

**МОСКОВСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ  
ИМЕНИ М.В.ЛОМОНОСОВА**

**ФИЗИЧЕСКИЙ ФАКУЛЬТЕТ**

*На правах рукописи*

**Федотов Андрей Борисович**

**Спектрально-временные преобразования лазерных импульсов  
в микроструктурированных световодах  
для нелинейно-оптической спектроскопии**

1.3.19. Лазерная физика

**ДИССЕРТАЦИЯ**  
на соискание учёной степени  
доктора физико-математических наук

Научный консультант:  
Профессор, доктор физико-математических наук  
Алексей Михайлович Желтиков

Москва – 2024 г.

## Оглавление

<b>Введение</b>	5
<b>Глава 1. Особенности структуры и свойств микроструктурированных волокон. Физические основы повышения эффективности нелинейно-оптических преобразований.</b>	23
1.1. Структура и линейные свойства микроструктурированных световодов.	24
1.2. Микроструктурированные световоды как новые элементы для волоконной нелинейной оптики.	28
1.3. Усиление эффективности нелинейно-оптических преобразований и генерация суперконтинуума в микроструктурированных волокнах.	32
1.4. Нелинейно-оптические преобразования в перетянутых высоконелинейных волокнах.	37
1.5. Основные особенности архитектуры, свойства и области применения полых капилляров и полых фотонно-кристаллических волокон.	39
1.6. Волноводное увеличение эффективности нелинейно-оптических процессов. Методы численного анализа распространения электромагнитного излучения в микроструктурированных волокнах.	43
<b>Глава 2. Экспериментальная техника и методики анализа спектрально-временных преобразований лазерных импульсов в микроструктурированных световодах.</b>	50
2.1. Лазерные системы для исследования нелинейно-оптических преобразований в микроструктурированных световодах.	50
2.2. Методы изготовления и классификация используемых микроструктурированных световодов.	57
2.3. Анализ свойств микроструктурированных световодов для повышения эффективности четырехволновых взаимодействий.	59
2.4. Экспериментальные методы характеристики нелинейно-оптического преобразования в фотонно-кристаллических световодах.	68
<b>Глава 3. Спектрально-временные преобразования импульсов накачки ближнего инфракрасного диапазона в микроструктурированных световодах со сплошной сердцевиной.</b>	76
3.1. Особенности солитонного режима распространения фемтосекундных импульсов в микроструктурированных волноводах.	78
3.2. Спектрально-временные преобразования импульсов генератора на кристалле хром-форстерита в микроструктурированных световодах с увеличенной сердцевиной.	81
3.3. Генерация перестраиваемого излучения в видимом диапазоне в процессе солитонного самосдвига частоты в микроструктурированных волокнах при накачке фемтосекундными импульсами хром-форстеритового генератора.	86

- 3.4. Управление спектральным и временным профилем импульсов в процессе солитонного самосдвига частоты. 98
- 3.5. Спектрально-временные преобразования мощных фемтосекундных импульсов в диапазоне 1.1-1.4 мкм в микроструктурированных волокнах с большой площадью сердцевины. 104

**Глава 4. Особенности распространения и нелинейно-оптического преобразования мощных лазерных импульсов в полых фотонно-кристаллических волноводах, обеспечивающие их транспортировку и компрессию до предельно коротких длительностей.** 114

- 4.1. Транспортировка и нелинейно-оптические преобразования высокоэнергетичных лазерных импульсов в полых фотонно-кристаллических волокнах. 115
- 4.2. Нелинейно-оптические преобразования импульсов ближнего и среднего инфракрасного диапазона в полых антирезонансных фотонно-кристаллических волноводах револьверного типа для формирования мультиоктавного суперконтинуума и предельно коротких гигаваттных импульсов. 124

**Глава 5. Микроструктурированные световоды в задачах нелинейной спектроскопии и микроспектроскопии, биовизуализации и квантовой оптики.** 145

- 5.1. Увеличение эффективности четырехволнового взаимодействия в полых фотонно-кристаллических световодах в задачах нелинейной спектроскопии. 148
- 5.2. Разделение вкладов оболочки и сердцевины в процесс когерентного антистоксова рассеяния света в полых фотонно-кристаллических световодах. 156
- 5.3. КАРС-микроспектроскопия кристаллических кремниевых структур с использованием перестраиваемого источника на основе микроструктурированных световодов с увеличенной площадью сердцевины. 162
- 5.4. Спектрально временные преобразования неусиленных импульсов от хром-фостеритового генератора в микроструктурированных световодах и нелинейных кристаллах для задач КАРС-микроскопии. 164
- 5.5. Трехмерная КАРС-микроспектроскопии когерентных оптических фононов в искусственной алмазной пленке. 172
- 5.6. Нелинейно-оптическая КАРС-визуализация биологических тканей. 176
- 5.7. Нелинейно-оптические преобразования в микроструктурированных волокнах для задач биофотоники и ионизационные ограничения использования сверхкоротких импульсов. 180
- 5.8. Источник коррелированных фотонных пар и одиночных провозглашенных фотонов на основе векторного четырехволнового взаимодействия в двулучепреломляющем фотонно-кристаллическом световоде. 187
- 5.9. Квантовая спектроскопия поглощения с использованием спектрально-коррелированных фотонных пар, генерируемых в фотонно-кристаллическом волокне. 206

<b>Заключение. Основные результаты.</b>	214
<b>Список используемых сокращений</b>	220
<b>Список публикаций автора по теме диссертации</b>	221
<b>Список использованных источников</b>	230

## Введение

Нелинейная оптика является обширным разделом современной физики, неразрывно связанной с развитием и использованием лазерных источников излучения. Под нелинейно-оптическими явлениями прежде всего мы понимаем эффекты, приводящие к изменению исходных амплитудных, частотных и временных характеристик лазерных импульсов, и возникающие в связи с нелинейным характером взаимодействия этих импульсов со средой, в которой они распространяются или воздействуют на нее. В первую очередь, такие эффекты проявляются в появлении новых спектральных компонент относительно исходного излучения. Несмотря на то, что нелинейно-оптические эффекты были продемонстрированы еще в «долазерную эпоху», именно с развитием лазеров эта тематика начала стремительно развиваться, и как уже было отмечено, в настоящее время сейчас практически невозможно рассматривать лазерную физику без нелинейных явлений. Более того, на их использовании построена значительная часть лазерных источников, в первую очередь направленных на генерацию сверхкоротких лазерных импульсов.

Стремительный прогресс физики лазеров и нелинейной оптики способствовал развитию ряда смежных разделов науки и технологий, в том числе волоконной оптики. В современных телекоммуникационных приложениях оптические световоды занимают доминирующее положение, однако их применение далеко не ограничивается задачами передачи информации. На основе оптических волокон созданы и широко используются волоконно-оптические усилители, модуляторы, источники лазерного излучения и многое другое. Более того, расширяются не только области применения оптических световодов, но также радикально изменяется сама их концепция и архитектура [1].

Заметной вехой в области развития волноводов, явилось создание в конце прошлого века *фотонно-кристаллических (микроструктурированных)* волокон [2]. Оболочка в этих волокнах изготовлена из материала с тем же показателем преломления что и у сердцевины, но выполнена в виде набора плотно упакованных капилляров микронного и субмикронного размера. Как было сразу отмечено в посвященной этой тематике пионерских работах, в фотонно-кристаллических волокнах возникают новые особенности распространения волн: во-первых, это *одномодовый* режим, который в отличие от стандартных волокон возможен для аномально широкого спектрального диапазона; во-вторых, волноводный режим может поддерживаться не только за счет явления полного внутреннего отражения, но также за счет высокой отражательной способности периодической структуры оболочки [3]. При распространении коротких лазерных импульсов в сердцевине таких волокон, обладающих размером порядка нескольких микрометров, достигается высокая интенсивность света за счет высокой степени локализации, что приводит к проявлению или радикальному увеличению эффективности различных нелинейно-оптических эффектов [3–8]. Высокий потенциал микроструктурированных волокон был быстро осознан научным сообществом, и не без основания отмечалось, что микроструктурированные волокна, по существу, открыли новую главу волоконной оптики [3,9], позволив переосмыслить или найти новые особенности нелинейно-оптических явлений в волоконном формате.

Радикальное увеличение эффективности нелинейно-оптических взаимодействий и возможность управления дисперсионными свойствами волноводных мод позволило использовать лазерные импульсы малых энергий, включая неусиленные лазерные импульсы от фемтосекундных генераторов. Наиболее ярким и известным примером в этом отношении является явление генерации суперконтинуума, которое заключается в сверхшироком спектре импульса накачки до одной октавы и более [10]. Явление генерации суперконтинуума привело к революционным изменениям в области оптической метрологии и активно используется в лазерной биомедицине, спектроскопии, фотохимии, а также оптике сверхкоротких импульсов. Возможность направленного управления дисперсией волноводных мод в очень широких пределах позволяет решать проблему фазового согласования для различных процессов четырехволнового взаимодействия, в связи с этим микроструктурированные волокна могут использоваться не только как источники широкополосного излучения, но и как “более специфичные“ преобразователи частоты лазерных импульсов [11–15]. Оптические элементы для преобразования частоты и нелинейно-оптической трансформации спектра сверхкоротких импульсов на основе микроструктурированных волокон существенно расширяют возможности фемтосекундных лазерных систем, позволяя использовать сверхкороткие импульсы, в том числе неусиленные лазерные импульсы, для решения широкого класса задач фундаментального и прикладного характера в области спектроскопии, телекоммуникационных технологий, когерентного и квантового контроля, оптики сверхкоротких импульсов и биофотоники.

В России в конце 90-х также начал проявляться интерес к этой тематике. И прежде всего, хотелось бы в этом отношении отметить заметный вклад профессора А.М. Желтикова, который инициировал развитие этой тематики в нашей группе фотоники и нелинейной спектроскопии физического факультета МГУ имени М.В.Ломоносова и дал начало плодотворному сотрудничеству как непосредственно с производителями данного типа волокон (ТОСС (Саратов), ГОИ (Санкт-Петербург), ИЦВО РАН (Москва)), так и многими отечественными и зарубежными научными группами, связанными с этим направлением. А.М. Желтиков опубликовал монографии [3,16,17], посвященные основным свойствам микроструктурированных волокон, особенностям нелинейно-оптического преобразования и различным областям их применения. Нельзя не отметить, что в течение более чем двадцати лет профессор А.М. Желтиков определял развитие этой темы в нашей группе, и это бесспорно отражает тот факт, что он является консультантом настоящей диссертационной работы.

В диссертационной работе представлены результаты многолетних исследований, которые проводились по широкому спектру направлений, связанных с исследованием линейных и нелинейных свойств микроструктурированных (фотонно-кристаллических) волокон (далее в рамках излагаемого материала будем считать эти названия взаимозаменяемыми), новых режимов распространения и нелинейно-оптического преобразования лазерных импульсов накачки. Большая часть диссертационной работы связана с осуществлением целенаправленной спектрально-временной трансформации импульсов в микроструктурированных световодах для реализации различных режимов

нелинейно-оптической спектроскопии и микроспектроскопии, применяемых в области газового анализа, биофотоники и квантовой оптики.

**Цель настоящей диссертационной работы** состоит в комплексном исследовании особенностей нелинейно-оптического преобразования в различных типах и структурах микроструктурированных (фотонно-кристаллических) световодов при оптической накачке лазерными импульсами с широким спектром энергетических и спектрально-временных параметров, и демонстрация эффективного применения формируемого излучения в задачах нелинейно-оптической спектроскопии и микроспектроскопии, физики предельно коротких импульсов и квантовой оптики.

В задачи диссертационной работы входило:

- Анализ солитонных механизмов распространения и нелинейно-оптического преобразования фемтосекундных импульсов накачки с центральной длины волны в области 1.25 мкм, характерной для источников на основе кристалла Cr:forsterite, в различных типах микроструктурированных световодов со сплошной сердцевиной. Демонстрация возможностей формирования импульсов с различными уровнями пиковых мощностей (до нескольких мегаватт) и управляемыми спектрально-временными параметрами, включая получение импульсов с длительностями до нескольких циклов поля.
- Создание технологичной платформы на основе фемтосекундного хром-форстеритового генератора с удлинённым резонатором и различных типов микроструктурированных световодов, для получения перестраиваемых в видимой и инфракрасной области фемтосекундных импульсов с мегагерцовой частотой повторения. Реализация на базе этой платформы схемы для нелинейно-оптической КАРС микроспектроскопии объектов различной природы.
- Исследование особенностей волноводного распространения высокоэнергетичных лазерных импульсов с нано-, пико- и фемтосекундными уровнями длительностей в полых фотонно-кристаллических (микроструктурированных) световодах.
- Демонстрация возможности использования полых фотонно-кристаллических (микроструктурированных) световодов в качестве элементов, обеспечивающих повышение эффективности нелинейно-оптической спектроскопии газовых сред на основе когерентного антистоксова рассеяния света (КАРС).
- Исследование процесса генерации мультиоктавного суперконтинуума в полых антирезонансных световодах при накачке фемтосекундным излучением ближнего и среднего инфракрасного диапазона и анализ возможности формирования предельно коротких импульсов с длительностью порядка одного цикла поля и менее.
- Исследование и оптимизация источника коррелированных фотонных пар и одиночных провозглашенных фотонов на основе векторного спонтанного четырехволнового взаимодействия (ЧВВ) в высоконелинейных двулучепреломляющих фотонно-кристаллических (микроструктурированных) волокнах. Характеризации яркости источника

фотонных пар и корреляционных свойств генерируемых квантовых состояний света. Анализ возможности генерации широкополосных и междипазонных коррелированных фотонных пар с использованием импульсных и непрерывных источников оптической накачки. Реализация методики линейной фантомной спектроскопии с использованием частотно-коррелированных фотонных пар, полученных в процессе спонтанного ЧВВ в фотонно-кристаллических (микроструктурированных) световодах.

**Объектом исследования** являются нелинейно-оптические эффекты, возникающие при распространении импульсов накачки от различных лазерных источников в микроструктурированных световодах, имеющих различные масштабы и структуры.

**Предметом исследования** выступают процессы спектрально-временного преобразования лазерных импульсов, приводящие к изменению их характеристик, необходимых для осуществления различных протоколов нелинейно-оптической спектроскопии, микроскопии и сенсорики.

