ККР-спектроскопии газовой фазы, основанной на использовании фемтосекундных лазерных импульсов высокой мощности.

Работа выполнена при поддержке гранта МД-42.2003.02 Президента Российской Федерации, грантов Российского фонда фундаментальных исследований # 02-02-17098 и # 03-02-16929, проектов ИНТАС # 03-51-5037 и # 03-51-5288, а также грантов Американского фонда гражданских исследований и разработок (CRDF, проект RP2-2558) и Европейского офиса научных исследований (проект # 62558-03-M-0033).

1. С. А. Ахманов, Н. И. Коротеев, *Методы нелинейной оптики в спектроскопии рассеяния света*, М.: Наука, 1981.
2. G. L. Eesley, *Coherent Raman Spectroscopy*, Oxford: Pergamon, 1981.
3. А. М. Желтиков, Н. И. Коротеев, УФН **170**, 1203 (1999).
4. А. М. Zheltikov, *Introduction to Nonlinear Raman Spectrometry*, in *Handbook of Vibrational Spectroscopy*, Chichester: Wiley, 2002, vol. 1, p.572.

5. *Nonlinear Raman Spectroscopy*, Special Issue of the Journal of Raman Spectroscopy, **33**, nos. 11/12 (2002), Eds. P. Radi, and A. M. Zheltikov.
6. *Nonlinear Raman Spectroscopy*, Special Issue of the Journal of Raman Spectroscopy, **34**, no. 12 (2003), Eds. P. Radi and A. M. Zheltikov.
7. *Femtosecond Coherent Raman Spectroscopy*, Special Issue of J. Raman Spectrosc. **31**, nos. 1/2 (2000), Ed. W. Kiefer.
8. A. Zumbusch, G. R. Holtom, and X. Sunney Xie, Phys. Rev. Lett. **82**, 4142 (1999).
9. N. Dudovich, D. Oron, and Y. Silberberg, Nature **418**, 512 (2002).
10. G. I. Stegeman, R. Fortenberry, C. Karaguleff et al., Opt. Lett. **8**, 295 (1983).
11. W. P. de Boeij, J. S. Kanger, G. W. Lucassen et al., Appl. Spectrosc. **47**, 723 (1993).
12. J. S. Kanger, C. Otto, and J. Greve, Appl. Spectrosc. **49**, 1326 (1995).
13. R. B. Miles, G. Laufer, and G. C. Bjorklund, Appl. Phys. Lett. **30**, 417 (1977).
14. S. O. Konorov, D. A. Akimov, A. N. Naumov et al., JETP Lett. **75**, 66 (2002).
15. A. B. Fedotov, F. Giammanco, A. N. Naumov et al., Appl. Phys. **B72**, 575 (2001).
16. А. М. Желтиков, УФН **172**, 743 (2002).
17. A. B. Fedotov, S. O. Konorov, V. P. Mitrokhin et al., Phys. Rev. **A**, in press.
18. R. F. Cregan, B. J. Mangan, J. C. Knight et al., Science **285**, 1537 (1999).
19. S. O. Konorov, A. B. Fedotov, O. A. Kolevatova et al., JETP Lett. **76**, 341 (2002).
20. P. St. J. Russell, Science **299**, 358 (2003).
21. C. M. Smith, N. Venkataraman, M. T. Gallagher et al., Nature **424**, 657 (2003).
22. А. М. Желтиков, *Оптика микроструктурированных волокон*, М.: Наука, 2004.
23. F. Benabid, J. C. Knight, G. Antonopoulos, and P. St. J. Russell, Science **298**, 399 (2002).
24. S. O. Konorov, A. B. Fedotov, and A. M. Zheltikov, Opt. Lett. **28**, 1448 (2003).
25. D. G. Ouzounov, F. R. Ahmad, D. Muller et al., Science **301**, 1702 (2003).
26. S. O. Konorov, D. A. Sidorov-Biryukov, I. Bugar et al., Phys. Rev. **A**, in press.
27. S. O. Konorov, A. M. Zheltikov, Ping Zhou et al., Opt. Lett. **29**, 1521 (2004).