

МОСКОВСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ
имени М. В. ЛОМОНОСОВА
ФИЗИЧЕСКИЙ ФАКУЛЬТЕТ

На правах рукописи

Мещанкин Денис Вячеславович

**СВЕТОВОДЫ С АКТИВНО ФОРМИРУЕМЫМИ
ХАРАКТЕРИСТИКАМИ ДЛЯ ГЕНЕРАЦИИ
СВЕРХКОРОТКИХ СВЕТОВЫХ ИМПУЛЬСОВ И
ФЛУОРЕСЦЕНТНОГО ЗОНДИРОВАНИЯ**

Специальность 01.04.21 — «Лазерная физика»

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание учёной степени
кандидата физико-математических наук

Москва — 2017

Работа выполнена на кафедре общей физики и волновых процессов физического факультета МГУ имени М. В. Ломоносова.

Научный руководитель: доктор физико-математических наук, профессор
Желтиков Алексей Михайлович

Официальные оппоненты: **Моисеев Сергей Андреевич**,
доктор физико-математических наук, профессор,
Казанский национальный исследовательский техни-
ческий университет им. А.Н. Туполева–КАИ,
заведующий лабораторией

Головань Леонид Анатольевич,
доктор физико-математических наук, доцент,
Московский государственный университет име-
ни М.В. Ломоносова, физический факультет,
доцент физического факультета

Иванов Анатолий Александрович,
кандидат физико-математических наук,
Центр фотохимии Российской академии наук,
старший научный сотрудник

Защита диссертации состоится «21» декабря 2017 г. в 15:15 на заседании диссер-
тационного совета МГУ.01.13 Московского государственного университета име-
ни М.В. Ломоносова по адресу: 119991, ГСП-1, Москва, Ленинские горы, МГУ,
дом 1, стр. 62, корпус нелинейной оптики, аудитория им. С.А. Ахманова.
E-mail: denmesh@yandex.ru

С диссертацией можно ознакомиться в отделе диссертаций Научной библиотеки
МГУ имени М.В. Ломоносова (Ломоносовский просп., д. 27) и на сайте ИАС
«Истина»: https://istina.msu.ru/dissertation_councils/councils/33919655/.

Автореферат разослан «___» _____ 2017 г.

Ученый секретарь
диссертационного совета
кандидат физико-математических наук

А. А. Коновко

Общая характеристика работы

Актуальность работы. Оптические волокна являются уникальным классом устройств, нашедшим применение во многих областях науки и техники. Они активно используются для задач телекоммуникации, зондирования, рассматриваются как возможная замена традиционным проводникам в интегральных схемах. Однако полностью их потенциал проявляется в области нелинейной оптики. В отличие от сплошных сред, оптические свойства которых являются пассивными и неизменными для каждого отдельного вещества, волокна позволяют формировать эти свойства активно, путём выбора не только материалов, но и геометрии поперечного и продольного профилей волновода. Подобная гибкость даёт возможность адаптации волоконно-оптических элементов под конкретные задачи, приводя к эффективности преобразования излучения, недостижимой для других устройств. Использование световодов с активно формируемыми характеристиками объединяет столь разные приложения, как флуоресцентные зонды для нейрфотоники, генерация сверхшироких спектров, микроспектроскопия веществ и манипуляция возбуждёнными состояниями электронных подоболочек атомов.

Широкое использование световодных зондов в нейрфотонике обусловлено жёсткими требованиями, предъявляемыми этой областью исследований к используемому инструментарию. В силу того, что предметом её изучения является мозг живых существ, очень важна минимизация инвазивности методов изучения. Волоконно-оптические зонды хорошо отвечают этому требованию за счёт малых поперечных размеров оптических волноводов. Кроме того, они одновременно гибки и механически прочны, что позволяет использовать их даже для изучения свободноподвижных животных. Наконец, специальные волокна с активно формируемыми характеристиками позволяют реализовать нелинейно-оптические методики зондирования и обеспечивают высокую эффективность сбора оптического отклика.

Значимость нелинейно-оптических волокон в задачах генерации сверхшироких спектров трудно переоценить. Этот процесс отличается сильной нелинейностью и критичной зависимостью от спектрального профиля дисперсии групповых скоростей. Волокна же, за счёт варьирования параметров их конструкции, позволяют управлять этими характеристиками в очень широких пределах, давая возможность реализовать практически любые желаемые условия. С помощью волоконных технологий были предложены и реализованы методы генерации сверхшироких спектров для большого числа различных задач: спектрально однородные импульсы для телекоммуникаций, сверхширокие спектры для задач метрологии, спектры, перекрывающие ультрафиолетовый, видимый и ближний инфракрасный диапазон для зондирования электронных состояний и спектры полностью в инфракрасном диапазоне для задач спектроскопии. Также использование волокон позволило существенно уменьшить требования, предъявляемые к источнику излучения, как по пиковой мощности, так и по центральной длине волны импульсов.

В задачах исследования структуры вещества волокна выполняют двойную роль. Во-первых, они используются в качестве удобного, гибкого и прочного способа доставки излучения к исследуемому объекту. Во-вторых, волокна осуществляют спектральные преобразования лазерного излучения, необходимые для реализации различных схем исследования. Например, для исследования и управления динамикой электронов в веществе, световодные компоненты являются одной из существенных частей схемы по получению аттосекундных импульсов.

Целями данной диссертационной работы являются разработка методики получения сверхкоротких импульсов с длительностью порядка одного цикла в среднем инфракрасном диапазоне длин волн с использованием микроструктурированных халькогенидных волокон; теоретический анализ возможности селективного возбуждения и когерентного контроля электронных подболочек атомов инертных газов с помощью импульсов со сверхшироким спектром; улучшение локальности и эффективности волоконно-оптических эндоскопов специальной структуры и использования широкополосного лазерного излучения; разработка схемы лазерной системы для проведения микроспектроскопии комбинационно-го рассеяния света на основе фазовомодулированных импульсов.

Для достижения поставленных целей были решены следующие задачи:

1. Разработан метод генерации импульсов среднего инфракрасного диапазона с длительностью около одного оптического периода в фотоннокристаллическом халькогенидном волокне на основе численного моделирования обобщенного нелинейного уравнения Шредингера.
2. Исследована возможность использования световых импульсов со сверхшироким спектром и активно формируемой фазой для селективного возбуждения, когерентного управления и аттосекундной спектхрографии электронных подболочек многоэлектронных атомных систем. Выполненный анализ эволюции матрицы плотности возбуждаемой сверхкоротким световым импульсом электронной подболочки атомной системы показал, что ключевую роль в формировании нелинейно-оптического отклика такой системы играют явления интерференции различных квантовых каналов электронной динамики. На основе выполненного анализа предложена методика когерентного управления аттосекундной динамикой отдельных электронных подболочек с помощью сверхкоротких лазерных импульсов.
3. Выполнены теоретическое и экспериментальное сравнения одно- и двухфотонного режима волоконно-оптического зондирования тканей мозга, на основе которого было продемонстрировано существенное увеличение локальности зондирования при использовании режима двухфотонного поглощения и повышение эффективности сбора некогерентного флуоресцентного отклика при использовании волокна с двумя оболочками.

4. Предложена схема лазерной системы для проведения мультимодальной нелинейной микроспектроскопии комбинационного рассеяния света. Продемонстрированы преимущества использования управляемых по фазе широкополосных импульсов для проведения спектроскопии когерентного комбинационного рассеяния, высокоэффективной методики ВКР-микроскопии и широкого спектра многофотонных техник микроскопии. Продемонстрирована возможность количественного разделения компонентов смеси с сильно перекрывающимися комбинационными резонансами. Проведен анализ предельной чувствительности методики КАРС- и ВКР-микроспектроскопии биологических тканей в фемто- и пикосекундных режимах работы лазерной системы.