### **Актуальность и методология исследований**

Получение перестраиваемых сверхкоротких лазерных импульсов представляет собой одну из важных задач лазерной физики. Одно из очевидных и важных преимуществ оптических волноводов в качестве элементов, на которых возможно реализовать источники перестраиваемых лазерных импульсов, заключается в их компактности и относительно невысокой стоимости. В диссертационной работе исследовались различные режимы нелинейно-оптического преобразования в новых типах оптических световодов – микроструктурированных (фотонно-кристаллических) волокнах для реализации источника перестраиваемых сверхкоротких импульсов в широком спектральном диапазоне, которые могут найти в приложениях нелинейной спектроскопии, сенсорики и квантовой оптики.

Для достижения результатов применялся комплексный подход, основанный на экспериментальных исследованиях с использованием лазерных систем с импульсами нанопико и фемтосекундной длительности, а также теоретический анализ с использованием элементов численного моделирования.

Основные требования к проводимым исследованиям связаны с использованием микроструктурированных (с твердотельной и полый сердцевиной) световодов с различными параметрами, которые предоставлялись отечественными и зарубежными научными группами в рамках совместных исследований. Их структура и физические параметры характеризовались с помощью оптической и электронной микроскопии, а дисперсионные и нелинейные свойства оценивались как из результатов нелинейно-оптических экспериментов, так и в результате численного моделирования. Эксперименты проводились с различными типами лазеров на основе Ti:Sapphire, Cr:forsterite, Nd:YAG, иттербиевых твердотельных активных элементов. Длительность, энергия и спектральные параметры импульсов характеризовались с помощью сертифицированной измерительной аппаратуры. Для измерений импульсных оптических сигналов использовались различные методики накопления и усреднения, электронного стробирования (BOXCAR) и

синхронного детектирования. При измерениях сверхкоротких импульсов наиболее принципиально сложной частью является анализ их временных и спектрально-фазовых параметров, в зависимости от конкретной задачи в работе применялись автокорреляционные методы, техники оптического стробирования с разрешением по частоте (FROG) и прямого восстановления электрического поля (SPIDER), которая позволяет не только определить профиль поля импульса, но и его спектральную фазу. Большинство экспериментальных результатов, связанных со спектрально-временными преобразованиями лазерных импульсов в микроструктурированных волокнах, проверялось и анализировалось с использованием результатов моделирования, в основном связанного с численным решением обобщенного нелинейного уравнения Шредингера, что безусловно повышает научную и методологическую значимость исследований. При реализации спектроскопических методов на основе когерентного антистоксова рассеяния с использованием перестраиваемых импульсов, формируемых в микроструктурированных волокнах, большое значение уделялось соответствию их спектральных характеристик ширине возбуждаемых комбинационных резонансов. Нелинейно-оптическая микроспектроскопия подразумевает высокое пространственное разрешение, и для обеспечения этого требования использовались микрообъективы с большими числовой апертурой и увеличением, а также большое внимание уделялось неразрушающему характеру взаимодействия зондирующих импульсов с веществом, что особенно важно при работе с биологическими объектами. Можно сказать, что исследования соответствовали самым современным требованиям, как с точки зрения используемой аппаратуры, так и методик проведения экспериментов и их последующего анализа.

### **Степень разработанности темы**

Начиная с момента демонстрации первых образцов микроструктурированных волокон наблюдался лавинообразный характер нарастания числа работ в области фотонно-кристаллических световодов, что прежде всего было связано с демонстрацией возможности радикального увеличения эффективности нелинейно-оптических процессов для неусиленных импульсов фемтосекундных источников. Идеология микроструктурированных волокон позволяет реализовывать режимы волноводного распространения с высокой степенью локализации излучения в сердцевине волновода. Наиболее ярким примером демонстрации преимуществ МС волокон явилась генерация суперконтинуума («белого света»), включающая целый набор нелинейно-оптических явлений (фазовая самомодуляция, фазовая кросс-модуляция, четырехволновое взаимодействие, модуляционные неустойчивость, солитонные явления и др). Благодаря появлению новых волноводных структур, генерация суперконтинуума получила широкое распространение как метод решения широкого круга фундаментальных и прикладных задач оптики сверхкоротких импульсов, нелинейной спектроскопии и микроскопии, лазерной биомедицины, оптической метрологии. Полученные результаты указывают на возможность использования явления генерации суперконтинуума в микроструктурированных волокнах для создания нового поколения оптических параметрических усилителей и источников излучения для спектроскопических, метрологических и биомедицинских приложений. При

рассмотрении нелинейно-оптических эффектов можно отметить особую роль солитонных механизмов спектрально-временного преобразования импульсов, которые реализуются при их распространении в среде с аномальной дисперсией, в результате которого нелинейный набег фаз может быть уравновешен дисперсионным вкладом, обеспечивая выделенное распространение “солитоноподобных” импульсов с изолированной спектральной фазой относительно “несолитонной” части поля. На основе этих нелинейно-оптических эффектов возможна реализация эффективных элементов для лазерной физики и нелинейной оптики. Одно из очевидных и важных преимуществ оптических волноводов в качестве элементов, на которых возможно реализовать источники перестраиваемых лазерных импульсов, заключается в их компактности и относительно невысокой стоимости. Микроструктурированные световоды уже прочно занимают позиции во многих научных приложениях, связанных с лазерной физикой и нелинейной оптикой. В настоящее время производство МС световодов осуществляется несколькими компаниями в Англии, США, Дании, Австралии и Китае и такие волокна являются коммерчески доступным продуктом. Представленные в диссертационной работе экспериментальные результаты были получены на протяжении более чем двух десятков лет в различных лабораториях и организациях. Проводимые исследования соответствовали современным высоким научным стандартам, что подтверждается большим количеством публикаций соискателя в высокорейтинговых международных журналах.

**Научная новизна** результатов, полученных в диссертации:

Исследования, представленные в диссертационной работе, позволили достичь существенного прогресса в понимании фундаментальных физических закономерностей нелинейно-оптических взаимодействий лазерных импульсов в микроструктурированных волноводах, а также их использовании для различных протоколов нелинейно-оптической спектроскопии. Для достижения результатов применялся комплексный подход, основанный на экспериментальных исследованиях с использованием лазерных систем с импульсами нано-, пико и фемтосекундной длительности, а также теоретический анализ с использованием элементов численного моделирования.

- На основе фемтосекундного Cr:forsterite генератора (центральная длина волны 1.25 мкм) и микроструктурированных световодов впервые продемонстрирован источник нано- и субнаноуджулевых фемтосекундных импульсов с длительностью от 50 до 100 фс и спектральной перестройкой в диапазоне от 630 до 1800 нм, что реализуется при спектрально-временном преобразовании импульсов накачки в процессе солитонного самосдвига частоты в микроструктурированных световодах с последующим удвоением частоты в нелинейно-оптических кристаллах.

- При оптической накачке импульсами с частотой повторения 18 МГц от Cr:forsterite (хром-форстеритового) генератора с удлиненным резонатором микроструктурированных волокон со сплошной сердцевиной и эффективной площадью моды порядка 20 мкм<sup>2</sup> продемонстрирована генерация в процессе солитонного самосдвига частоты

высокоэнергетичных (до нескольких наноджоулей) перестраиваемых по частоте солитонов в диапазоне от 1.3 до 1.8 мкм. Измеренная длительность составляла менее 100 фс, а пиковая мощность солитонов достигала величины более 80 кВт.

- Впервые продемонстрировано, что оптическая накачка неусиленными импульсами хром-форстеритового генератора микроструктурированного волокна с увеличенным диаметром сердцевины (5 мкм) приводит к формированию последовательности сдвинутых по длине волны солитонных импульсов, которые могут использоваться для получения импульсов с длительностью несколько циклов поля в процессе их когерентного сложения. Возможность такого сценария подтверждается наличием интерференционной картины высокой видности, свидетельствующая о постоянстве спектральной фазы каждого из солитонов.

- Впервые продемонстрировано использование спектральной компрессии перестраиваемых по длине волны фемтосекундных лазерных импульсов в микроструктурированных световодах со сплошной сердцевиной в процессе солитонного самосдвига частоты импульсов накачки от Cr:forsterite (хром-форстеритового) генератора с удлиненным резонатором, что может быть использовано для повышения спектрального разрешения и чувствительности КАРС-спектроскопии.

- Впервые показана возможность использования полностью твердотельного микроструктурированного световода с большой площадью моды для эффективного спектрального уширения импульсов фемтосекундной длительности ближнего инфракрасного диапазона (в области 1.14 мкм) в режиме нормальной дисперсии световода. Спектрально-фазовые особенности уширенного импульса позволяют осуществить его временную компрессию до 20 фс, что соответствовало пиковой мощности около 20 МВт.

- Впервые продемонстрирована мультимодальная платформа для нелинейной микроспектроскопии когерентного антистоксова рассеяния света (КАРС) на основе Cr:forsterite (хром-форстеритового) генератора фемтосекундных импульсов (центральная длина волны 1.25 мкм), микроструктурированных световодов с большой площадью кварцевой сердцевины и нелинейно-оптических кристаллов. Эта техника обеспечивает не только проведение измерений в видимой и инфракрасной области, но также обеспечивает спектральную селективность за счет спектрального сужения зондирующих импульсов в микроструктурированных световодах и нелинейно-оптических кристаллах. Формирование последовательности фемтосекундных импульсов в процессе удвоения частоты в кристалле с периодической доменной структурой (PPLN) позволяет также реализовать режим нестационарной КАРС спектроскопии. Возможности реализованной методики продемонстрированы в экспериментах по сканирующей КАРС-микроскопии искусственных алмазных пленок и липидов в мозге лабораторных животных с пространственным разрешением до 1 мкм.

- Показано, что волноводный режим нелинейно-оптического взаимодействия, реализуемый в изолированных модах полых фотонно-кристаллических (микроструктурированных)

волноводов, приводит к увеличению эффективности четырехволновых взаимодействий по сравнению с режимом жесткой фокусировки. Для нелинейно-оптической спектроскопии газовых сред, заполняющих сердцевину световода, на основе когерентного антистоксова рассеяния света (КАРС) величина подобного увеличения эффективности достигала одного порядка, однако при условии уменьшения потерь может быть многократно увеличена. Впервые показана возможность диагностировать молекулы воды, осаждаемые на внутренних стенках полых фотонно-кристаллических (микроструктурированных) волокон с большой площадью моды. Продемонстрировано, что интерферометрическая природа сигнала КАРС обеспечивает возможность анализа вклада оболочки в общую нелинейность волноводных мод полых микроструктурированных волокон, что повышает чувствительность и точность спектральных измерений.

- Продемонстрировано, что техника прямого измерения светового поля X-SEA-F-SPIDER в сочетании с методикой определения спектральной фазы высокочастотного крыла суперконтинуума, генерируемого в полном антирезонансном волноводе, заполненном аргоном при высоком давлении, при накачке фемтосекундными импульсами среднего и ближнего инфракрасного диапазона, обеспечили возможность прямой характеристики субпериодных импульсов, формируемых в процессе солитонной самокомпрессии импульсов накачки.

- Продемонстрирована возможность использования фотонно-кристаллических (микроструктурированных) волокон в качестве эффективного источника квантовых состояний света: фотонных пар и одиночных фотонов. Впервые рассмотрена генерация фотонных пар при двух кросс-поляризованных полях накачки в векторном четырехволновом взаимодействии (ЧВВ) II типа. Дана количественная характеристика степени спектральной запутанности фотонной пары, как функции дисперсионных свойств ФК волокна и параметров оптического поля накачки, в частности, центральной длины волны накачки, ее поляризации и мощности. Яркость источника составляет  $8 \times 10^4$  Гц/мВт при средней мощности накачки 2.5 мВт и  $g^{(2)}(0) = 10$ . Полученная яркость значительно превосходит аналогичные параметры СПР-источников фотонных пар ( $\sim 1000$  Гц/мВт). Максимальное значение параметра  $g^{(2)}(0) = 1200$  при скорости счета совпадений 75 Гц без коррекции на потери в схеме и квантовую эффективность детекторов.

- Впервые экспериментально реализован метод линейной квантовой спектроскопии с использованием частотно-коррелированных фотонных пар, полученных на базе спонтанного ЧВВ в фотонно-кристаллических (микроструктурированных) световодах. Сравнение измеренного спектра с полученным при использовании классического источника света является критерием достоверности результата.

- Экспериментально продемонстрирован высокоэффективный волоконный источник сверхширокополосных бифотонов с рекордной спектральной шириной порядка 180 ТГц на основе спонтанного ЧВВ в фотонно-кристаллическом (микроструктурированном) волокне,

накачиваемым фемтосекундными лазерными импульсами. Получение сверхширокополосного спектра достигается при использовании длины волны накачки близкой к одному из двух нулевых значений дисперсии групповых скоростей световода, что обеспечивает высокое значение крутизны кривой синхронизма. Проведено сравнение режимов генерации коррелированных фотонных пар при импульсной и непрерывной накачке в области 0.8 мкм, показана возможность генерации междиапазонных фотонных пар в обоих режимах с большой частотной отстройкой в областях около 0.5 и 1.6 мкм.

### **Защищаемые положения**

1. Полые фотонно-кристаллические (микроструктурированные) световоды с диаметром сердцевины 13 – 15 мкм обеспечивают транспортировку мощных нано-, пико- и фемтосекундных импульсов. Передача нано- и пикосекундных импульсов на длине волны 1.06 мкм осуществляется в линейном режиме с допустимыми потоками энергии 0.5 кДж/см<sup>2</sup> и 0.1 кДж/см<sup>2</sup>, соответственно. Транспортировка мультимегаваттных (5-10 МВт) фемтосекундных импульсов в подобных волокнах с сохранением их временных характеристик возможна в режиме солитонного распространения или за счет предварительного линейного chirпирования с последующей компрессией, обеспечиваемой дисперсионными свойствами световода.