Научная новизна:

1. Показано, что солитонные режимы спектрально-временного преобразования световых импульсов в фотонно-кристаллических волокнах на основе халькогенидных стёкол позволяют осуществить солитонную компрессию импульсов среднего инфракрасного диапазона до длительностей около одного периода поля. Численное моделирование солитонной самокомпрессии импульсов длительностью порядка 100 фс субкиловаттного уровня пиковой мощности в диапазоне длин волн 3.4 – 3.7 мкм показывает возможность формирования импульсов среднего ИК-диапазона длительностью около 10 фс.
2. Световые импульсы со сверхшироким спектром и активно формируемой фазой обеспечивают возможность селективного возбуждения, когерентного управления и аттосекундной спектхронографии электронных подоболочек многоэлектронных атомных систем. Выполненный теоретический анализ показывает, что использование сверхкоротких световых импульсов с непрерывным спектром, перекрывающим диапазон длин волн от 140 до 970 нм, позволяет реализовать селективное возбуждение, когерентное управление и спектхронографический анализ аттосекундной электронной динамики бр-подоболочки атома ксенона.
3. Предложена теоретическая модель для определения области сбора люминесцентного сигнала оптическим волокном в задачах волоконно-оптического зондирования тканей мозга в случае одно- и многофотонного возбуждения. На основании разработанной модели были рассчитаны и экспериментально проверены карты сбора флуоресцентного отклика для волокон с различной структурой.
4. Экспериментально показано трёхкратное увеличение локальности отклика за счёт использования двухфотонного возбуждения люминофора и правильно подобранной архитектуры волокна. В качестве модельного образца исследуемого объекта были использованы алмазные частицы с дефектами типа «азот-вакансия».

5. На основе эксперимента продемонстрировано существенное (на три порядка) увеличение полной эффективности сбора сигнала волокном с использованием второй оболочки по сравнению со сбором только сердцевиной.
6. Экспериментально и теоретически доказано, что при волоконном зондировании рассеивающие свойства среды не влияют на возможность адресоваться к предельно малым областям, в которых характерный размер области сильно меньше длины рассеяния.
7. Применение модулированных по фазе импульсов накачки позволило повысить спектральное разрешение примерно в 17 раз относительно спектрально ограниченных импульсов. Подобная точность делает возможной восстановление концентраций составных частей смеси объемом порядка десятков фемтолитров с отклонением от точного значения, не превышающим нескольких процентов. Для реализованной экспериментальной схемы дана оценка предельной чувствительности методик КАРС- и ВКР-микроспектроскопии биологических тканей в фемто- и пикосекундных режимах работы лазерной системы.

Основные положения, выносимые на защиту:

1. Солитонные режимы спектрально-временного преобразования световых импульсов в фотонно-кристаллических волокнах на основе халькогенидных стёкол позволяют осуществить солитонную компрессию импульсов среднего инфракрасного диапазона до длительностей около одного периода поля. Численное моделирование солитонной самокомпрессии импульсов длительностью порядка 100 фс субкиловаттного уровня пиковой мощности в диапазоне длин волн 3.4 – 3.7 мкм показывает возможность формирования импульсов среднего ИК-диапазона длительностью около 10 фс.
2. Световые импульсы со сверхшироким спектром и активно формируемой фазой обеспечивают возможность селективного возбуждения, когерентного управления и аттосекундной спектхронографии электронных подоболочек многоэлектронных атомных систем. Использование световых импульсов с непрерывным спектром, перекрывающим диапазон длин волн от 140 до 970 нм, позволяет реализовать селективное возбуждение, когерентное управление и спектхронографический анализ аттосекундной электронной динамики бр-подоболочки атома ксенона.
3. Оптоволоконные микроронды на основе микроструктурированных световодов позволяют в одном волокне объединить преимущества, обусловленные малым диаметром сердцевины волокна и его высокой числовой апертурой. В сочетании с методами нелинейно-оптической микроскопии такие волокна обеспечивают сбор оптического сигнала из области объемом менее 50 мкм³, тем самым обеспечивая возможность оптической регистрации отдельных нервных клеток. Микроструктурированные световоды с двойной оболочкой обеспечивают дополнительный

выигрыш эффективности волоконного сбора флуоресцентного сигнала в схемах линейной и нелинейной флуоресцентной микроскопии без потери локальности оптического возбуждения и пространственного разрешения.

Апробация работы. Основные результаты работы докладывались на научных конференциях:

1. *Mitrofanov A. V., Voronin A. A., Sidorov-Biryukov D. A., Mitryukovsky S. I., Fedotov A. B., Serebryannikov E. E., Meshchankin D. V., Shumakova V., Zheltikov A. M., Ultrafast spectroscopy in the mid-infrared: Over the edges. // International Conference on Quantum Technologies. — 12-16 July 2017, Moscow, Russia.*
2. *Федотов И. В., Почечуев М. С., Ивашкина О. И., Рощина М. А., Амитонова Л. В., Торопова К. А., Мецанкин Д. В., Сафронов Н. А., Сидоров-Бирюков Д. А., Федотов А. Б., Анохин К. В., Желтиков А. М., Оптоволоконные нейроинтерфейсы // Первый Российский кристаллографический конгресс. — 21-26 ноября 2016, Москва, Россия.*
3. *Lanin A. A., Ermakova Y. G., Fedotov I. V., Roshchin M. S., Nikitin E. S., Meshchankin D. V., Fedotov A. B., Blakley S., Hemmer P., Scully M. O., Belousov V. V., Zheltikov A. M., Fluorescent-imaging quantitative characterization of single-cell laser thermogenetic neurostimulation // Conference on Quantitative Bioimaging. — 13 – 15 January 2017, College Station, USA.*
4. *Meshchankin D. V., Lanin A. A., Fedotov I. V., Fedotov A. B., Zheltikov A. M., Optical fibers with actively tailored properties for ultrashort pulse generation and fluorescent detection // Workshop and School for Young Scientists on Advanced Photonics and Quantum Optics. — 2-5 August 2017, Moscow, Russia.*
5. *Meshchankin D. V., Voronin A. A., Serebryannikov E. E., Zheltikov A. M., Selective excitation, coherent control and attosecond spectrochronography of electron subshells of atomic systems // Workshop and School for Young Scientists on Advanced Photonics and Quantum Optics. — 2-5 August 2017, Moscow, Russia.*
6. *Fedotov I. V., Blakley S., Lanin A. A., Serebryannikov E. E., Safronov N. A., Becker J., Ermakova Y. G., Sidorov-Biryukov D. A., Belousov V. V., Meshchankin D. V., Fedotov A. B., Kilin S. Y., Sakoda K., Hemmer P., Velichansky V. L., Scully M. O., Zheltikov A. M., Fiber-optic quantum thermometry with a nitrogen–vacancy center in diamond // XV International Conference on Quantum Optics and Quantum Information. — November 20–23, 2017, Minsk, Belarus.*

Публикации. Материалы диссертации опубликованы в 6 печатных работах:

1. *Mitrofanov A. V., Voronin A. A., Sidorov-Biryukov D. A., Mitryukovsky S. I., Fedotov A. B., Serebryannikov E. E., Meshchankin D. V., Shumakova V., Ališauskas S., Pugžlys A., Panchenko V. Y., Baltuška A., Zheltikov A. M.,* Subterawatt few-cycle mid-infrared pulses from a single filament // *Optica*. — 2016. — Vol. 3, no. 3. — P. 299–302.
2. *Meshchankin D. V., Voronin A. A., Zheltikov A. M.,* Fiber sources of subcycle pulses in the mid-infrared: numerical modeling // *Журнал прикладной спектроскопии*. — 2016. — Vol. 83, no. 6–16. — P. 248–249.
3. *Mitrofanov A. V., Voronin A. A., Sidorov-Biryukov D. A., Lanin A. A., Rozhko M. V., Mitryukovsky S., Ivanov A. A., Panchenko V. Y., Stepanov E. A., Meshchankin D. V., Serebryannikov E. E., Fedotov A. B., Shumakova V., Ališauskas S., Pugžlys A., Baltuška A., Zheltikov A. M.,* Nonlinear optics in the mid-infrared: new morning // *Journal of Physics: Conference Series*. — 2017. — Vol. 793, no. 1. — P. 012019 (1-5).
4. *Meshchankin D. V., Voronin A. A., Zheltikov A. M.,* Fiber-optic soliton self-compression to subcycle pulse widths in the mid-infrared // *Laser Physics Letters*. — 2017. — Vol. 14, no. 12. — P. 125401 (1-5).
5. *Pochechuev M. S., Fedotov I. V., Ivashkina O. I., Roshchina M. A., Meshchankin D. V., Sidorov-Biryukov D. A., Fedotov A. B., Anokhin K. V., Zheltikov A. M.,* Reconnectable fiberscopes for chronic in vivo deep-brain imaging // *Journal of Biophotonics*. — 2017. — URL: <http://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1002/jbio.201700106/full>.
6. *Мещанкин Д. В., Воронин А. А., Серебрянников Е. Е., Желтиков А. А.,* Селективное возбуждение, когерентное управление и аттосекундная спектрохронография электронных подболочек атомных систем // *Письма в ЖЭТФ*. — 2017. — Т. 106, № 10. — С. 621—626.

Объем и структура работы. Диссертация состоит из введения, четырех глав и заключения и приложения. Полный объем диссертации **118** страниц текста с **40** рисунками и **1** таблицей. Список литературы содержит **135** наименований.

Содержание работы

Во **введении** обоснована актуальность диссертационной работы, сформулирована цель и аргументирована научная новизна исследований, показана практическая значимость полученных результатов и представлены выносимые на защиту научные положения.

В **первой главе** рассматриваются различные методы формирования характеристик оптических волокон и примеры задач, для решения которых они используются. Приводится краткая классификация оптических волокон по геометрии их поперечного сечения. Рассматриваются волокна со ступенчатым профилем показателя преломления, с градиентным, а также микроструктурированные

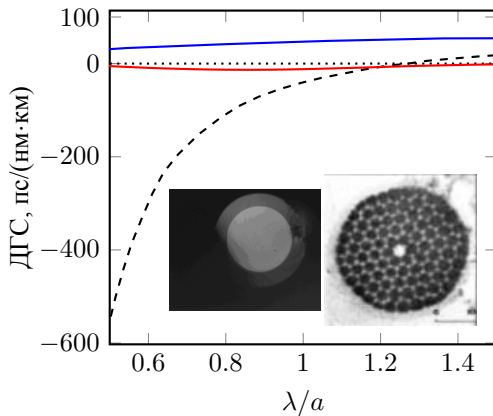
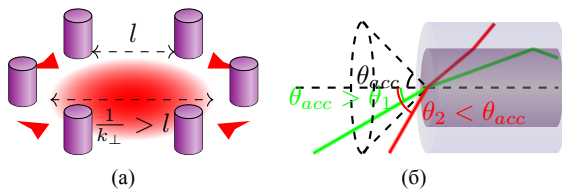
волокна в общем и фотонно-кристаллические как частный случай. Также рассматриваются перетянутые волокна. Выполняется сравнение наиболее распространённых оптических стёкол, используемых в среднем инфракрасном диапазоне, друг с другом и с плавленым кварцем. Приводится описание фторидных, фтороиндиевых, теллуритовых и халькогенидных стёкол.

Также рассматривается зависимость характеристик волокна от его материала и геометрии. Рассматриваются спектральный профиль дисперсии групповых скоростей, поперечный профиль поля и числовая апертура. Для профиля дисперсии показываются ограничения, накладываемые волокнами со ступенчатым показателем преломления, и демонстрируется, как использование микроструктурированных волокон позволяет эти ограничения снять. В частности, в качестве примера приводится смещение длины волны нулевой дисперсии в коротковолновую часть спектра за счёт уменьшения диаметра сердцевин фотонно-кристаллического волокна с гексагональным расположением воздушных полостей. Для поперечного профиля поля описывается различие в критерии удержания поля волокном для волокон со ступенчатым показателем преломления и фотонно-кристаллических. Показывается, что фотонно-кристаллические волокна позволяют создание одномодовых световодов с широкой сердцевиной. Наконец, показывается зависимость числовой апертуры волокна от его параметров. Также перечисляются различные определения числовой апертуры для случаев, когда определение её напрямую не представляется возможным.

За счёт столь широких возможностей по формированию характеристик оптических волокон они становятся идеальным инструментом для решения многих задач. Например, в задачах нейрофотоники волокна обеспечивают минимально инвазивный оптический зонд, способных совмещать в себе различные функции, например, доставки излучения для возбуждения люминесценции и сбора люминесцентного сигнала. Различные методы исследования при этом требуют сильно разных волноводов; в то же время фотонно-кристаллические волноводы позволяют объединить в одном зонде преимущества, обусловленные малым диаметром сердцевин волокон и его высокой числовой апертурой.

Другим примером использования волокон является получение импульсов со сверхшироким диапазоном частот. Использование волноводов существенно упрощает этот процесс, так как излучение получает возможность нелинейно взаимодействовать на протяжении существенного расстояния. Также, за счёт управления дисперсией волокна, становится возможным выбор того, какие спектральные компоненты будут взаимодействовать при растространении, в частности, будет ли дисперсия волновода на заданной длине волны нормальной или аномальной, что играет решающую роль во многих механизмах, определяющих генерацию сверхширокого спектра.

Существенно менее очевидным примером использования волокон является получение аттосекундных волновых форм. В то время как сам процесс генерации высших гармоник не использует волноводные элементы, получение излучения накачки для его реализации существенно упрощается с использованием



(в)

Рис. 1: Зависимость характеристик волокна от его материалов и геометрии. (а) Условия удержания моды фотонно-кристаллическим волокном. (б) Геометрическое определение числовой апертуры. Зелёной и красной ломаными линиями показаны траектории лучей, соответственно, ведомых и не ведомых световодом. θ_{acc} – максимальный угол заведения. (в) Сравнение волноводной дисперсии волокна со ступенчатым показателем преломления (красная кривая) и фотонно-кристаллического (синяя). Пунктирной линией показана дисперсия плавленного кварца.

нелинейно-оптических волокон. Одним из наиболее распространённых методов генерации одиночных аттосекундных импульсов является использование одно-периодных импульсов в качестве накачки. В оптических волокнах их получение может быть обеспечено за счёт создания условий для возникновения оптических ударных волн.

Вторая глава посвящена математическим моделям, используемым в данной диссертационной работе для численного расчёта распространения излучения в оптических волокнах, биологической ткани, а также взаимодействия сверхкоротких импульсов с атомами инертных газов.

В первом параграфе представлена математическая модель распространения лазерных импульсов в оптическом волокне на основе обобщённого нели-

нейного уравнения Шредингера

$$\frac{\partial A}{\partial z} = LA + NL[A] + PL[A], \quad (1)$$

где $A = A(t, z)$ – скалярная комплексная амплитуда электрического поля импульса в волокне, z – пространственная координата вдоль оси волокна, $t = t_1 - z/V$ – время в системе отсчета, движущейся вместе с импульсом, t_1 – время в лабораторной системе отсчета, LA – оператор дисперсии, $NL[A]$ – оператор, описывающий нелинейный отклик вещества и $PL[A]$ – оператор отклика индуцированных ионизацией свободных электронов. Моделирование этого уравнения выполняется методом расщепления по физическим факторам. На каждом вычислительном шаге по переменной уравнения отдельно искалось решение уравнения, содержащего только линейную часть, которое в дальнейшем использовалось в качестве начального условия для уравнения, которое содержит только нелинейно-оптические отклики (вещества и свободных носителей). Это уравнение, в свою очередь, решалось с помощью метода Рунге-Кутты 4 порядка на каждом шаге, и результат использовался как начальное условие для уравнения с только линейной частью.

Нелинейный отклик вещества включает в себя как мгновенную (электронную), так и инерционную (связанную с колебаниями молекул) нелинейности. Оператор оптического отклика свободных носителей заряда основан на модели Друде, и включает в себя члены, отвечающие за отклик свободных электронов и поглощение излучения при фотоионизации.

Результатом построений, выполненных в этом разделе, является численная модель, позволяющая решать одномерные задачи распространения лазерного излучения в среде. Она позволяет воспроизводить практически все явления, не требующие рассмотрения динамики поперечного профиля пучка. За счёт этого она является незаменимой при анализе распространения лазерного излучения в волокне в тех случаях, когда основной задачей является рассмотрение спектральных или временных преобразований импульса.