2. Дисперсионные и нелинейные свойства полых антирезонансных световодов револьверного типа с диаметром сердцевины 70 мкм, толщиной стенок внутренних капилляров оболочки порядка 500 нм и заполненных инертным газом при высоком давлении, обеспечивают эффективное нелинейно-оптическое преобразование фемтосекундных импульсов накачки ближнего и среднего инфракрасного диапазона с субмиллиджоулевыми уровнями энергий в режиме солитонной самокомпрессии. Подбор давления газа и энергии фемтосекундных импульсов накачки создает условия формирования мультиоктавного суперконтинуума и высокоэнергетичных предельно коротких импульсов с длительностью менее одного цикла поля и пиковой мощностью более 2 ГВт. Такие импульсы находят применение в области аттосекундной оптики и петагерцовой оптоэлектроники.

3. Фемтосекундные лазерные генераторы на основе кристалла Cr:forsterite с центральной длиной волны 1.25 мкм в сочетании с микроструктурированными (МС) волокнами с диаметром сердцевины порядка 5 мкм обеспечивают эффективный и удобный метод получения перестраиваемых фемтосекундных импульсов с мегагерцовой частотой повторения в спектральном диапазоне 1.3 – 1.8 мкм с энергиями в несколько наноджоулей и пиковыми мощностями до 100 кВт в процессе солитонного самосдвига частоты импульсов накачки.

4. Кварцевые микроструктурированные волокна с твердотельной сердцевиной и диаметром порядка 5 мкм обеспечивают гибкое управление спектрально-временным преобразованием импульсов накачки Cr:forsterite генератора с удлиненным резонатором в процессе солитонного самосдвига частоты и нелинейного сужения их спектра (до 6.5 раз). Удвоение частоты перестраиваемых солитонов (1.3 – 1.8 мкм) и импульсов основного

излучения хром-форстеритового генератора (1.25 мкм) позволяет получить перестраиваемые фемтосекундные импульсы в диапазоне 600 – 900 нм и субнаноджоулевыми уровнями энергий. Перестраиваемые импульсы в диапазоне 0.6 – 1.8 мкм могут использоваться для различных методов нелинейно-оптической визуализации, как в ближней инфракрасной, так и видимой области спектра.

5. Генерация перестраиваемого излучения в видимой области спектра (400 – 1000 нм) при распространении солитоноподобных импульсов в микроструктурированных волокнах ( $\gamma > 100 \text{ Вт}^{-1}\text{км}^{-1}$ ), изготовленных из стекол с высокой нелинейностью с элементами наноструктурирования, обеспечивается за счет генерации суперконтинуума, фазосогласованного возбуждения дисперсионных волн и третьей оптической гармоники при накачке от неусиленных импульсов Cr:forsterite генератора с центральной длиной волны 1.25 мкм.

6. Перестраиваемые фемтосекундные импульсы, получаемые в процессе солитонного самосдвига частоты неусиленных импульсов Cr:forsterite генератора в микроструктурированных волокнах с увеличенной сердцевиной, формируют удобную платформу для реализации сканирующей микроспектроскопии на основе когерентного антистоксова рассеяния света (КАРС). Ее эффективность обеспечивается широким спектральным диапазоном перестройки зондирующих импульсов (0.6 – 1.8 мкм), их высокими уровнями энергий (до нескольких наноджоулей) и возможностью контроля спектрально-временных параметров.

7. Реализация волноводного режима когерентного антистоксова рассеяния света (КАРС) в направляемых модах полых фотонно-кристаллических световодов с диаметром сердцевины 10 - 50 мкм обеспечивает не только многократное повышение эффективности нелинейно-оптической спектроскопии заполняющих его сердцевину газов или осаждаемых на внутренних стенках молекул, но и позволяет измерить вклад микроструктурированной оболочки в общую нелинейность волноводных мод полых фотонно-кристаллических волокон, что повышает точность и спектральное разрешение методики КАРС-спектроскопии.

8. Двухлучепреломляющие высоконелинейные фотонно-кристаллические световоды с двумя нулями дисперсии групповых скоростей обеспечивают управление режимами генерации коррелированных фотонных пар и одиночных фотонов в процессе векторного спонтанного четырехволнового взаимодействия (ЧВВ). В зависимости от центральной длины волны фемтосекундных импульсов накачки, ее поляризации относительно осей волокна и мощности, возможен как режим яркого источника коррелированных фотонных пар со скоростью генерации  $> 10^5 \text{ Гц/мВт}$ , так и источника одиночных провозглашенных фотонов со значением условной корреляционной функции меньшим единицы. Корреляционными свойствами фотонных пар, генерируемых в процессе векторного спонтанного ЧВВ, можно управлять, создавая как высокочистые низкоразмерные запутанные состояния, так и высокоэнтропийные запутанные состояния в пространстве высокой размерности.

## **Практическая значимость работы определяется следующим**

1. Одной из актуальных задач лазерной физики является расширение спектральной области генерации перестраиваемых лазерных импульсов относительно источников на кристалле Ti:Sapphire, а также поиск более дешевых и технологичных решений в этом направлении. В наших исследованиях предполагается подход, основанный на использовании излучения от фемтосекундных лазерных источников на кристалле хром-форстерита и его спектрально-временной трансформации в микроструктурированных световодах со сплошной сердцевиной. Причем разнообразные архитектуры, масштабы и материалы МС волокон позволяют использовать излучение как от лазерных систем с усилением, так и непосредственно от генераторов. Перестраиваемое излучение формируется в результате солитонного самодвига частоты импульсов накачки, поскольку для центральной длины волны накачки 1.25 мкм реализуются условия аномальной дисперсии групповых скоростей, даже в случае использования волокон с большой площадью моды. Солитонные импульсы обеспечивают перестройку в области 1.3 – 1.8 мкм, а пиковые интенсивности могут достигать мультимегаваттного уровня. Нелинейно-оптическое преобразование также предполагает генерацию перестраиваемого излучения в видимой области спектра за счет генерации суперконтинуума, излучения дисперсионных волн или третьей оптической гармоники. Эффективным методом также является удвоение частоты импульсов накачки и солитонов в нелинейных кристаллах. Такое разнообразие обеспечивает широкую платформу формирования практических схем нелинейно-оптической спектроскопии и микроспектроскопии объектов различной природы, что было продемонстрировано в задачах по КАРС-микроспектроскопии кремниевых и алмазных элементов, а также нелинейно-оптической визуализации биологических тканей.
2. Волноводное увеличение эффективности нелинейно-оптических взаимодействий и возможности управления свойствами волноводных мод полых фотонно-кристаллических (микроструктурированных) волокон за счет изменения их структуры, предполагают значительное повышение чувствительности нелинейно-оптической спектроскопии газовых сред и позволяет снизить требования к энергиям лазерных импульсов в задачах нелинейной спектроскопии, в том числе КАРС-спектроскопии, что делает их удобным элементом сенсорики.
3. Повышение энергии и пиковой мощности передаваемых в волоконном формате лазерных импульсов является задачей, обеспечивающей очевидные преимущества для многочисленных научных и технологичных применений, но использование волокон со сплошной твердотельной сердцевиной ограничено лучевой стойкостью материалов. Полые фотонно-кристаллические световоды обеспечивают транспортировку мощных нано-, пико- и фемтосекундных импульсов. Передача фемтосекундных импульсов с субгигаваттной пиковой мощностью и сохранением спектрально-временных характеристик возможна в различных режимах, а именно в режиме солитонного распространения или режиме с использованием предварительного линейного chirпирования с последующей компрессией, обеспечиваемой дисперсионными свойствами световода. Энергия и мощность

передаваемых импульсов удовлетворяет различным технологическим потребностям, связанным с необходимостью доставки мощных световых импульсов в труднодоступные области, что в том числе определяет их применение в медицине (лазерной хирургии, дерматологии или стоматологии).

4. Продемонстрированная возможность использования полых фотонно-кристаллических волокон с антирезонансной структурой оболочки для формирования предельно коротких импульсов гигаваттного уровня энергии поля в различных спектральных диапазонах обладает относительной несложностью и технологичностью. Такие импульсы востребованы в широком спектре задач, связанных с изучением когерентных и фазочувствительных процессов, протекающих в сложных физических, химических и биологических системах на самых коротких временных масштабах. Например, управление сверхбыстрыми когерентными токами носителей зарядов в полупроводниковых материалах может найти применение для развития сверхбыстрой оптоэлектроники на петагерцовых временных масштабах. Другой областью, где востребованы предельно короткие импульсы с широким когерентным спектром, является фемтохимия, в которой методы многомерной нелинейной время-разрешённой корреляционной спектроскопии позволяют исследовать связь ядерной и электронной подсистем сложных молекулярных комплексов, выявляя отдельные этапы химических реакций, протекающие на фемтосекундных масштабах времени.
5. Большинство экспериментов в области квантовой оптики проводятся с коррелированными фотонными парами и одиночными фотонами. В случае волоконного источника одиночных фотонов и фотонных пар выделяется несколько очевидных преимуществ: (i) создаются наилучшие условия сопряжения и волоконной транспортировки реализуемых квантовых состояний света; (ii) гибкое управление дисперсией волокон обеспечивает возможность широкого управления характеристиками квантовых состояний света; (iii) волоконные технологии имеют высокий потенциал миниатюризации и использования их в схемах в схемах интегральной оптики. В наших исследованиях продемонстрирована универсальная волоконно-оптическая платформа для генерации управляемых квантовых состояний света, основанная на процессе спонтанного четырехволнового взаимодействия (ЧВВ) в специальных типах фотонно-кристаллических волокон. Особенности дисперсионных свойств двулучепреломляющих, высоконелинейных фотонно-кристаллических световодов обеспечивают различные режимы генерации квантовых состояний света в результате векторного спонтанного четырехволнового взаимодействия фемтосекундных лазерных импульсов. Высокая яркость продемонстрированного источника (порядка  $10^5$  Гц/мВт), возможность обеспечения режима генерации провозглашенных одиночных фотонов и контроля степени квантовой запутанности фотонных пар, обеспечивает хороший потенциал их использования для различных протоколов, связанных с квантовыми вычислениями, криптографией или другими приложениями квантовой оптики. Прямое применение волоконного источника было продемонстрировано в экспериментах по реализации квантовой (фантомной) спектроскопии поглощения.

Работа выполнялась при финансовой поддержке различных научных фондов и организаций.

Соискатель выступал в роли руководителя следующих проектов: РФФИ 20-21-00131, 20-52-3046, 18-02-40025, 16-52-53129, 15-32-50041, 15-02-09015, 14-02-02099, 14-02-90469, 13-02-12447, 11-02-12281-офи-м, 11-02-92118-ЯФ, 11-02-92012-ННС\_а, 10-02-90051\_Бел, 09-02-92119 ЯФ, 09-02-12359, 09-02-92677, 08-02-92009-ННС, 09-02-00985-а, 08-02-90061-Бел, ИНД 08-02-92226. РФФИ: 22-12-00149.

И в качестве исполнителя: проектов РФФИ 19-29-12062, 19-02-00473, 18-32-20191, 18-29-20031, 17-52-53092, 17-00-00212, 16-52-50069, 16-29-11799, 16-02-00972, 16-02-00843, 15-02-07820, 14-29-07201, 14-29-07182, 14-02-00707, 13-04-40335-Н, 13-02-92115, 13-02-01465, 12-02-33161, 07-02-91215 ЯФ, 07-02-91215, 06-02-16880, 06-02-39011, 05-02-90556 ННС, 04-02-39002, 04-02-81036, 03-02-16929 03-02-20002. Государственных контрактов: №02.434.11.2010 от “25” апреля 2005 г “Создание микроструктурированных оптических волокон для нового поколения преобразователей и передатчиков лазерного излучения и информации”; от № 02.513.11.3040 от “ 22” марта 2007 г “Наноструктурированные световоды для нового поколения источников и преобразователей световых импульсов и оптических сигналов“. № 02.513.11.3331 от 01 августа 2007 г по теме: “Наносветоводные структуры для формирования, передачи и преобразования широкополосных оптических сигналов, микроскопии и поляриметрии ближнего поля, а также нелинейной микроспектроскопии”, № П1130 от 27 августа 2009 г. Нелинейная оптика предельно коротких световых импульсов: новые принципы нанофотоники и оптической диагностики быстропротекающих процессов с фемто- и аттосекундным временным разрешением». Мегагранта Минобрнауки России № 14.Z50.31.0040 «Световодные системы для квантовых технологий».