Второй параграф описывает упрощённую физическую модель распространения излучения из волоконного зонда и люминесцентного отклика. Для люминесцентного сигнала, собранного волоконным зондом в случае однофотонного возбуждения в предположении слабо поглощающей однородной люминесцирующей среды и отсутствии рассеяния полная мощность может быть оценена с помощью аналитического выражения

$$P \propto \iint \phi(r, z) \cdot I(r, z) r dr dz = \int_0^\infty dz \int_0^\infty \phi(r, z) r dr, \quad (2)$$

где z и r – цилиндрические координаты, $I(r, z) = \frac{P}{S} \propto \frac{A \cdot A^*}{S}$ – интенсивность возбуждающего излучения. $\phi(r, z) = \frac{1}{2} [1 - \cos(\theta_{max})]$ – эффективность сбора сигнала волокном, которая определяется отношением телесного угла ω к полному телесному углу испускания флуоресцентных биомолекул 4π . В случае многомодового волокна все расходящиеся из него моды можно заменить излучением

с усреднёнными эффективными параметрами диаметра моды и расходимости и записать его в виде $f(r, z) = a_m^2 (z \tan \theta_d + a_m)^{-2}$, где a_m – эффективный радиус моды, θ_d – эффективный угол расходжения. Максимальный угол расходжения точно равен углу полного внутреннего отражения θ_f для данного волокна, если люминесцентный источник находится достаточно близко к торцу волокна. В этом случае $\sin(\theta_f) = \frac{NA}{n_0}$, где n_0 – показатель преломления среды, $NA = \sqrt{n_{core}^2 - n_{clad}^2}$ – численная апертура волокна. Для источника, находящегося достаточно далеко от торца, максимальный угол расходжения определяется положением источника относительно торца:

$$\sin(\theta_{1max}) = \frac{r - d/2}{\sqrt{z^2 + (r - d/2)^2}} \quad \text{и} \quad \sin(\theta_{2max}) = \frac{r + d/2}{\sqrt{z^2 + (r + d/2)^2}}, \quad (3)$$

где d – диаметр области волокна (сердцевины или внутренней оболочки), в которую осуществляется сбор флуоресцентного сигнала.

Интегрируя уравнение (2), определяется мощность собранного сигнала для заданного волокна в зависимости от координат z и r , тем самым определив область, с которой эффективно собирается сигнал.

Для получения выражения для многофотонного случая уравнение (2) представляется в виде

$$P \propto \sigma \eta N I_0 \int_0^\infty dz \int_0^\infty \phi(r, z) f(r, z) r dr, \quad (4)$$

где σ – это сечение поглощения, η – квантовый выход флуоресценции, N – плотность центров флуоресценции, которая предполагается постоянной для исследуемого объема, r – поперечная координата, отсчитываемая от оси волокна, z – продольная координата, измеряемая от выходного торца волоконного зонда, I_0 – интенсивность излучения накачки в центре пучка на выходном торце волоконного зонда, то есть при $r = 0$, $z = 0$. Обобщение этого выражения на случай многофотонного возбуждения приводит к выражению

$$P_m \propto \sigma_m \eta N I_0^m \int_0^\infty dz \int_0^\infty \phi(r, z) [f(r, z)]^m r dr, \quad (5)$$

где m – число фотонов в многофотонном процессе поглощения, σ_m – сечение m -фотонного поглощения. Наконец, для учёта влияния рассеивающих свойств среды в уравнения (4) и (5) вносится фактор $T(r, z)$, определяющий затухание вследствие эффектов рассеяния и поглощения. Таким образом, указанные уравнения принимают форму, соответственно

$$P \propto \sigma \eta N I_0 \int_0^\infty dz \int_0^\infty \phi(r, z) f(r, z) T^2(r, z) r dr \quad (6)$$

и

$$P_m \propto \sigma_m \eta N I_0^m \int_0^\infty dz \int_0^\infty \phi(r, z) [f(r, z) T_p(r, z)]^m T_f(r, z) r dr. \quad (7)$$

Во втором уравнении T_p учитывает рассеяние накачки, T_f – флуоресцентного отклика. Фактор $T(r, z)$ моделируется с помощью модели диффузного рассеяния Кубелки-Мунка $T_{KM} = (\mu_s z + 1)^{-1}$, где $\mu_s = l_S^{-1}$, l_S – длина рассеяния.

Таким образом, была построена сравнительно простая модель распространения и сбора волокном люминесценции среды, возбуждаемым одно- или многофотонным способом. Несмотря на свою простоту, она, как будет показано позже, хорошо совпадает с экспериментальными данными, что позволяет использовать её в качестве метода теоретической оценки эффективности сбора люминесцентного отклика волокнами с различными характеристиками.

В третьем параграфе описывается численная модель, на основе которой в дальнейшем выполняется моделирование взаимодействия лазерного излучения с атомами электронной оболочкой атома. Она основана на уравнении Лиувилля

$$i\hbar \frac{\partial \rho(t)}{\partial t} = [H_0, \rho(t)] + [V(t), \rho(t)] - \rho(t)/\tau_r, \quad (8)$$

где ρ – матрица плотности, H_0 – гамильтониан системы в отсутствие поля, d – дипольный момент, $E(t)$ – электрическое поле, $[\cdot]$ – скобки Пуассона, τ_r – время дефазировки. Предполагая, что изменение населённости уровней мало относительно максимально возможного значения, к этому уравнению применяется теория возмущений, в результате чего оно распадается на две системы: описывающую импульс накачки и пробный импульс. Решение этих систем выполняется численно с помощью метода Рунге-Кутты 4 порядка. На основе рассчитанной матрицы плотности получается нелинейная поляризация и поглощение пробного импульса.

Также в третьем параграфе описывается метод построения углового профиля электронной плотности орбиталей ксенона. Для анализа волновой функции возбуждённой подоболочки рассчитывается плотность вероятности

$$Q(r, \theta) = \sum_{k, k'} \rho_{kk'} \varphi_k^* \varphi_{k'}, \quad (9)$$

суммирование производится по всем состояниям бр-подоболочки ксенона. Одноэлектронные волновые функции представляются в виде произведения радиальной и угловой части:

$$\varphi_{n,l,m_l,j_c,m_{j_c},m_S}^{(e)} = \frac{R_{n,l}(r)}{r} \psi_{n,l,m_l,j_c,m_{j_c},m_S}^e(\theta, \phi), \quad (10)$$

где n и l – главное и орбитальное квантовые числа, r, θ, ϕ – радиальная и угловые координаты, j_c – полный угловой момент, m_{j_c}, m_S, m_l – магнитные квантовые числа, $R_{n,l}(r)/r$ – радиальная часть волновой функции, находящаяся путём решения уравнения Шредингера. На основе уравнений (9) и (10) получаются выражения для каждой из орбиталей. Для рассматриваемых состояний бр подоболочки радиальная часть волновой функции идентична и входит как общий множитель.

Модель, построенная в данном разделе, позволяет связать динамику матрицы плотности с угловыми профилями орбиталей атома. В силу того, что динамика матрицы плотности также неразрывно связана и с поглощением импульса, взаимодействующего с атомом, модель реализует задачу визуализации эволюции углового профиля орбитали по данным о спектре поглощения. Это, в свою очередь, открывает возможность селективного возбуждения, когерентного управления и аттосекундной спектхронографии многоэлектронных атомных систем.

Четвёртый параграф описывает теоретические основы идеи спектральной фокусировки в процессе когерентного комбинационного рассеяния света. Пробное поле на частоте ω_{pr} неупруго рассеивается на комбинационных колебаниях с собственной частотой Ω_R , которые когерентно возбуждены оптимизированными по спектру и времени оптическими полями накачки, что в результате приводит к возникновению сигнала когерентного антистоксова рассеянного света на частоте $\omega_{as} = \omega_{pu} + \Omega_R$. Для эффективного возбуждения комбинационной моды оптические поля накачки должны обладать достаточной интенсивностью спектральных компонент с частотами ω_{pu} и $\omega_{st} = \omega_{pu} - \Omega_R$. Каноническая техника КАРС подразумевает реализацию резонансного возбуждения мод при помощи спектрально изолированных квазимонохроматических пучков накачки и стока с частотами ω_{pu} и ω_{st} , соответственно. В предлагаемой схеме падающие на образец поля представляют собой пару широкополосных лазерных импульсов с одинаковым линейным chirпом $\phi(t) = \alpha t^2$ и с центральными частотами $\omega_{pu}(\eta_1) = \omega_1 + 2\alpha\eta_1$ и $\omega_{st}(\eta_2) = \omega_2 + 2\alpha\eta_2$, где η_1 и $\eta_2 = \eta_1 + \tau$ – время в бегущей системе отсчета, связанное с импульсом накачки, и τ – задержка между возбуждающими импульсами. Спектр оптического возбуждения такой пары импульсов содержит компоненты на разностной частоте $\Omega_m(\tau) = (\omega_1 - \omega_2) - 2\alpha\tau$, контролируемой задержкой τ .

В этом разделе была с теоретической точки зрения описана идея спектральной фокусировки в процессе когерентного комбинационного рассеяния света с использованием линейно chirпированных импульсов. Показан основной способ контроля спектра оптического возбуждения и введён формализм, используемый в дальнейшем для сопоставления экспериментальных результатов с теоретическими расчётами.

Третья глава описывает использование волокон для сжатия импульсов в среднем инфракрасном диапазоне частот и использование сверхшироких спектров для зондирования и селективного возбуждения электронных подболочек инертных газов.

В первом параграфе даётся описание условий и результатов численного эксперимента по сжатию импульса. В качестве материала волокна выбрано халькогенидное стекло по причине его высокой нелинейности и широкого окна пропускания. Недостатком этого материала является длина волны нулевой дисперсии, находящаяся в районе 7 мкм. Для того, чтобы сместить её в коротковолновую сторону спектра, выбрана геометрия поперечного профиля волокна в виде гексагонально расположенных воздушных полостей, что позволяет получить

длину волны нулевой дисперсии на 3 мкм. В качестве накачки используются импульсы длительностью 85 фс на длине волны около 3.1 мкм с переменной мощностью от 250 до 1000 Вт.

Также выполнена оценка минимально допустимой длины волокна, основанная на критерии малости интенсивности вытекающей моды. Обычно влияние этих мод не учитывается в силу их быстрого затухания, однако, в данном случае длина волновода сравнительно мала (менее 1 см). Расчёт выполняется для волокна со ступенчатым профилем показателя преломления, аппроксимирующего используемое фотонно-кристаллическое. Контраст мощностей вытекающей и фундаментальной мод $A = P_{LP_{01}}/P_{LM}(z_0)$ ($P_{LP_{01}}$ – мощность фундаментальной моды, P_{LM} – мощность вытекающей моды, z_0 – расстояние от входа в волокно) составляет 10^6 . Пренебрегая дисперсией и нелинейностью, получается выражение для определения длины z_0 , на которой достигается желаемый контраст мод A :

$$\frac{z_0}{\rho} = \frac{1}{\alpha\rho} \ln \frac{A(1-\eta)}{\eta}, \quad (11)$$

где ρ – радиус сердцевинки и η – эффективность заведения излучения в фундаментальную моду. Для заданных параметров волокна эта длина составляет 0.6 мм, из чего следует, что влияние вытекающих мод на сигнал на выходе волокна с большей длиной можно считать пренебрежимо малым.

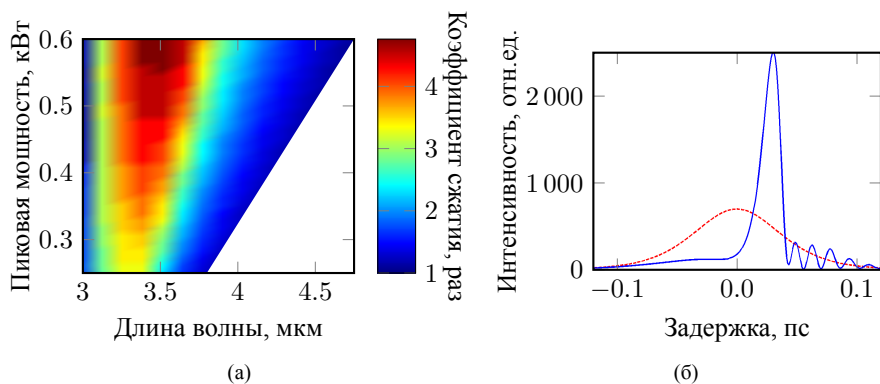


Рис. 2: (а) Зависимость коэффициента сжатия от длины волны и пиковой мощности. Вырезана область отсутствия компрессии. (б) Временной профиль импульса после сжатия (синяя кривая) и до сжатия (красный пунктир) для максимального коэффициента сжатия. Длительность исходящего импульса 17 фс, коэффициент сжатия 5.

На основе результатов численного моделирования была построена зависимость коэффициента сжатия импульса, то есть, отношения длительности начального импульса к длительности конечного, в зависимости от центральной длины волны излучения и пиковой мощности (рис. 2а). С помощью этих данных бы-

по найденно сочетание параметров, обеспечивающее максимальное сжатие, и для них получены характеристики выходного импульса (рис. 2б). Минимальная длительность импульса, полученного с помощью волоконного компрессора в данных условиях, составила 17 фс, что соответствует коэффициенту сжатия 5 и примерно 1.5 периодам поля. Центральная длина волны входного импульса при этом составляла 3.5 мкм, пиковая мощность – 600 Вт, длина волокна 6.4 мм.

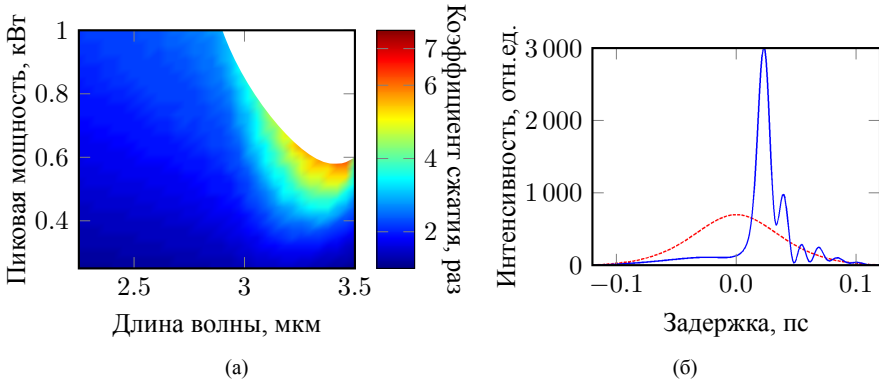


Рис. 3: (а) Зависимость коэффициента сжатия от длины волны и пиковой мощности. Вырезана область отсутствия компрессии в кристалле. (б) Временной профиль импульса после сжатия (синяя кривая) и до сжатия (красный пунктир) для максимального коэффициента сжатия. Длительность исходящего импульса 11.5 фс, коэффициент сжатия 7.4.

Дополнительно было выполнено моделирование сжатия импульса в гибридной схеме, когда после волоконного компрессора дополнительно был установлен кристалл CaF_2 , играющий роль дополнительного диспергирующего элемента, призванного компенсировать набег фаз, вызванный распространением импульса в волокне. Для минимизации нелинейных эффектов в кристалле принималось, что между волокном и кристаллом пучок дифрагирует, в результате чего эффективная площадь моды в кристалле существенно больше, чем в волокне, и составляет 1 мм^2 . Минимальная длительность импульса, полученного этим методом, составила 11.5 фс, что соответствует коэффициенту сжатия 7.4 и примерно совпадает с периодом поля. Центральная длина волны входного импульса составляла 3460 нм, пиковая мощность – 613 Вт, длина волокна 6 мм и толщина кристалла 1 мм.

Таким образом, проведённые расчёты демонстрируют возможность сжатия импульсов среднего инфракрасного диапазона до длительностей около одного периода поля с использованием только твердотельных элементов, а именно халькогенидного фотонно-кристаллического волокна и нелинейного кристалла CaF_2 . Помимо этого, показано, что подобное сжатие может быть достигнуто для

длины волокна и толщины кристалла порядка единиц миллиметров даже для импульсов малой, порядка десятков пикоджоулей, энергии.

Во втором параграфе обсуждается один из путей решения задачи селективного возбуждения, когерентного управления и аттосекундной спектхронографии электронных подоболочек многоэлектронных атомных систем на основе использования разработанных в последние годы источников световых импульсов со сверхшироким спектром и активно формируемой фазой. Проведённый анализ эволюции матрицы плотности возбуждаемой сверхкоротким световым импульсом электронной подоболочки атомной системы показывает, что ключевую роль в формировании нелинейно-оптического отклика такой системы играют явления интерференции различных квантовых каналов электронной динамики. На основе выполненного анализа предложена методика когерентного управления аттосекундной динамикой отдельных электронных подоболочек с помощью сверхкоротких лазерных импульсов.

Основная идея предлагаемого подхода связана с использованием сверхкоротких световых импульсов со сверхшироким спектром для селективного возбуждения, когерентного управления и аттосекундной спектхронографии электронных подоболочек многоэлектронного атома. В качестве примера такой атомарной системы рассматривается атом ксенона. Спектр светового импульса, используемого для селективного возбуждения и разрешаемого во времени зондирования атомной системы, определен таким образом, чтобы соответствовать реальному спектру сверхкоротких импульсов, получаемых на основе технологии когерентного сложения спектрально уширенных сверхкоротких импульсов со смещённой центральной частотой, и перекрывает диапазон длин волн от 140 до 1000 нм.