### **Степень достоверности и апробация результатов**

Основные результаты диссертации многократно представлялись на различных международных и отечественных научных конференциях и семинарах в форме **устных и приглашенных** докладов. При этом более половины докладов сделаны непосредственно автором настоящей работы

Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO-2001 Baltimore, Maryland, USA CLEO/QELS-2002 Long Beach, California, USA). Conference on Laser and Electro-Optics (CLEO/Europe-IQEC 2000 Nice, France). International Quantum Electronics Conference (IQEC 2002 Moscow, Russia). International Congress on Photonics in Europe (CLEO/EUROPE - EQEC 2003, CLEO/EUROPE - EQEC 2009, CLEO/EUROPE - EQEC 2019, Munich, Germany). European CARS Workshop/European Conference on Nonlinear Spectroscopy (ECW'2000 Moscow, Russia; ECW/ECNS'2008 Igl, Austria; ECW/ECNS'2009 Frascati, Rome, Italy; ECW/ECNS'2010 Bremen, Germany; ECW/ECNS'2012 Aberdeen, Great Britain). Annual International Laser Physics Workshop (LPHYS'2000 Bordeaux, France; LPHYS'2001 Moscow, Russia; LPHYS'2002 Bratislava, Slovak Republic; LPHYS'2004 Trieste, Italy; LPHYS'2008 Trondheim, Norway; 2008. LPHYS'09, Barcelona, Spain; 2009. LPHYS'11 Sarajevo, Bosnia and Herzegovina). Italian-Russian Symposium on Problems of Laser Physics and Technologies (ITARUS'2000, Palermo, Italy; ITARUS'2001, St. Petersburg, Russia). Finish-Russian Photonics

and Laser Symposium (PALS'2009 Tampere, Finland; PALS'2011 St.Petersburg, Russia; PALS'2013 Kuopio Finland). Anniversary International Conference on Transparent Optical Networks (2008 Athens, Greece). International Conference on Quantum Optics (ICQO'2006 Minsk, Belarus). Advanced Laser Technologies (ALT'2010 Egmond aan Zee, Netherlands; ALT'2016 Galway, Ireland; ALT'2016 Busan, Korea; ALT'22 Москва, Россия; ALT'2023 Самара, Россия; ALT'2024 Vladivostok, Russia). International Conference on Ultrafast Optical Science (UFL'2021, UFL'2022, UFL'2023 Москва, Россия). International Symposium on Topical Problems of Biophotonics (2007, Nizhny Novgorod, Moscow). SPIE Europe Photonics Europe Conference (2008 Strasbourg, France). Topical Meeting on Optoinformatics(2008 St. Petersburg, Russia). Fall School on Raman and CARS microscopy, Cargese, Corsica, France, 2009. Biomedical Molecular Imaging & The Second Molecular Imaging Center Symposium. New Taipei, Taiwan, 2012. Conference on Laser Optics (St.Petersburg, Russia, LO'2000, LO'2002, LO'2004, LO'2008, LO'2012, LO'2024. International Quantum Electronics Conference (IQEC 2002), Moscow, Russia, 2002. International Conference on Coherent and Nonlinear Optics (ICONO'01, Minsk, Belarus, (ICONO 2005), St.Petersburg, Russia, 2005. ICONO 2007), Minsk, Belarus, 2007. ICONO/LAT-2010), Kazan, Russia, 2010. ICONO/LAT, Moscow, Russia, 2013, ICONO/LAT 2016, Minsk, Belarus). International Conference on Quantum Optics and Quantum Information (ICQOQI'2010 Kyiv, Ukraine, 2010). Asian Conference on Ultrafast Phenomena (ACUP'2010 Taipei, Taiwan). International Conference Frontiers of Nonlinear Physics (2013, Nizhny Novgorod, Russia). International Conference Laser Optics (ICLO 2024), St. Petersburg, Russia, 2024. Russian-Taiwan School-Seminar "Nonlinear Optics and Photonics" (2013 Vladimir/Suzdal, Russia). Laser Application in Life Sciences (LALS-2010, Oulu, Finland). Российский Семинар по Волоконным Лазерам (2007 Новосибирск, Россия). Конференция по фотонике и квантовым технологиям (Казань, Россия, 2018, 2019, 2020, 2021). Международная конференция "Фундаментальные проблемы оптики" (ФПО - 2019, Санкт-Петербург, Russia). Всероссийская Диановская конференция по волоконной оптике (2023 Пермь Россия). Международная конференция молодых ученых и специалистов (Оптика'2001, Оптика'2003, Оптика'2009, Санкт Петербург, Россия). Симпозиум по Когерентному Оптическому Излучению Полупроводниковых Соединений и Структур (2007, 2010, 2013 Звенигород, Россия). Научная школа "Нелинейные волны-2022" (2022 Нижний Новгород, Россия).

### **Публикации**

По теме диссертации опубликовано 95 работ в рецензируемых научных периодических журналах: Optics Letters, Physical Review A, Physical Review E, Applied Physics B: Lasers and Optics, Applied optics, ACS Photonics, Journal of Raman Spectroscopy, Laser Physics, Laser Physics Letters, Optics Communications, Applied Physics Letters, Journal of the Optical Society of America B: Optical Physics, Optics Express, IEEE Journal on Selected Topics in Quantum Electronics, Journal of Modern Optics, Journal of Physics D - Applied Physics, Physics in Medicine and Biology, Journal of Optical Technology, Sensors and Actuators B: Chemical, Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики, Журнал экспериментальной и теоретической физики, Квантовая электроника, Российские нанотехнологии, Успехи

физических наук. Также получен один патент. Развернутый список публикаций представлен в конце работы.

**Личный вклад автора.** Содержащийся в работе материал отражает результаты по исследованиям нелинейно-оптических преобразований в микроструктурированных волокнах и их различных применений в МГУ им. М.В.Ломоносова в 2000 – 2024 гг. Автор выполнил ряд базовых экспериментальных работ и развил оригинальные подходы исследования спектрально-временных преобразований в различных типах микроструктурированных световодов, характеристики формируемого излучения и его использования для приложений в области нелинейной спектроскопии и микроскопии. В диссертационной работе представлены результаты, полученные лично автором или под его непосредственным руководством. Автору принадлежит постановка конкретных экспериментальных задач, нахождение их решений, развитие и обоснование экспериментальных методов, обобщение результатов.

Ниже более подробно представлен вклад автора в исследования, представленные в диссертационной работе.

Работы проводились в группе фотоники и нелинейной спектроскопии физического факультета МГУ имени М.В.Ломоносова. В целом тематика исследований, связанных с микроструктурированными (фотонно-кристаллическими) волокнами, была инициирована профессором А.М. Желтиковым. Профессор А.М. Желтиков задал общую стратегию развития нескольких направлений исследований, осуществлял их координацию, проводил общую оценку и анализ, что, в частности, нашло отражение в опубликовании ряда монографий и обзоров, которые объединили большой объем теоретических и экспериментальных результатов, полученных в группе.

В направлении, связанным с развитием экспериментальных методов исследования спектрально-временных преобразований в различных типах микроструктурированных световодов, характеристики формируемого излучения и его использования для приложений в области нелинейной спектроскопии и микроскопии вклад автора настоящей диссертации является определяющим. На первых этапах работы все эксперименты по исследованию линейных и нелинейных свойств микроструктурированных работ выполнены лично автором с использованием инфраструктуры Центра Фотохимии РАН, университета Эссене-Дуйсбурга (Германия), Международного лазерного центра Братиславы (Словакия), что нашло отражение в материалах первой главы диссертационной работы (п.п. 1.1 – 1.3). Исследования по нелинейно-оптическому преобразованию импульсов от хром-форстеритовых источников в перетянутых волокнах были выполнены совместно с Д.А. Акимовым (п.1.4). Большую роль сыграло сотрудничество с С.О. Коноровым, вместе с которым были выполнены работы по исследованию особенностей распространения излучения в полых фотонно-кристаллических световодах. Вместе с ним и В.П. Митрохиным были осуществлены эксперименты по транспортировке и использованию импульсов нано- и пикосекундной длительности в этом типе волокон (п.4.1), а также их использования в качестве элементов, повышающих чувствительность

газового анализа на основе когерентного антистоксова рассеяния света (КАРС) (п.5.1). Исследования нелинейно-оптической трансформации импульсов накачки от хром-форстеритовых генераторов, возможности управления спектрально временными характеристиками импульсов были выполнены совместно с И.В. Федотовым (п.3.2, 3.4, 3.5) и А.А. Ланиным (п.3.2). На основе фемтосекундного генератора и микроструктурированных волокон совместно с А.А. Ланиным были реализованы схемы для нелинейно-оптической спектроскопии и микроспектроскопии на основе когерентного антистоксова рассеяния света (КАРС) (п.5.4-5.6). Применение для аналогичных целей хром-форстеритовой системы с усилением было реализовано совместно с В.П. Митрохиным (п.3.5, 5.3). Работы по повышению спектрального разрешения КАРС-спектроскопии с использованием полых фотонно-кристаллических волокон выполнялись совместно с И.В. Федотовым. Эксперименты по получению излучения в видимой области за счет генерации дисперсионных волн и третьей оптической гармоники были получены лично автором, а в случае использования двухсердцевинных волокон совместно с И. Бугаром. Большой вклад в исследования нелинейно-оптической трансформации фемтосекундных импульсов среднего и ближнего инфракрасного диапазона в полых антирезонансных волокнах, формирования предельно коротких импульсов и их характеристики внесли Е.А. Степанов и И.В. Савицкий (п.2.4, 4.2). Работы по созданию яркого источника коррелированных фотонных пар и одиночных фотонов в фотонно-кристаллических волокнах и его использования для осуществления квантовой спектроскопии были выполнены совместно с Н.Л. Петровым и Н.С. Старшиновым. Численное моделирование дисперсионных свойств микроструктурированных волокон и эффекты спектрально-временной трансформации импульсов выполнялось совместно с Е.Е. Серебрянниковым и А.А. Ворониным. Необходимо отметить, что часть материала была представлена в диссертационных (В.П. Митрохин, И.В. Федотов, А.А. Ланин, Е.А. Степанов) и магистерских (Н.Л. Петров, Н.С. Старшинов) работах, выполненных под непосредственным научным руководством соискателя.

Вклад автора в представленных в диссертации исследованиях является определяющим с точки зрения постановки экспериментальных задач и обобщения результатов. Диссертация является законченным научным исследованием и по своему содержанию соответствует специальности 1.3.19. Лазерная физика.

### **Структура диссертации**

Диссертационная работа состоит из введения, содержащего защищаемые положения, пяти оригинальных глав, заключения и списка литературы. Каждая глава содержит вступление, кратко описывающее ее содержание и направления представленных исследований.

Первая глава затрагивает вопросы, связанные с основными свойствами и принципами волноводного распространения излучения в микроструктурированных волокнах. Здесь представлены основные физические механизмы, приводящие к радикальному увеличению эффективности нелинейно-оптических процессов в микроструктурированных волокнах,

среди этих явлений особое внимание уделено генерации суперконтинуума, как наиболее яркого и часто используемого нелинейно-оптического явления. Приведены основные принципы расчета волноводных мод и особенностей распространения импульсов накачки в микроструктурированных световодах. В первой главе уделено большое внимание представлению собственных оригинальных результатов, полученных автором в группе фотоники и нелинейной спектроскопии на ранних стадиях исследований микроструктурированных волокон.

Во второй главе описаны лазерные комплексы, используемые в экспериментах, кратко даны их основные технические свойства, и указаны ссылки на работы, в которых они использовались. В главе представлены основные методики и технологии изготовления микроструктурированных световодов. Здесь также представлен расчет их линейных и дисперсионных свойств с использованием основных параметров, характеризующих распространение импульсов в волокне – нелинейность, эффективная площадь моды, дисперсия. Эти расчеты выполнялись с целью нахождения оптимальной структуры фотонно-кристаллических волокон для реализации процесса спонтанного четырехволнового взаимодействия - явления, используемого для эффективной генерации квантовых состояний света. В главе дается обзор используемой измерительной техники и методик характеристики особенностей спектрально-временных преобразований лазерных импульсов. Наиболее подробно рассмотрена уникальная методика характеристики предельно коротких импульсов на основе техники прямого восстановления поля методом спектральной интерферометрии (SPIDER), в частности, ее модификации, где информация о фазе поля кодируется с помощью пространственной, а не частотной карты спектральной интерференции.

В третьей главе представлены солитонные механизмы распространения и нелинейно-оптического преобразования импульсов накачки в микроструктурированных световодах со сплошной сердцевиной, изготовленных из различных материалов. При этом основное внимание уделяется использованию импульсов накачки с частотой, лежащей в области центральной длины волны 1.25 генерации хром-форстеритовых лазерных источников, что обеспечивает возможность солитонного режима распространения импульсов для широкого разнообразия архитектур микроструктурированных световодов. Представлены различные стратегии получения перестраиваемых солитонных импульсов с кило- и мегаваттными уровнями пиковых мощностей в микроструктурированных волокнах с диаметром сердцевины от 5 до 20 мкм. Один параграф посвящен возможности эффективного получения импульсов в видимой области спектра при накачке излучением хром-форстеритового генератора в процессе излучения дисперсионных волн или генерации третьей оптической гармоники от смещающихся по длине волны солитонных импульсов. Также в главе описаны различные методы управления спектрально-временными характеристиками импульсов, а именно представлены возможности их спектрального сжатия или, наоборот, формирования коротких импульсов с длительностью нескольких циклов поля.

В четвертой главе рассмотрены особенности распространения импульсов с длительностями от нано- до фемтосекундного диапазона в полых фотонно-кристаллических световодах. Показана возможность передачи и управления характеристиками импульсов с высокими энергиями и пиковой мощностью, достаточной

для их использования в биомедицинских приложениях, в частности стоматологии и нейрохирургии. Вторая часть главы посвящена описанию физических механизмов, приводящих к генерации мультиоктавного суперконтинуума в полых антирезонансных фотонно-кристаллических световодах при накачке фемтосекундными импульсами ближнего и среднего инфракрасного диапазона. Сложная спектрально-временная динамика распространяющихся импульсов накачки обеспечивает формирование в режиме солитонной самокомпрессии волновых форм с длительностью менее одного цикла поля и гигаватными уровнями пиковых мощностей.

В пятой главе продемонстрированы возможности использования микроструктурированных волокон для целей спектроскопии, микроспектроскопии и сенсорики на основе когерентного антистоксова рассеяния света (КАРС). Продемонстрированы подходы использования световодов в качестве удобных и эффективных элементов сенсорики, когда полые фотонно-кристаллические (микроструктурированные) волокна служат объектом, заполняемым аналитом, и, благодаря волноводному характеру взаимодействия волн накачки, происходит многократное увеличение эффективности процессов нелинейно-оптического анализа. Продемонстрировано, что на основе микроструктурированных волноводов возможно реализовать эффективный источник перестраиваемых сверхкоротких импульсов для целей нелинейно-оптической биовизуализации и микроспектроскопии на основе когерентного антистоксова рассеяния света (КАРС) объектов различной природы. Представлена методика определения границ неинвазивного воздействия фемтосекундных лазерных импульсов на биологические ткани, что достигается регистрацией коротковолнового частотного сдвига спектра КАРС, возникающего за счет ионизации и генерации свободных носителей заряда.

В заключительных параграфах диссертации представлены результаты по созданию, изучению и оптимизации источника коррелированных фотонных пар, генерируемых в фотонно-кристаллических волокнах при накачке излучением Ti:Sapphire фемтосекундного генератора. Наиболее подробно рассматривается процесс генерации одиночных фотонов и коррелированных фотонных пар в волокнах с высоким двулучепреломлением в процессе векторного четырехволнового взаимодействия (ЧВВ). Продемонстрировано, что векторное ЧВВ фемтосекундных лазерных импульсов в двулучепреломляющем, высоконелинейном оптическом фотонно-кристаллическом (микроструктурированном) световоде может быть источником широкополосного многомерного перепутывания в непрерывных переменных с тонко настраиваемой энтропией и чистотой состояний. В заключение главы продемонстрированы возможности использования коррелированных фотонных пар для осуществления квантовой (фантомной) спектроскопии линейного поглощения.

В заключении сформулированы основные результаты и выводы диссертационной работы.

## Глава 1. Особенности структуры и свойств микроструктурированных волокон. Физические основы повышения эффективности нелинейно-оптических преобразований.

Нелинейно-оптические эффекты возникают при взаимодействии интенсивных электромагнитных импульсов с веществом, и увеличение длины взаимодействия приводит к увеличению эффективности нелинейно-оптического преобразования. Этот очевидный рецепт реализуется при использовании оптических световодов, хотя, существуют ряд фундаментальных физических факторов, в общем ограничивающих такую прямую зависимость. Волоконная нелинейная оптика в настоящее время является развитым научным направлением, исследующим особенности нелинейно-оптических процессов в волноводном формате, поиском путей повышения их эффективности, а также возможности использования в научных и технологических приложениях.

Микроструктурированные (МС) оптические волокна – это световоды нового типа, отличающиеся по своей архитектуре и волноводным свойствам от стандартных, используемых в телекоммуникационных приложениях оптических волокон, основанных на явлении полного внутреннего отражения. Впервые об изготовлении волноводов, оболочка которых представляет собой двумерную периодическую структуру, образованную воздушными отверстиями в стекле, сообщалось 1996 году в работе британских исследователей во главе с профессором Ф.Расселом [2]. Авторы работы [2] назвали созданные ими световоды *фотонно-кристаллическими* волокнами (photonic crystals fibers (PCF)). (Под термином «фотонный кристалл» имеется в виду многослойная диэлектрическая структура с оптическим периодом слоев  $\Lambda$  порядка длины волны света, и эта тематика активно развивалась с середины 90-х годов прошлого века). Результаты первых работ, посвященных созданию и исследованию свойств фотонно-кристаллических волокон, стимулировали интенсивные и масштабные исследования свойств подобных структур. В связи с тем, что периодичность структуры в оболочке волокна не является необходимым условием существования волноводного режима распространения излучения, также часто использовались термины *дырчатые (holley)* или *микроструктурированные (microstructured)* световоды. Эти термины подчеркивали особенность структуры этих волокон, связанную с использованием одного материала с одинаковым показателем преломления для оболочки и сердцевины, а условия волноводного распространения обеспечивались за счет структурирования оболочки капиллярами микронного и субмикронного размера.

Однако, стало быстро понятно, что и эти названия не могут охватить всего разнообразия созданных структур, существенно различающихся по архитектуре, идеологии и областям применения. В настоящее время в англоязычной литературе принято объединять подобные типы волноводов исторически сложившимся термином «*фотонно-кристаллические*», который, как отмечалось, не определяет, но выделяет целый класс оптических волноводов, у которых структура и принципы формирования направляемых волноводных мод существенно отличаются от «стандартных» телекоммуникационных

световодов. В русскоязычной литературе наряду с термином *фотонно-кристаллические* (ФК) очень часто используется название *микроструктурированные* (МС) волокна, и следуя сложившейся тенденции в настоящей работе будем использовать оба названия, считая их равноценными и взаимозаменяемыми. Для выделения определённых особенностей методов изготовления, структуры и свойств световодов, к этим названиям добавляются дополнительные термины (например, *полые фотонно-кристаллические* световоды) или используется другие отличительные названия (например, *наноструктурированные* или *перетянутые* волокна).

Первая глава диссертационной работы посвящена описанию основных линейных и нелинейных свойств микроструктурированных (МС) волокон, в том числе с использованием оригинальных результатов, которые рассматриваются в контексте развития этой тематики в группе фотоники и нелинейной спектроскопии МГУ имени М.В.Ломоносова.

## **§ 1.1. Структура и линейные свойства микроструктурированных световодов.**

Основные особенности архитектуры *микроструктурированных* волокон иллюстрируется на рисунке 1.1.1. В отличие от стандартных телекоммуникационных оптических волокон (рис. 1.1.1а), состоящих из сердцевинки с показателем преломления  $n_{core} > n_{clad}$  и сплошной диэлектрической оболочки (для полых капилляров  $n_{core} < n_{clad}$  (рис. 1.1.1б)), микроструктурированные волокна, в контексте развития этой тематики, можно определить как световодную микроструктуру с периодически либо аperiodически расположенными воздушными отверстиями в оболочке (рис. 1.1.1в). Дефект микроструктуры, соответствующий отсутствию одного или нескольких воздушных отверстий (в центре структуры на рис 1.1.1в), может выполнять функцию, аналогичную функции сердцевинки стандартного волокна, и обеспечивать волноводный режим распространения электромагнитного излучения. Размер волноводной сердцевинки может изменяться от значений порядка одного (или менее) микрометра до нескольких десятков микрометров. За счет изменения диаметра и толщины стенок капилляров в оболочке можно варьировать процентное содержание воздуха в ней и изменять эффективный показатель преломления  $n_{эфф}$  двухкомпонентной (воздух – стекло) среды. Волноводные моды в микроструктурированных волокнах формируются в результате сложной интерференции отраженных и рассеянных волн, и в общем случае их определение требует численного моделирования. Однако, условие существования волноводных мод в сердцевинке волокна, образуемой дефектом микроструктуры (рис. 1.1.1в), может быть представлено как  $n_{core} > n_{эфф}$ , т.е. подобно условию волноводного распространения света в обычном волокне, основанного на полном внутреннем отражении.

Одним из интересных свойств МС волокон, во многом стимулировавшим повышенное внимание к их развитию и изучению, является возможность поддержания одномодового режим распространения света в очень широком спектральном диапазоне, значительно превышающем диапазон одномодового распространения для стандартных

световодов. Это связано с зависимостью разности показателей преломления сердцевины и оболочки волновода от длины волны, причем таким образом, что условие одномодового режима выполняется для очень широкого спектра. Наряду с обычными волноводными режимами, обеспечиваемыми явлением полного внутреннего отражения, МС волокна при определенных условиях обеспечивают формирование волноводных мод за счет высокой отражательной способности оболочки волокна в области так называемых фотонных запрещенных зон. (Эффект возникновения фотонных запрещенных зон, характеризующихся высоким коэффициентом отражения в определенных областях спектра кратных оптическому периоду структуры, аналогичен действию многослойных диэлектрических зеркал, работающих за счет *дифракционного отражения Брега*)). Подобные режимы волноводного распространения реализуются в волокнах с оболочкой в виде двумерно периодической микроструктуры и полый сердцевинной (рис. 1.1.1г). Фотонная запрещенная зона, возникающая в спектре пропускания двумерной периодической оболочки волокон данного типа, обеспечивает высокий коэффициент отражения для излучения, распространяющегося вдоль полый сердцевины.

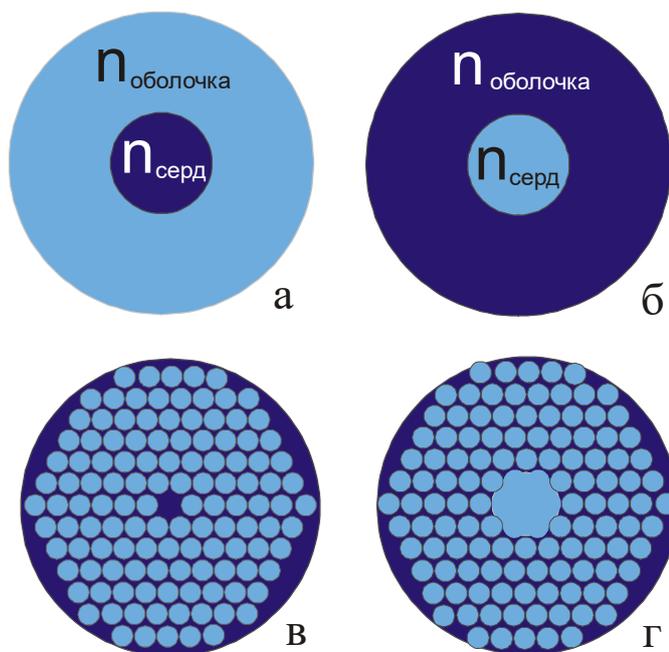


Рис.1.1.1. Различная архитектура оптических волокон: (а) стандартное оптическое волокно, состоящее из сердцевины с показателем преломления  $n_{\text{core}}$  и оболочки с показателем преломления  $n_{\text{clad}} < n_{\text{core}}$ ; (б) полое волокно (капилляр) со сплошной оболочкой  $n_{\text{core}} < n_{\text{clad}}$ ; (в) микроструктурированное волокно; (г) полое волокно с фотонно-кристаллической оболочкой.

При распространении коротких лазерных импульсов в сердцевине МС волокон, обладающих размером порядка нескольких микрометров, достигается высокая интенсивность света за счет его высокой степени *локализации*, что приводит к проявлению различных нелинейно-оптических эффектов и изменению исходных амплитудно-частотных характеристик лазерных импульсов. Использование микроструктурированных волокон открывает новые перспективы для управления эффективностью нелинейно-

оптических процессов, поскольку за счет изменения геометрии строения оболочки и сердцевины можно в широких пределах изменять *дисперсию* волновода.

Технология производства МС волокон схожа с процессом приготовления стандартных волокон и заключается в начальном составлении преформы из полых трубок (капилляров), располагающихся в гексагональном порядке вокруг сплошного стеклянного стержня (срез подобной структуры выглядит как набор воздушных отверстий, окружающих центральную область, выполняющую функции сердцевины). Затем эта преформа вытягивается в волокно с использованием стандартного оборудования для вытяжки волокон. Полые МС-волокна изготавливаются аналогичным образом, при этом центральный воздушный канал образуется за счет удаления из заготовки перед началом вытяжки одного или нескольких центральных стержней (капилляров), при сохранении достаточного количества капилляров в оболочке. Микроструктурированные волокна можно изготовить относительно длинными (более 1 км), сохраняя при этом однородность параметров. (Необходимо отметить, что принципиальная возможность создания подобных волокон была продемонстрирована еще в 70-е годы прошлого века, однако понимание и развитие их потенциала подтолкнуло развитие тематики фотонных кристаллов в 90-е годы). Полимерная оболочка наносится сверху для защиты получающегося микроструктурированного волокна от механических повреждений, что определяет удобство работы с ними. МС волокна могут также быть соединены (сварены) с другими типами волокон, хотя оптические потери в месте сварки могут составлять величину в несколько децибел, что является одним из неудобств технологии работы с МС волокнами, (более подробно эти вопросы рассматриваются в разделе 2.2).

Архитектура МС волокон является чрезвычайно разнообразной - размеры сердцевины и капилляров в оболочке изменяются от микрона до десятков, а набор отверстий в оболочке может представлять либо периодическую структуру, либо вообще состоять из одного цикла отверстий, что задает дисперсионные и нелинейные свойства световодов и определяет особенности распространения света в них. В настоящее время потери даже в лучших образцах микроструктурированных волокон еще достаточно сильно превышают потери в стандартных телекоммуникационных волокнах, и речь об их использовании для этих целей пока еще не идет. Но микроструктурированные волноводы уже прочно занимают позиции во многих научных приложениях, связанных с лазерной физикой и нелинейной оптикой.

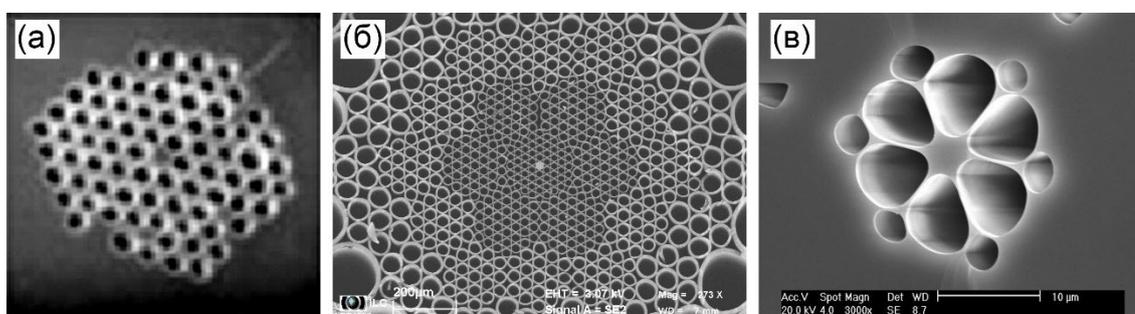


Рис.1.1.2. Примеры различной архитектуры микроструктурированных волокон: (а) – фотография первого МС волокна опубликованного в [2]; (б,в) – структуры, изготовленные отечественными производителями ТОСС (Саратов) и ГОИ им. С.М.Вавилова (Санкт-Петербург).

В нашей стране изготовление первых образцов микроструктурированных волокон было реализовано в Институте технологий и обработки стекла (ТОСС) в Саратове и ГОИ им. С.М. Вавилова в Санкт-Петербурге (несколько фотографий примеров поперечных срезов микроструктурированных световодов представлено на рис.1.1.2). Необходимо еще раз отметить усилия профессора А.М. Желтикова, который стимулировал развитие этой тематики в нашей группе и инициировал тесное и плодотворное сотрудничество с производителями волокон.

Первые эксперименты с отечественными фотонно-кристаллическими волокнами с оболочкой в виде двумерной периодической структуры, изготовленными в институте Технологии и обработки стеклянных структур (ТОСС, Саратов), были выполнены в 2000 году [18–20]. В случае периодического расположения воздушных отверстий в оболочке МС волокна, направление перпендикулярное его оси может характеризоваться наличием фотонно-запрещенных зон, т.е. областью длин волн, для которых излучение не может распространяться в оболочке. Особенностью этой структуры и работы являлось, что период данной структуры был порядка 1 мкм (рис.1.1.3), в то время как изученные ранее режимы распространения ограничивались условиями, при которых длина волны излучения была существенно меньшими периода решетки в оболочке волокна.