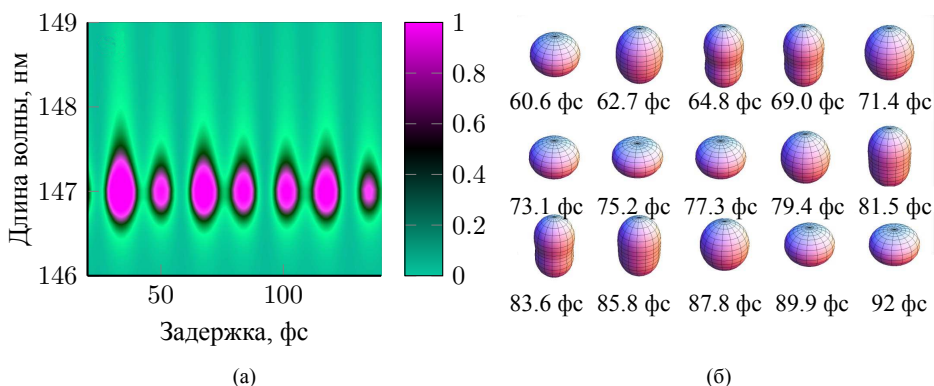


Рис. 4: (а) Зависимость дифференциального поглощения $\Delta\sigma(\omega, \tau)$ от времени задержки τ между зондирующим импульсом и импульсом накачки. (б) Динамика угловой зависимости волновой функции бр-подоболочки атома ксенона.

Основные интерферирующие квантовые каналы, дающие вклад в процесс селективного возбуждения атома ксенона, имеют следующий вид. Четыре фотона импульса накачки приводят к когерентному возбуждению электронных состояний $6p^2[1/2]_0$, $6p^2[3/2]_2$, $6p^2[5/2]_2$. Зондирующий лазерный импульс приводит к возникновению нелинейной поляризации и наведённого поглощения на частоте перехода $5p-6s$. Возникающие в результате интерференции трёх квантовых каналов осцилляции нелинейной поляризации, приводят к осциллирующей зависимости наведённого поглощения в функции времени задержки между зондирующим и возбуждающим лазерными импульсами.

На (рис. 4а) представлена зависимость дифференциального поглощения $\Delta\sigma(\omega, \tau) = \sigma(\omega) - \sigma_0(\omega)$, испытываемого зондирующим импульсом ($\sigma(\omega)$ и $\sigma_0(\omega)$ – спектры поглощения зондирующего импульса в присутствии и в отсутствие импульса накачки), от времени задержки между зондирующим импульсом и импульсом накачки. Результаты расчётов показывают, что форма спектра $\Delta\sigma(\omega, \tau)$ позволяет восстановить динамику волновой функции исследуемой электронной подболочки (рис. 4б).

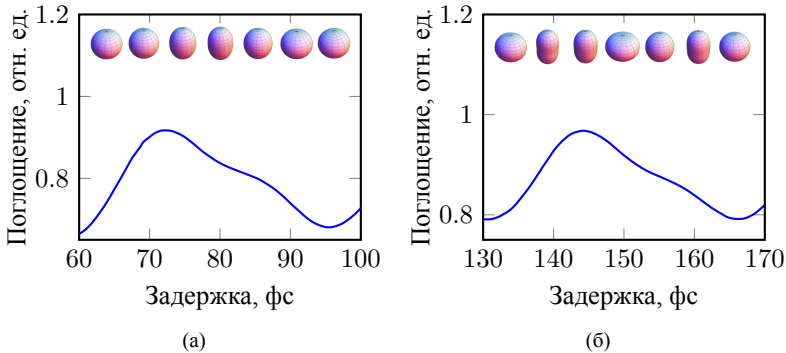


Рис. 5: Зависимость дифференциального наведённого поглощения на длине волны 147 нм от времени задержки между зондирующим импульсом и импульсом накачки и динамика угловой зависимости волновых функций $6p$ -подболочки ксенона. (а) Погашены колебания когерентности с периодом 17 фс ($6p^2[5/2]_2 - 6p^2[1/2]_0$). (б) Погашены все колебания когерентности, кроме колебаний с периодом 36 фс ($6p^2[3/2]_2 - 6p^2[1/2]_0$).

Для того, чтобы селективно управлять возбуждением уровней, вместо одного импульса накачки используется два с задержкой в половину периода колебаний когерентности, которую требуется исключить из моделирования. Колебания когерентности имеют вид медленно затухающей гармонической функции от времени с фиксированной начальной фазой. Описанная выше пара импульсов, таким образом, возбуждает две гармонические функции в противофазе друг к другу, вызывая гашение колебаний. При необходимости полностью погасить

осцилляции более одной когерентности необходимо использовать два импульса с такой задержкой, при которой все когерентности одновременно находятся в противофазе к начальному состоянию. На рис. 5а и 5б показаны два примера подобного гашения осцилляций. На рис. 5а показаны зависимость коэффициента поглощения на длине волны 147 нм и угловые профили электронной плотности при погашении колебания когерентности $6p^2[5/2]_2 - 6p^2[1/2]_0$. На рис. 5б приводятся аналогичные данные для случая, когда погашены все колебания когерентностей, кроме $6p^2[3/2]_2 - 6p^2[1/2]_0$.

Таким образом, световые импульсы со сверхшироким спектром и активно формируемой фазой обеспечивают возможность селективного возбуждения, когерентного управления и аттосекундной спектхронографии электронных оболочек многоэлектронных атомных систем. Выполненный в настоящей работе анализ показывает, что использование сверхкоротких световых импульсов с непрерывным спектром, перекрывающим диапазон длин волн от 140 до 970 нм, позволяет реализовать селективное возбуждение, когерентное управление и спектхронографический анализ аттосекундной электронной динамики бр-подоболочки атома ксенона.

В **четвертой главе** приведено описание подробного теоретического и экспериментального исследования влияния различных архитектур волокна на эффективность и локальность сбора некогерентного люминесцентного отклика исследуемой среды в случае одно- и двухфотонного возбуждения. Также рассматривается система для проведения спектро-, микро- и эндоскопии когерентного комбинационного рассеяния света на базе лазерного генератора сверхкоротких импульсов.

В первом параграфе рассматривается применение волокон для возбуждения и сбора люминесцентного отклика. Для каждого типа волокна по результатам численного моделирования строилась зависимость функции $\psi(r, z) = \phi(r, z)I(r, z)$, которая позволяет отобразить эффективность и локальность сбора, от координат r и z . На этом этапе все расчёты проводились для однофотонного случая (длина волны 532 нм) в предположении отсутствия ослабления излучения.

Первая пара сравниваемых волокон (рис. 6а–6б) имела ступенчатый профиль показателя преломления, одинаковую численную апертуру (0.22) и отличающиеся примерно в 2 раза диаметры сердцевин (90 мкм и 50 мкм). По результатам моделирования характерная глубина, с которой собирается 80% флуоресцентного отклика, составляла, соответственно, 370 и 214 мкм. При этом собираемая мощность в первом случае была в 2.5 раз выше, чем во втором: $P \propto 0.15\Phi P_0$ и $P \propto 0.06\Phi P_0$, где Φ – квантовый выход флуоресценции, постоянная характеризующая флуоресцентный краситель, а P_0 – общая мощность накачки. Таким образом, для максимизации сбора флуоресцентного отклика как по объёму, так и по мощности необходимо увеличивать радиус сердцевин волоконного зонда.