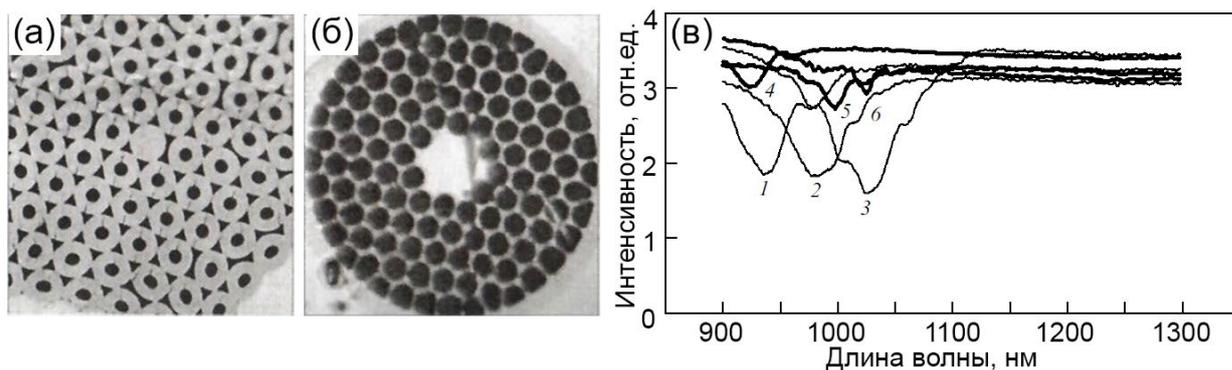


Рис.1.1.3. (а,б) Фотографии структуры фотонно-кристаллических световодов, использовавшихся в экспериментах [18–20]; (в) демонстрация возможность сдвига положения фотонных-запрещенных зон в зависимости от структуры волокна и заполнения отверстий его оболочки жидкостью [18–20].

Для расчета структуры фотонной запрещенной зоны оболочки микроструктурированных волноводов использовался подход, основанный на методе плоских волн (см. параграф 1.6), в результате было показано наличие фотонных запрещенных зон в областях, соответствующих центральной длине волны распространённых фемтосекундных лазеров. Была теоретически предсказана возможность перестройки положения фотонной запрещенной зоны путем заполнения отверстий оболочки материалом с показателем преломления отличным от показателя преломления воздуха. Экспериментальные измерения проводились в Центре фотохимии РАН на созданной установке на базе спектрофотометра «Hitachi-333». Оптическая схема содержала широкополосный источник света (лампа), излучение которой короткофокусной кварцевой линзой фокусировалось на щелевую диафрагму. Непосредственно за

диафрагмой размещался образец МС волокна, который мог вращаться вокруг своей оси. В результате измерений спектров пропускания оболочки волокна удалось наблюдать фотонные запрещенные зоны в области 930 – 1030 нм, представленные на рис. 1.1.3в, как раз определяемые наличием двумерной периодической структуры с периодом менее 1 мкм.

Из-за гексагональной структуры оболочки, положение спектров запрещенной зоны смещается при повороте угла структуры относительно зондирующего света (линии 1-3 на рис.1.1.3в). При этом положение максимумов хорошо совпадало с результатами расчета. Одной из возможностей изменения свойств оболочки является изменение показателя преломления отверстий в структуре оболочки, образующих периодическую структуру путем заполнения ее веществом с показателем преломления отличным от воздуха, что должно повлиять на спектр запрещенных зон. Действительно, при заполнении воздушных отверстий этиловым спиртом, ширина и положение запрещенной зоны меняются, что видно на рис.1.1.3в (линии 4-6). Еще раз повторим, что это были первые публикации по экспериментальному исследованию свойств микроструктурированных (фотонно-кристаллических) волокон в России.

## **§ 1.2 Микроструктурированные световоды как новые элементы для волоконной нелинейной оптики.**

В настоящем параграфе изложены основные преимущества микроструктурированных волокон для усиления нелинейно-оптических эффектов. Нелинейные явления возникают и в стандартных телекоммуникационных волокнах при распространении в них лазерных импульсов (или даже непрерывного излучения). Используемые в линиях связи лазерные импульсы стараются сделать как можно короче с целью повышения информационной емкости каналов связи, а нелинейно-оптические эффекты оказываются паразитными факторами, приводящими к изменению начальных характеристик, спектральному или временному уширению и перекрытию импульсов. В случае телекоммуникационных применений требует их минимизации, учета или даже использования, что в свою очередь приводит к развитию волоконной нелинейной оптики, которая, как отмечалось, в настоящее время является самостоятельным и обширным научным направлением.

При рассмотрении нелинейно-оптических эффектов в оптических волокнах, прежде всего обычно рассматривают фазовую самомодуляцию (ФСМ), фазовую кросс-модуляцию (ФКМ), процессы четырехволнового смешения (ЧВС), эффективность которых связана с параметром нелинейности  $\gamma$ , который может быть представлен как  $\gamma = 2\pi n_2 / (\lambda A_{\text{eff}})$ , где  $\lambda$  - длина волны излучения накачки,  $A_{\text{eff}}$  – эффективная площадь волноводной моды,  $n_2$  – нелинейный показатель преломления. Для большинства стандартных телекоммуникационных кварцевых оптических волокон  $\gamma$  имеет величину порядка  $1 \text{ Вт}^{-1}/\text{км}$ , что не дает возможности рассматривать подобные волокна в качестве эффективных нелинейных сред. Соответственно, для увеличения параметра нелинейности  $\gamma$  возможно варьировать два параметра. Во-первых, можно увеличивать нелинейный показатель

преломления  $n_2$ , что предполагает использование при изготовлении волокон стекол с более высоким нелинейным показателем преломления относительно кварцевых. Среди подходящих кандидатов можно назвать свинцово-силикатные и халькогенидные стекла, а также стекла с оксидами теллурита и висмута, эти материалы особенно важны для реализации световодов, позволяющих передавать излучение в среднем инфракрасном диапазоне. С другой стороны, увеличение параметра  $\gamma$  можно добиться уменьшением эффективной площади моды за счет специальной структуры волокна (оптические волокна, у которых  $\gamma > 10 \text{ Вт}^{-1}/\text{км}$ , называют высоконелинейными [1]). При использовании стандартного кварцевого стекла при вытяжки оптического световода для увеличения параметра нелинейности возможно прежде всего уменьшать размер сердцевины. При этом важно не только уменьшать размер самой сердцевины, но и контролировать разность показателей преломления между сердцевиной и оболочкой, поскольку эффективная площадь моды определяется не только самой площадью сердцевины, но локализацией света внутри сердцевины, зависящей от отношения показателей преломления оболочки и сердцевины. Этого можно добиться изменением уровня легирования, а в предельном случае использовать вместо оболочки воздух, что обеспечивает максимально возможную локализацию света в волноводной жиле.

Другим гораздо более емким и многообразным подходом для реализации высоконелинейных световодов, является использование преимуществ особенностей строения фотонно-кристаллических (микроструктурированных) волокон. Можно отметить, что смысловая терминология фотонно-кристаллических и высоконелинейных волокон во многом перекрываются, тем более что для изготовления ФК волокон помимо кварцевого стекла также используется как высоконелинейные, так и инфракрасные стекла.

Из простых физических рассуждений опишем основные физические механизмы, приводящие к достижению высоких значений  $\gamma$  за счет изменения степени локализации светового поля в сердцевине волокна [21,22]. Если записать, что эффективный показатель преломления оболочки  $n_{\text{clad}} = \beta_{\text{clad}}/k$ ,  $\beta_{\text{clad}}$  постоянная распространения основной моды структуры оболочки без дефекта в виде сердцевины волокна,  $k$  – волновое число. При этом запись эффективного показателя преломления в таком виде учитывает распределение профиля излучения в оболочке волновода. Для оценки эффективного радиуса  $r$  волноводной моды в сердцевине волокна, можно использовать формулу для стандартного волновода со сплошной оболочкой  $r = a + 1/\rho$ , здесь  $a$  – радиус сердцевины волокна,  $\rho^2 = \beta_{\text{core}}^2 - \beta_{\text{clad}}^2$  – поперечная составляющая волнового вектора сердцевины,  $\beta_{\text{core}} = n_{\text{core}} k \cos \varphi$  – постоянная распространения волноводной моды в сердцевине. С учетом этих выражений радиус волноводной моды можно записать

$$r = a + \frac{\lambda}{2\pi \sqrt{n_{\text{core}}^2 \cos^2 \varphi - n_{\text{clad}}^2}} \quad (1.1)$$

Из этого выражения следует, что увеличения степени локализации поля в сердцевине, и соответственно повышения эффективности нелинейно-оптических процессов можно добиться, увеличивая разность показателей преломления сердцевины и

оболочки. Это можно интерпретировать, что в этом случае в сердцевине и оболочке возникают волноводные моды, характеризующиеся большей разностью постоянных распространения. Поперечная составляющая волнового вектора моды сердцевинны волокна при этом уменьшается, что и означает увеличение степени локализации светового поля. Для микроструктурированного волокна этого можно добиться изменением структуры оболочки и повышением содержания воздуха в ней.

Рассматривая фазовую само модуляцию как наиболее распространённый нелинейный эффект при распространении лазерных импульсов в среде, можно оценить из известной формулы для фазовой само модуляции относительное изменение частоты лазерного импульса за счет нелинейной добавки к показателю преломления  $\Delta n = n_2 I$ ,

$$\frac{\Delta \omega}{\omega} = \frac{n_2 P_0}{c S \tau} L, \quad (1.2)$$

здесь и далее  $c$  - скорость света,  $P_0$  – пиковая мощность, эффективная площадь моды  $S$ ,  $\tau$  - длительность импульса,  $L$  – длина волокна. Как видно из этого выражения, увеличение содержание воздуха в сердцевине приводит к уменьшению эффективной площади моды и увеличению спектрального уширения.

Эта простая идея управления локализацией света в микроструктурированных волокнах был реализована и проверена еще на ранних стадиях исследования свойств подобных волокон, в том числе в наших первых работах по нелинейно-оптическому преобразования импульсов накачки [20–22]. В экспериментах использовались лазерное излучение от Ti:Sapphire лазерной системы с центральной длиной волны 800 нм и длительностью импульсов порядка 70 фс, которое заводилось в сердцевину волокон с различными структурами оболочки (рис.1.2.1а,б).

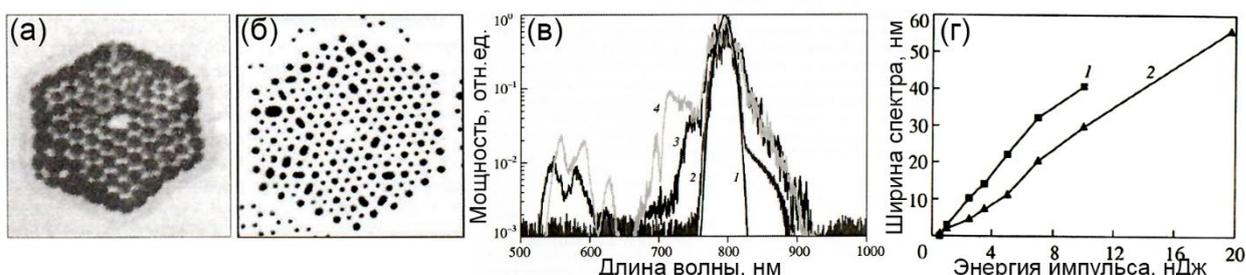


Рис.1.2.1. (а,б) Фотографии поперечного сечения микроструктурированных световодов, изготовленных в ГОИ им. С.И.Вавилова, обладающих различной степенью содержания воздуха в оболочке. (в,г) Управление эффективностью нелинейного преобразования в фотонно-кристаллических (микроструктурированных) волноводах [21].

Принципиальная схема всех экспериментов, связанных с исследованием нелинейно-оптического преобразования в МС волокнах, достаточно проста – фемтосекундное излучение с помощью микроскопного объектива (или короткофокусной линзы) фокусируется на входной торец МС волокна. С другого конца волокна излучение собирается с помощью коллимирующего объектива и анализируется спектральным прибором. В наших экспериментах были использованы короткие отрезки волокна длиной

3-4 см, что в том числе было важно для поддержания условий, при которых еще не наступает генерация суперконтинуума (наблюдение антистоксовой компоненты в спектре импульса часто свидетельствует о начальной стадии суживания спектра) и уменьшения влияния дисперсии групповой скорости. При повышении энергии импульсов накачки наблюдалось спектральное уширение, которое может быть описано выражением (2.1.2) и позволяет оценить влияние структуры оболочки на спектральное уширение, определяемой фазовой самомодуляцией импульса. На рисунке 1.2.1 представлены измеренные спектры (рис.1.2.1в) и зависимости спектрального уширения (рис.1.2.1г) импульсов в микроструктурированном волокне со структурой оболочки с периодом порядка 2 мкм, длиной 3 см и относительным содержанием воздуха  $f$  равным 65% (линия 1) и 16% (линия 2). Экспериментальные данные свидетельствуют об увеличении эффективности фазовой самомодуляции при повышении содержания воздуха в оболочке. Из графиков на рисунке 1.2.1г можно оценить отношение эффективных площадей моды волокон, как отношение наклонов зависимостей спектрального уширения лазерных импульсов на выходе из волокна. Уменьшение эффективной площади моды также возможно было оценить из анализа изображений волокон, показывающего изменение содержания воздуха в оболочке, что как было продемонстрировано выше, определяет и уменьшения эффективной площади моды.

Помимо интенсивности излучения накачки и длины взаимодействия эффективность нелинейно-оптического преобразования зависит от выполнения *условий фазового согласования* волн, которое отражает проявление закона сохранения импульса. С точки зрения волновой теории это означает, что для наилучшего энергообмена, волны с разными частотами должны распространяться с одинаковыми фазовыми скоростями, что является трудновыполнимым из-за наличия материальной дисперсии. Стандартный способ решения этой задачи основан на использовании нелинейно-оптических кристаллов, в которых условие фазового согласования выполнимо за счет анизотропии показателей преломления. Однако, преобразование частоты сверхкоротких импульсов в нелинейных кристаллах зачастую ограничено влиянием дисперсии групповых скорости и спектральным диапазоном обеспечения условий фазового согласования. Фотонно-кристаллические волокна обладают в этом отношении рядом отличительных особенностей. Изменение их структуры позволяет управлять волноводной дисперсией в масштабах недоступных для стандартных волокон, например сдвигать положение нуля дисперсии групповых скоростей в видимую область и управлять ее формой. Дисперсионные особенности ФК волокон являются вторым фундаментальным фактором, позволяющим управлять эффективностью нелинейно-оптических преобразований с использованием сверхкоротких лазерных импульсов.

### § 1.3 Усиление эффективности нелинейно-оптических преобразований и генерация суперконтинуума в микроструктурированных волокнах.

Генерация суперконтинуума – нелинейно-оптическое явление, вызвавшее повышенное внимание и интерес к фотонно-кристаллическим, заключается в сверхуширении спектра лазерного импульса благодаря проявлению различных нелинейно-оптических эффектов. Перовое наблюдение генерации суперконтинуума («белого света») относится к 70-м годам прошлого века [23]. В этой работе использовалась вторая гармоника пикосекундного Nd: YAG лазера (длина волны 532 нм), что позволяло при фокусировке в стеклянный образец создать интенсивности до  $1 \text{ ГВт/см}^2$  и наблюдать сверхуширение в спектральной области от 400 до 700 нм. Продолжившиеся экспериментальные исследования продемонстрировали универсальный характер этого явления, проявляющийся в твердых телах [24], жидкостях [25] и газах [26]. Волноводный режим распространения импульсов накачки в кварцевых волокнах также обеспечивал возможность наблюдения сверхуширения их спектра [27,28]. Высокой спектральной яркостью и когерентными свойствами суперконтинуума обеспечили пристальное внимание к этому явлению исследователей в области лазерной физики, нелинейной оптики и спектроскопии [26,27,29]. С развитием оптики сверхкоротких импульсов это явление стало применяться для формирования импульсов с длительностями порядка и менее десяти фемтосекунд [30,31] или реализации мультиплексных источников [32]. Один из авторов пионерской работы [23] Р.Альфано обобщил основные достигнутые результаты по генерации суперконтинуума в монографии [33].

Создание и развитие тематики фотонно-кристаллических световодов [2,3], которые позволяют управлять нелинейными и дисперсионными свойствами волноводных мод, позволило достичь сверхуширения спектра для неусиленных фемтосекундных импульсов с уровнями энергий нескольких наноджоулей [6,7,10]. Как обсуждалось выше, эти волокна позволяют достичь высокой степени локализации света в сердцевине волокна и открывают широкие возможности управления дисперсионными свойствами волноводных мод [8], что вызвало лавинообразное применение явления генерации суперконтинуума в МС волокнах в оптике сверхкоротких импульсов, спектроскопии, лазерной биомедицине, или даже привело к революционным изменениям в области оптической метрологии [34,35,35].

Генерация суперконтинуума в микроструктурированных является антологией нелинейно-оптических эффектов [1–3,36,37]. Основные физические механизмы эффективной генерации суперконтинуума в МС волокнах связаны с фазовой самомодуляцией (ФСМ), фазовой кросс-модуляцией (ФКМ), четырехволновыми взаимодействиями (ЧВВ) и модуляционной неустойчивостью. Наибольшие эффективности спектрального преобразования сверхкоротких импульсов в МС волокнах достигаются в режиме аномальной дисперсии, где ключевую роль играют солитонные явления, такие как солитонный сдвиг частоты [38,39], приводящий к низкочастотному смещению центральной частоты солитона, и солитонные неустойчивости [40,41], индуцирующие излучение новых спектральных компонент, смещенных в высокочастотную область

спектра. Спектральная ширина излучения суперконтинуума при определенных условиях может составлять несколько октав. Межмодовое фазовое согласование может приводить к возникновению интенсивного сигнала вблизи частоты третьей гармоники [42], который может вносить существенный вклад в генерацию широкополосного излучения на выходе волокна. Некоторые специальные типы МС волокон характеризуются сильной анизотропией формы, обусловленной эллиптической формой сердцевины, что приводит к возникновению двулучепреломления. В таких волокнах удается осуществить поляризационное управление явлением генерации суперконтинуума [43–45], а также реализовать поляризационное демультиплексирование излучения суперконтинуума [46], выделив из широкополосного излучения участки спектра с различной поляризацией. Таким образом, благодаря появлению новых волноводных структур генерация суперконтинуума получила широкое распространение как метод решения широкого круга фундаментальных и прикладных задач оптики сверхкоротких импульсов, нелинейной спектроскопии и микроскопии, лазерной биомедицины, а также оптической метрологии [37]. Полученные результаты указывают на возможность использования явления генерации суперконтинуума в микроструктурированных волокнах для создания нового поколения оптических параметрических усилителей и источников излучения для спектроскопических, метрологических и биомедицинских приложений.

Для проведения экспериментов по генерации суперконтинуума наиболее часто использовались (и используются) лазерные источники сверхкоротких лазерных импульсов на кристаллах Ti:Sapphire с центральной длиной волны  $\lambda=800$  нм. Типичные значения параметров Ti:Sapphire генераторов фемтосекундных импульсов на кристалле титаната сапфира: длительность импульса 30-100 фс, энергия в импульсе 5-10 нДж. Длина оптического волокна варьируется от нескольких сантиметров до нескольких метров. В этих условиях достаточно легко удастся наблюдать генерацию белого света (рис. 1.3.1б).

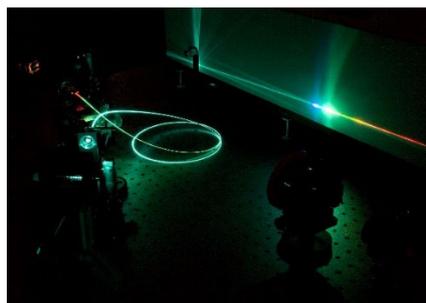
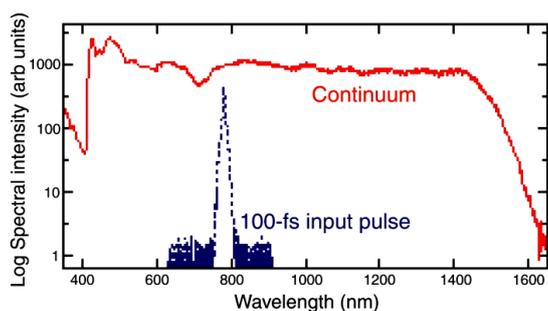


Рис.1.3.1. Генерация “белого света”: (а) первый спектр суперконтинуума от неусиленных фемтосекундных импульсов, полученный в высоконелинейных фотонно-кристаллических волокнах [10]; (б) фотография разложенного в спектр излучения суперконтинуума на выходе микроструктурированного волокна, полученного в нашей лаборатории.

Для эффективного использования излучения суперконтинуума для различных приложений необходимо не только добиться воспроизводимости и устойчивости временных параметров и спектрального состава генерируемого широкополосного излучения, но и обеспечить высокое качество пространственной моды излучения суперконтинуума. Во многих практически важных случаях высокая эффективность

генерации суперконтинуума в микроструктурированных волокнах достигается в условиях многомодового фазового согласования процессов четырехволнового взаимодействия (ЧВВ), приводящих к спектральному суживанию. Излучение суперконтинуума при этих условиях происходит в многомодовом режиме. В наших работах был развит метод пространственно-спектральной фильтрации излучения суперконтинуума, генерируемого в микроструктурированном волокне с малым диаметром сердцевины, обеспечивающим выполнение условий фазового согласования для процессов ЧВВ, приводящих к генерации новых спектральных компонент лишь в определенной волноводной моде [47,48].

Для проведения экспериментов по генерации суперконтинуума в ГОИ имени С.В.Вавилова был создан типоряд микроструктурированных оптических волокон, оболочка которых состоит из одного, двух и более гексагональных циклов воздушных отверстий, а дополнительная локализация светового поля достигается за счет системы вспомогательных воздушных отверстий меньшего диаметра (рис. 1.3.2а).

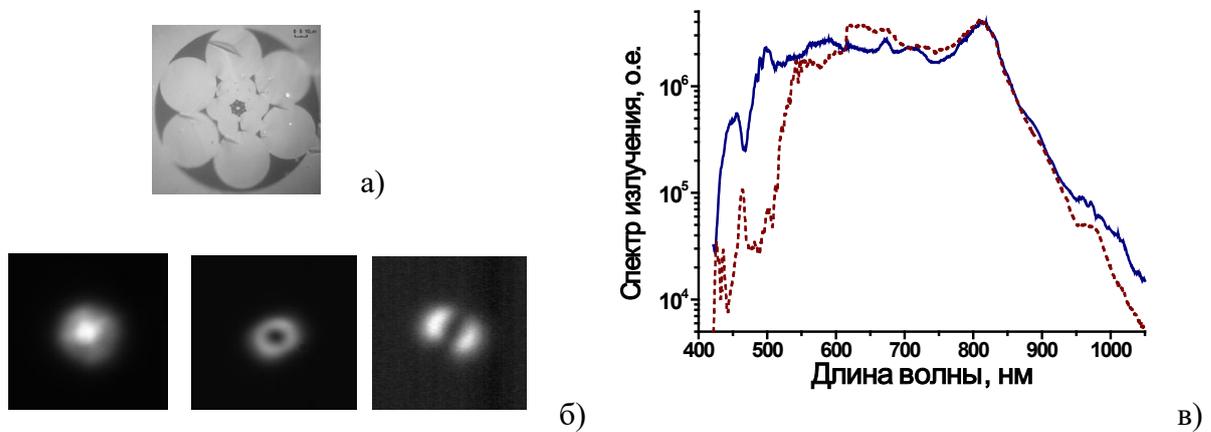


Рис.1.3.2. (а) Поперечный срез микроструктурированного волокна, используемого в экспериментах по генерации суперконтинуума. (б) Характерная модовая структура излучения суперконтинуума, измеренная в спектральной области (левая панель) 720 -- 900 нм, (центральная и правая панель) 400 -- 600 нм. (в) Спектры излучения суперконтинуума, генерируемого в микроструктурированном волокне с одним циклом отверстий, диаметром сердцевины 3 мкм и длиной 1.5 м импульсами излучения титан-сапфирового лазера длительностью 40 фс и энергией 2 нДж (пунктир) и 3 нДж (сплошная линия).

Распространение фемтосекундных импульсов накачки в микроструктурированном волокне сопровождалось их значительным спектральным уширением. При энергиях импульсов титан-сапфирового лазера на уровне нескольких наноджоулей наблюдалась генерация суперконтинуума со спектральной шириной, превышающей октаву. На рис. 1.3.2 представлены характерные спектры излучения суперконтинуума, генерируемого в микроструктурированном волокне с одним циклом отверстий, диаметром сердцевины 3 мкм и длиной 1.5 м импульсами излучения титан-сапфирового лазера длительностью 40 фс и энергией 2 нДж (пунктир) и 3 нДж (сплошная линия).

Излучение суперконтинуума генерировалось в общем случае в многомодовом режиме. Однако использование набора оптических фильтров позволило выделить

изолированные пространственные моды излучения для различных спектральных областей суперконтинуума. На левой панели рис. 1.3.2б представлена характерная модовая структура излучения суперконтинуума, генерируемого в микроструктурированном волокне с одним циклом отверстий, диаметром сердцевинки 3 мкм и длиной 1.5 м, измеренная в спектральной области 720 - 900 нм, которая имеет колоколообразную форму с единственным максимумом на оси пучка. Структура моды излучения суперконтинуума в видимой части спектра (400--600 нм) при тех же экспериментальных условиях имеет кольцевую структуру с минимумом на оси пучка (центральная панель рис. 1.3.2б). При небольшом изменении начальных условий возбуждения волноводной моды наблюдалось преобразование кольцевой моды (центральная панель рис. 1.3.2б) видимой части спектра суперконтинуума в двудольную моду (правая панель рис. 1.3.2б). Как кольцевая, так и двудольная моды характеризовались воспроизводимостью и устойчивостью и наблюдались на выходе микроструктурированных волокон с длинами, варьируемыми в диапазоне от 20 до 200 см. Из-за меньшего перекрытия двудольной моды с пространственной модой накачки интегральный по пространственным модам спектр суперконтинуума в режиме генерации двудольной моды (штриховая линия на рис. 1.3.2с) характеризовался более быстрым спадом в области коротких длин волн, чем в случае генерации кольцевой моды (сплошная линия на рис. 1.3.2с).

С физической точки зрения, возможность получения изолированных мод излучения суперконтинуума путем спектральной фильтрации основана на том обстоятельстве, что расстройка постоянных распространения, характеризующих соседние волноводные моды, увеличивается с уменьшением радиуса сердцевинки волокна. В рамках элементарной теории оптических волокон [29] соотношение между расстройкой постоянных распространения соседних волноводных мод  $\Delta\beta$  стандартных волокон и радиусом сердцевинки волокна  $a$  может быть записано в следующем виде:  $\Delta\beta \approx \frac{(\pi^2 c f_n)}{(4a^2 \omega n_c)}$ , где  $c$  – скорость света,  $\omega$  – частота излучения,  $f_n$  – функция модового индекса,  $n_c$  – показатель преломления сердцевинки волокна. Это наблюдение приводит к идее использования микроструктурированных волокон с малым диаметром сердцевинки для генерации суперконтинуума в режиме, когда для каждой спектральной области суперконтинуума (или, по крайней мере, для некоторых из этих областей), условие фазового согласования для процессов ЧВВ выполняется лишь для определенной моды генерируемой в результате ЧВВ-процесса частоты.

Наблюдаемые изменения в характере пространственного распределения интенсивности суперконтинуума в различных спектральных областях свидетельствуют об изменении характера многомодового фазового согласования для процессов ЧВВ, дающих вклад в сверхуширение спектра, для различных диапазонов частоты. Однако в каждом из исследуемых диапазонов, как следует из результатов измерений, выполненных для микроструктурированных волокон с диаметром сердцевинки 3 мкм, преобладает фазовый синхронизм для определенной пространственной моды генерируемого сигнала. Данное обстоятельство позволяет выделить изолированные пространственные моды излучения для различных спектральных областей суперконтинуума.

Важным критерием качества пространственных мод суперконтинуума может служить эффективность дальнейшего преобразования частотных компонент излучения

суперконтинуума в нелинейной среде. Этот критерий позволяет также судить о пригодности излучения суперконтинуума, генерируемого в микроструктурированных волокнах и селективируемого при помощи описанной выше методики, для реальных спектроскопических исследований и для измерений. Выполненные эксперименты по генерации суммарной частоты в нелинейном кристалле позволили также судить о длительности импульсов широкополосного излучения, генерируемого в микроструктурированном волокне в различных спектральных областях.