Вторая пара волокон (рис. 6в–6г) была выбрана для сравнения волокна со ступенчатым профилем показателя преломления и микроструктурированного

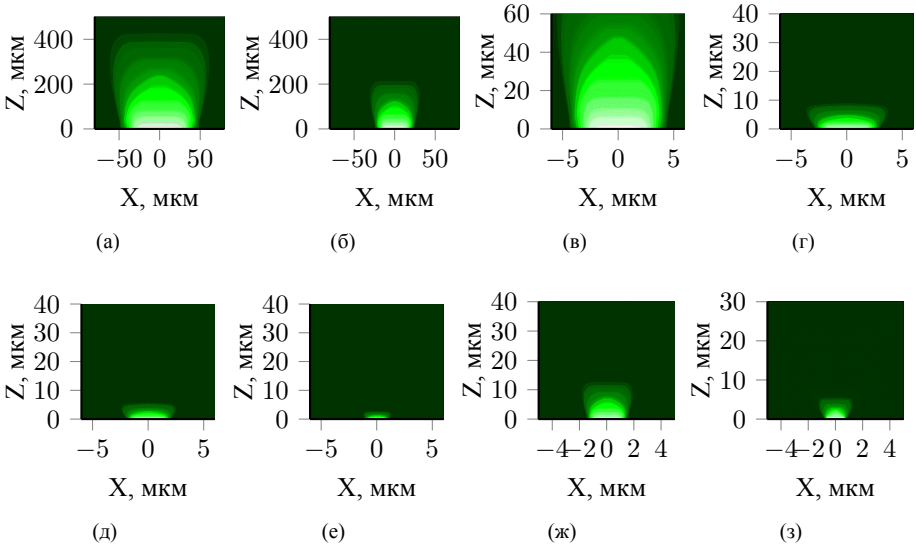


Рис. 6: Карты функции $\psi(r, z)$, рассчитанные для расположенных в воздухе волоконных зондов с различными диаметрами сердцевины a_0 и числовой апертурой NA : (а) $a_0 = 90$ мкм, $NA = 0.22$; (б) $a_0 = 50$ мкм, $NA = 0.22$; (в) $a_0 = 9$ мкм, $NA = 0.1$; (г) $a_0 = 6$ мкм, $NA = 0.6$; (д) $a_0 = 4$ мкм, $NA = 0.6$; (е) $a_0 = 2$ мкм, $NA = 0.6$; (ж) $a_0 = 3$ мкм, $NA = 0.22$; (з) $a_0 = 1.4$ мкм, $NA = 0.3$.

волокна. Первое волокно имело диаметр сердцевины 9 мкм и численную апертуру 0.1, второе – 6 мкм и 0.6, соответственно. Характерная глубина сбора в этом случае составила 60 мкм для первого волокна и 12 мкм для второго, в то время как мощность собранного отклика имела вид $P \propto 0.006\Phi P_0$ и $P \propto 0.025\Phi P_0$, соответственно. По результатам сравнения этой пары волокон можно утверждать, что использование МС волокон даёт как увеличение мощности собранного флуоресцентного отклика даже при малых размерах сердцевины, так и увеличение локальности.

В третьей паре (рис. 6д–6е) сравнивались два МС волокна с различными диаметрами сердцевины (4 мкм и 2 мкм) и одинаковыми числовыми апертурами (0.6). Характерная глубина сбора для каждого из волокон составила 8 и 4 мкм, мощность собранного флуоресцентного отклика – $P \propto 0.027\Phi P_0$ и $P \propto 0.011\Phi P_0$.

Наконец, в качестве четвёртой пары (рис. 6ж–6з) были выбраны волокна, из которых состоят коммерчески доступные пучки. Это МС волокна с диаметрами сердцевины 3 и 5 мкм и числовой апертурой 0.22. Характерная глубина сбора в их случае составляет 18 и 28 мкм, мощность собранного флуоресцентного сигнала $P \propto 0.0028\Phi P_0$ и $P \propto 0.0056\Phi P_0$.

Была исследована дополнительная возможность повышения локальности волоконного зондирования, связанная с двухфотонным возбуждением. Для это-

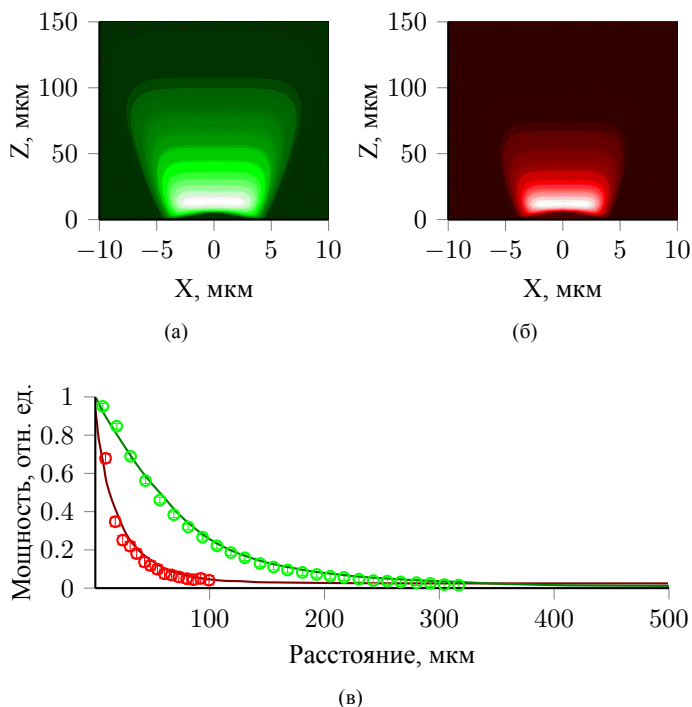


Рис. 7: Карты функции $\psi_m(r, z)$ для (а) однофотонного с длиной волной накачки 532 и (б) двухфотонного ($m = 2$) с длиной волной накачки 1064 оптического зондирования тканей мозга с учётом рассеяния с помощью волоконного эндоскопа. (в) Результаты экспериментов (точки) и их сравнение с теоретическим расчетом (линии) локальности волоконно-оптического зондирования в случае двухфотонного (красный цвет) и однофотонного (зеленый цвет) возбуждения флуоресценции в тканях мозга. Параметры волоконного эндоскопа: сердцевина $\rho = 9$ мкм, $NA = 0.16$, сбор оболочкой с $\rho = 60$ мкм, $NA = 0.6$. Коэффициент рассеяния $\mu_S \approx 11 \text{ мм}^{-1}$ для лазерного излучения 532 нм и $\mu_S \approx 6 \text{ мм}^{-1}$ для 1064 нм.

го была построена экспериментальная схема, обеспечивающая последовательное однофотонное и двухфотонное возбуждение модельного люминофора – флуоресцентных маркеров на основе частиц алмаза с дефектами типа «азот-вакансия». Для накачки использовалось излучение лазеров на длине волны 1040 нм и 532 нм. В качестве волоконных зондов использовались стандартное телекоммуникационное волокно с диаметром сердцевины 9 мкм, МС волокно с диаметром сердцевины 2.5 мкм и числовой апертурой 0.6 и телекоммуникационное волокно с диаметром сердцевины 9 мкм, имеющее возможность сбора излучения при помощи оболочки диаметром 120 мкм.

Для количественной оценки уменьшения характерной глубины сбора волоконно-оптического зондирования в режиме двухфотонного поглощения

были, аналогично однофотонному случаю, построены зависимости функции, характеризующей локальность и эффективность сбора, от координат. Расчёты выполнялись как в случае отсутствия рассеяния, так и для сильно рассеивающей среды. В результате было показано, что, несмотря на большой диаметр сердцевины, по которой осуществляется возбуждение, и оболочки, собирающей флуоресцентный отклик, достигается сильное ограничение области сбора волоконно-оптического зондирования. Таким образом, двухфотонное возбуждение флуоресценции позволяет существенно повысить локальность волоконно-оптического зондирования. Было также выполнено сравнение расчётных данных с экспериментом.

По результатам проведённых исследований была показана возможность объединения в одном микроструктурированном волокне преимуществ, обусловленных малым диаметром сердцевины и высокой числовой апертурой. Микроструктурированные световоды с двойной оболочкой обеспечивают дополнительный выигрыш эффективности волоконного сбора флуоресцентного сигнала в схемах линейной и нелинейной флуоресцентной микроскопии без потери локальности оптического возбуждения и пространственного разрешения.

Во втором параграфе описывается оптическая система для проведения спектро-, микро- и эндоскопии когерентного комбинационного рассеяния света на базе лазерного генератора сверхкоротких импульсов, использующая оптическое волокно с активно формируемыми характеристиками для их доставки к цели. Отличительной особенностью этой системы является возможность использования как спектрально ограниченных, так и модулированных по фазе импульсов без изменения других параметров.

В исследованиях по фемтосекундной микроспектроскопии комбинационного рассеяния света длина волны накачки составляла 824 нм, а стоково излучение перестраивалось в диапазоне от 1040 до 1200 нм. При использовании спектрально ограниченных импульсов длительностью около 160 фс был реализован классический подход сканирования стоковой волны по частоте. В таком случае спектральное разрешение методики не лучше 100 см^{-1} , что не позволяет достоверно различать спектры близких по химическому составу веществ.

При использовании модулированных по фазе импульсов длительность импульсов накачки и стока составляла, соответственно, 3.7 и 3.2 пс. Оба импульса имели одинаковый чирп 2.9 пс^{-2} , сформированный с помощью решёточных стретчеров. Изменяя расстояние между дифракционными решётками, можно управлять наведённым линейным чирпом, таким образом подстраивая спектральное разрешение как под задачи быстрой визуализации веществ с широкими линиями, так и спектрального разделения компонент с перекрывающимися резонансами. Спектральное разрешение при этом, при условии идеальной линейной модуляции, составляет 6.1 см^{-1} . Таким образом, аккуратное управление фазой импульсов позволило повысить его приблизительно в 17 раз со 100 см^{-1} до 6 см^{-1} , что позволяет достоверно различать такие схожие материалы, как полистирол и толуол, отличающиеся всего одним атомом углерода, по ВКР-спектру (рис. 8а).

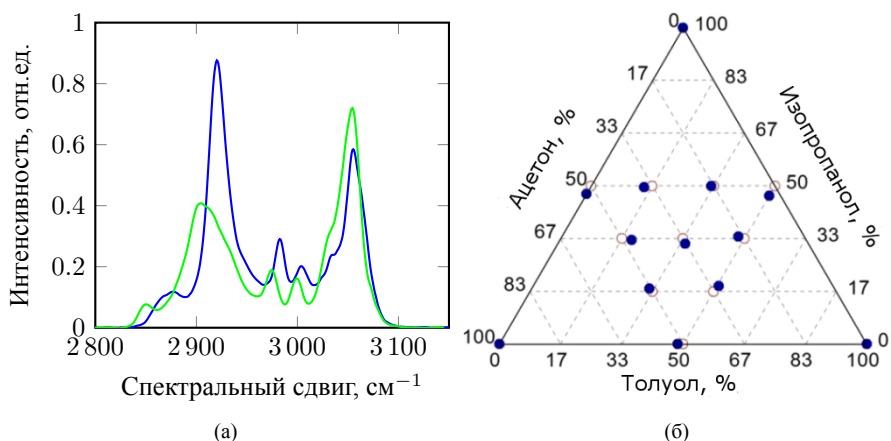


Рис. 8: (а) ВКР-спектры высокого разрешения полистирола (зеленая линия) и толуола (синяя). Погрешность измерений мала по сравнению с масштабом графика. (б) Экспериментально измеренные относительные концентрации химических веществ по спектру ВКР. Восстановленные по спектрам (заполненные кружки) и ожидаемые (полые кружки) относительные концентрации компонент смесей.

За счёт столь высокого спектрального разрешения методики появляется возможность дискриминации компонент в смеси ацетона, толуола и изопропанола, комбинационные спектры которых перекрываются на частотах около 2900 см^{-1} . Для этого записываются опорные спектры составляющих веществ и спектры смесей. Восстановление концентраций осуществлялось по методу анализа главных компонент. Полученные в результате значения восстановленных концентраций имеют отклонения от ожидаемых не более чем на 4% при объёме смеси всего 16 фемтолитров (рис. 8б).

Также был выполнен анализ границ чувствительности методик КАРС и ВКР-микроскопии. Предельно малую концентрацию вещества, которую ещё можно зарегистрировать, можно оценить из соотношения сигнал-шум $S/N \equiv 1$, где $S = i_{sig}^2$ - квадрат тока полезного сигнала в системе регистрации, $N = \sigma_{bg}^2 + \sigma_T^2 + \sigma_{sh}^2$ - дисперсия тока вследствие флуктуации фона σ_{bg}^2 , а также теплового σ_T^2 и дробового σ_{sh}^2 шумов детектора. Главным ограничением чувствительности методики КАРС являются шумы лазера, которые транслируются в шумы генерирующегося нерезонансного фона. Оценка предельной чувствительности методики даёт 2 мМ (ммоль/л).

С другой стороны, методика ВКР-спектроскопии с использованием модулированной по амплитуде на радиочастоте одной из волн накачки практически свободна от фона, что позволяет проводить измерения, ограниченные только шумами детектирующей аппаратуры. В этом случае предельная чувствительность при визуализации белков и липидов, насыщенных СН-группами, находится на уровне $6 \text{ }\mu\text{M}$ и около $40 \text{ }\mu\text{M}$ при исследовании спектров молекул в области от-

печатков пальцев. Эти результаты, однако, не учитывают фон, связанный с двухфотонным поглощением. Он ограничивает чувствительность микроскопии ВКР, что можно учесть в расчётах в виде обладающего шумами лазера фона. Эти шумы в биотканях могут на два порядка превышать внутренние шумы системы детектирования и ограничивают предельную чувствительность на уровне 350 и 500 μM при зондировании группы СН-колебаний и резонансов области отпечатков пальцев, соответственно.

Выполненные исследования демонстрируют высокое спектральное разрешение предложенной лазерной системы при использовании управляемых по фазе широкополосных импульсов, достигающее значений не хуже 10 см^{-1} . Подобная точность позволяет различать вещества, химические формулы которых отличаются только одним атомом углерода. Также становится возможным восстановление концентраций составных частей смесей крайне малых объёмов с отклонением от точного значения, не превышающим 4%. Кроме того, была определена предельная чувствительность КАРС- (2 мМ) и ВКР-микроспектроскопии при зондировании группы СН-колебаний (350 μM) и резонансов области отпечатков пальцев (500 μM).

В **заключении** приведены основные результаты работы, которые заключаются в следующем:

1. На основе результатов численного моделирования распространения лазерного излучения с центральной длиной волны в среднем инфракрасном диапазоне длин волн в фотонно-кристаллическом халькогенидном волокне и последующей компенсации нелинейного набега фазы с помощью нелинейного кристалла CaF_2 показано, что солитонные режимы спектрально-временного преобразования световых импульсов в подобных волокнах позволяют осуществить солитонную компрессию импульсов до длительностей около одного периода поля. Для импульсов длительностью порядка 100 фс субкиловаттного уровня пиковой мощности в диапазоне длин волн 3.4 – 3.7 μm после сжатия были получены импульсы длительностью около 10 фс.
2. Проведён теоретический анализ селективного возбуждения, когерентное управление и спектрохронографический анализ аттосекундной динамики бр-подобной оболочки атома ксенона за счёт использования световых импульсов со сверхшироким спектром и активно формируемой фазой, перекрывающих диапазон длин волн от 140 до 970 нм.
3. По результатам проведённых исследований была показана возможность объединения в одном микроструктурированном волокне преимуществ, обусловленных малым диаметром сердцевины и высокой числовой апертурой. Микроструктурированные световоды с двойной оболочкой обеспечивают дополнительный выигрыш эффективности волоконного сбора флуоресцентного сигнала в схемах линейной и нелинейной флуоресцентной микроскопии без потери локальности оптического возбуждения и пространственного разрешения.

4. Выполнен теоретический расчёт характерной глубины сбора люминесцентного отклика в условиях рассеивающей и не рассеивающей среды, показавший отсутствие влияния этого свойства на возможность адресоваться к предельно малым областям, в которых характерный размер области сильно меньше длины рассеяния. Результаты подтверждены экспериментально.
5. Выполненные исследования демонстрируют высокое спектральное разрешение предложенной лазерной системы при использовании управляемых по фазе широкополосных импульсов, достигающее значений не хуже 10 см^{-1} . Подобная точность позволяет различать вещества, химические формулы которых отличаются только одним атомом углерода. Также становится возможным восстановление концентраций составных частей смесей крайне малых объёмов с отклонением от точного значения, не превышающим 4%. Кроме того, была определена предельная чувствительность КАРС- и ВКР-микроспектроскопии при зондировании группы СН-колебаний и резонансов области отпечатков пальцев.

Мещанкин Денис Вячеславович

СВЕТОВОДЫ С АКТИВНО ФОРМИРУЕМЫМИ ХАРАКТЕРИСТИКАМИ ДЛЯ
ГЕНЕРАЦИИ СВЕРХКОРОТКИХ СВЕТОВЫХ ИМПУЛЬСОВ И
ФЛУОРЕСЦЕНТНОГО ЗОНДИРОВАНИЯ

Автореф. дис. на соискание ученой степени канд. физ.-мат. наук

Подписано в печать _____._____._____. Заказ № _____

Формат 60×90/16. Усл. печ. л. 1. Тираж 100 экз.

Типография _____