В серии наших экспериментов также были представлены результаты, демонстрирующие возможность управления процессом генерации суперконтинуума в микроструктурированном волокне путем изменения начального chirpa. Оптимизация начального chirpa позволяет повысить эффективность генерации суперконтинуума в микроструктурированном волокне и увеличить спектральную ширину генерируемого излучения. Начальный chirp импульса накачки, заводимого в волокно, оказывает влияние на эффективность генерации и форму спектра суперконтинуума в результате совместного действия целой группы физических факторов. Одним из наиболее важных факторов является дисперсионное расплывание короткого импульса накачки при распространении в микроструктурированном волокне. При надлежащем выборе начального chirpa имеется возможность радикального изменения поведения временной формы импульса в процессе распространения. Путем выбора знака и величины начального chirpa импульса можно добиться предварительной компенсации дисперсии групповой скорости для участка микроструктурированного волокна определенной длины (порядка  $l_c$ ), в пределах которого изначально chirпированный импульс сначала испытывает сжатие, за которым следует фаза обычного дисперсионного расплывания. Для решения задачи оптимизации начального chirpa импульса накачки с целью управления эффективностью генерации и формой суперконтинуума с учетом всего многообразия физических факторов, влияющих на процесс спектрального свехуширения в микроструктурированном волокне, в общем случае недостаточно использовать импульсы накачки с линейной модуляцией фазы. Одним из перспективных путей оптимизации начального chirpa для обеспечения эффективной генерации суперконтинуума и управления его спектральными и временными характеристиками является использование техники оптимального фазового контроля [36 - 39] на основе пространственных модуляторов света [40 - 43], позволяющих получать световые импульсы с произвольными временными профилями амплитуды и фазы.

Таким образом, на основе исследования модовой структуры и спектральных свойств излучения суперконтинуума, генерируемого в микроструктурированном волокне предложен и экспериментально реализован метод пространственно-спектральной фильтрации излучения суперконтинуума, генерируемого в микроструктурированном волокне, что позволяет повысить эффективность использования излучения суперконтинуума для спектроскопических приложений, оптической метрологии и когерентной томографии, а также открывает новые пути синтеза сверхкоротких световых импульсов.

В наших работах также активно исследовались возможности фазового согласования для процессов четырехволнового взаимодействия с участием высших волноводных мод,

что позволяет достигать высоких эффективностей нелинейно-оптического преобразования частоты фемтосекундных импульсов низкой энергии, в том числе генерации суперконтинуума [49,50]. Продемонстрирована возможность высокоэффективного мультиплексного преобразования частоты от неусиленных импульсов Ti:Sapphire и хром:форстеритовых источников с субнаноджоулевыми уровнями энергии импульсов в системе субмикронных каналов микроструктурированных волокон. Размер канала являлся ключевым параметром, определяющим дисперсионные свойства волноводных мод, и следовательно область спектра, в которую с максимальной эффективностью преобразуется частота излучения накачки [51,52]. Нелинейно-оптическая трансформация спектра фемтосекундных импульсов в такой ситуации приводит к генерации изолированных антистокосвых спектральных компонент в видимой области, при этом эффективность перекачки энергии могла достигать 20%. Интересные особенности нелинейно-оптического преобразования и свойства мод кольцевой системы связанных волноводов в МС волокне, подобные свойствам электронных волновых функций двумерной многоатомной циклической молекулы, были исследованы в работах [53,53,54]. Высокая степень локализации света в волноводных модах фотонной молекулы обеспечивает высокую эффективность нелинейно-оптических взаимодействий, позволяя достичь спектрального уширения порядка одной октавы для фемтосекундных импульсов умеренной энергии.

Исследования нелинейно-оптических преобразований лазерных импульсов в микроструктурированных волокнах, которые особенно активно проводились в первом десятилетии этого века, выявили огромный спектр новых особенностей спектрально-временных преобразований лазерных импульсов накачки, которые нашли признание в оптической физике, волоконных технологиях и биомедицинских приложениях. Прекрасные обобщающие материалы содержатся в монографиях и обзорах [1,3,9,17,36,37,55–57], однако и они не могут претендовать на абсолютную полноту отражения всех аспектов исследований.

#### **§ 1.4. Нелинейно-оптические преобразования в перетянутых высоко-нелинейных волокнах.**

В настоящем параграфе демонстрируются возможности спектрального сверхуширения неусиленных фемтосекундных импульсов лазера на хром-форстерите с центральной длиной волны в области 1.25 мкм в перетянутых волокнах. Как было отмечено в разделе 1.2, одним из способов уменьшения  $A_{\text{eff}}$  является увеличение разности показателя преломления сердцевинки и оболочки. В предельном случае показатель преломления оболочки может равняться единице, создавая наибольшую локализацию поля. Такая структура по существу означает отсутствие оболочки, что и составляет принцип построения так называемых перетянутых (tapered) волокон [58].

Используемый в наших экспериментах [59,60] световод был предоставлен группой Ф. Рассела и изготовлен из телекоммуникационного волокна (Corning SMF-28) с диаметром около 9 мкм и числовой апертурой - 0.1, которое вытягивалось при высокой температуре.

В результате диаметр перетяжки составлял около 2 мкм, ее длина 90 мм (размер областей конусного перехода порядка - 35 мм). Значение области с нулевой дисперсией групповой скорости при этом достигается в области длин волн около 700 нм. Благодаря малому диаметру волокна в перетяжке (рис.1.4.1а) и большой разнице показателей преломления кварца и воздуха достигалась высокая степень локализации лазерного излучения, и при накачке излучением фемтосекундного Ti:Sapphire лазера наблюдалось вызванное фазовой само модуляцией сверхширение спектра [58]. Соответственно, представляло интерес расширение спектрального диапазона в длинноволновую область, что особенно важно, например, для биомедицинских приложений учитывая области прозрачности биологических тканей. В этой связи удобным источником являются фемтосекундные лазеры на кристалле  $\text{Cr}^{4+}$ :форстерит ( $\text{Cr}^{4+}:\text{Mg}_2\text{SiO}_4$ ). Лазер позволяет получать импульсы со следующими параметрами: длительность 30 – 100 фс, перестройка длиной волны в области от 1.21 – 1.29 мкм при средней мощности излучения около 250 мВт и частоте повторения лазерных импульсов 120 МГц. Лазерные источники на кристалле хром–форстерита играют чрезвычайно важную роль в представленных материалах и подробное их описание содержится в Главе 2.

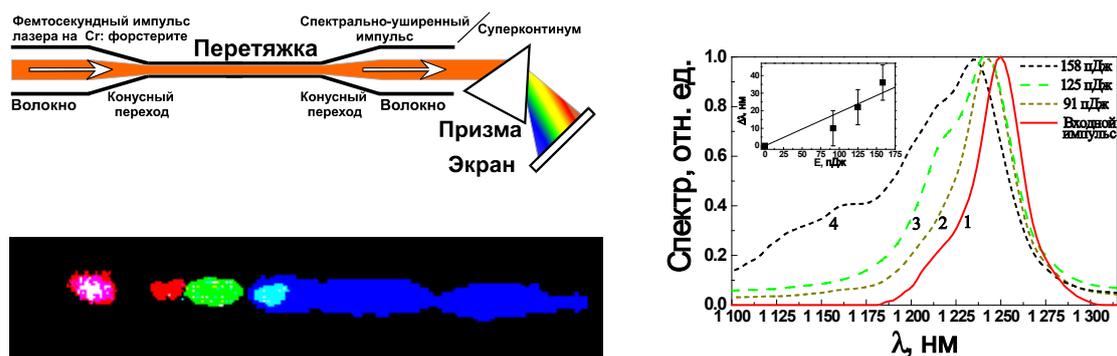


Рис. 1.4.1. Спектральное уширение субнаножджоулевых импульсов форстеритового лазера с длительностью 70 фс в перетяннутом волокне с длиной конусного перехода, равной ~35 мм, длиной перетяжки - 90 мм и диаметром перетяжки - 2 мкм. Сплошной линией 1 показан спектр входного импульса, Линиями 2 - 4 показаны спектры импульсов на выходе волокна при энергии импульса, вводимого в волокно, равной (2) 0.09, (3) 0.13, (4) 0.16 нДж. На вставке приводится зависимость спектрального уширения лазерного импульса от энергии излучения, вводимого в волокно. На вставке: схема проведения эксперимента, диаграмма распространения импульса хром-форстеритового лазера в перетяннутом волноводе. Изображения спектра импульса на выходе перетяннутого волокна, развернутые в пространстве при помощи призмы.

Эксперименты проводились в центре фотохимии РАН, в перетяннутое волокно заводилось излучение с мощностью, не превышающее 70 – 75 мВт и измерялось уширение спектра импульсов. Дисперсионные и нелинейные свойства волокна обеспечивают условия для эффективной генерации суперконтинуума в видимой и ближней инфракрасной области спектра. Существенное спектральное уширение происходило уже для импульсов с энергией менее 0.1 нДж, которое увеличивалось при повышении энергии импульсов. Согласно выражению (1.2) для элементарной теории фазовой само модуляции, эта зависимость

является линейной функцией. Из экспериментальных данных в таком режиме до формирования суперконтинуума можно было оценить нелинейный коэффициент  $\gamma \approx 150 \text{ Вт}^{-1}\text{м}^{-1}$  и нелинейную добавку к показателю преломления  $n_2 \approx 2.5 \cdot 10^{-16} \text{ см}^2/\text{Вт}$ . Генерация суперконтинуума с шириной спектра, превышающей две октавы, наблюдалась при введении в волокно импульсов хром-форстеритового лазера длительностью 40 фс и энергией 0.6 нДж и выше. При этом визуально было видно, что генерация суперконтинуума происходила непосредственно в перетянутой области. На вставке к рис.1.4.1 представлены фотографии разложенного с помощью призмы спектра импульсов на выходе волокна, при этом уширение спектра составило более двух октав.

Таким образом, нами впервые наблюдалась генерация суперконтинуума при распространении фемтосекундных импульсов хром-форстеритового лазера с энергией менее наноджоуля в перетянутаом волокне, что явилось значимым результатом в контексте исследования путей генерации суперконтинуума неусиленных фемтосекундных импульсов. Однако, наш последующий опыт работы подтвердил общую тенденцию, что особенности эксплуатации этих волокон оказываются достаточно сложными и подавляющее большинство экспериментов по нелинейно-оптическому преобразованию импульсов осуществляется со «стандартными» архитектурами фотонно-кристаллических волокон, а перетянутые волокна в настоящее время используются в качестве сенсоров газовых или жидких сред, поскольку условия распространения излучения в них оказываются чрезвычайно чувствительным к состоянию окружающей сердцевины среды.

## **§ 1.5 Основные особенности архитектуры, свойства и области применения полых капилляров и полых фотонно-кристаллических волокон.**

Одной из задач волоконной оптики является передача импульсов с высокой энергией и пиковой мощностью, однако их увеличение ограничено разрушением материала, из которого изготовлен световод. Поскольку пробой газовых сред приблизительно на три порядка больше, чем порог пробоя кварца, то использование полых диэлектрических световодов (рис.1.1.1б) представляется хорошим решением проблемы.

С развитием техники генерации сверхкоротких импульсов в конце 80-х годов идея использования волноводного режима для их транспортировки и увеличения эффективности нелинейно-оптической трансформации нашла широкое развитие. В частности, явление фазовой самомодуляции в заполненных газом полых волноводах наряду с компрессией импульсов [61–63] позволило получать импульсы нескольких циклов поля с энергиями не доступными для стандартных волокон с твердотельной сердцевиной. Полые волноводы было предложено использовать для синтеза предельно коротких импульсов на основе вынужденного комбинационного рассеяния [64]. Другой подход состоял в использовании полых волноводов для оптического преобразования частоты методами параметрического рассеяния и генерации оптических гармоник [65], Авторы этой работы экспериментально продемонстрировали, что фазовое рассогласование при нелинейно-оптическом

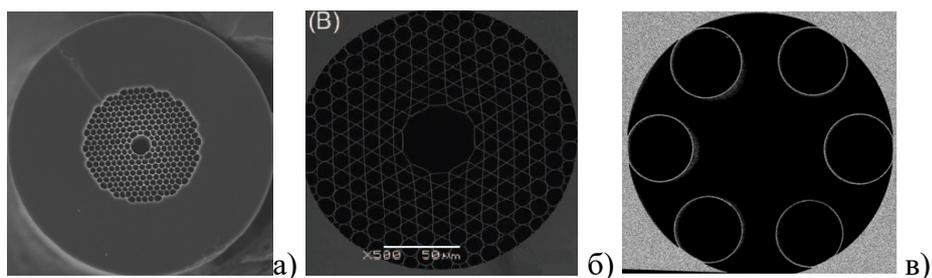
взаимодействии, связанное с дисперсией газов, может быть компенсировано за счет дисперсии волноводных мод. Также были подробно проанализированы и продемонстрированы возможности повышения эффективности генерации высоких гармоник в условиях фазового согласования за счет дисперсии газа и волноводных мод, подбора параметров импульсов накачки, это позволяло рассматривать полые волокна как альтернативу генерации высоких гармоник в газовых струях [66–68]. Проводились исследования по практическому использованию полых капилляров в области маркировки и сварки. Очень важной для наших исследований является работа [69], где впервые было продемонстрировано многократное увеличение эффективности четырехволнового взаимодействия в полый сердцевине диэлектрического капилляра, заполненного газом, что открыло перспективы использования этой методики для нелинейно-оптического газового анализа.

Однако, в световодах с полый сердцевинной (капиллярах) принципиально невозможно выполнить условия полного внутреннего отражения. Соответственно, для поддержания волноводного режима распространения света в сердцевине нужно создать принципиально иные физические механизмы, что и достигается в фотонно-кристаллических световодах за счет периодического структурирования оболочки (рис.1.1.1д). Периодическая оболочка имеет фотонно-запрещенные зоны – спектральные области, в которых свет не может распространяться по периодической структуре из-за интерференционного взаимодействия отраженных и рассеянных волн. Для обеспечения этого эффекта, нужно правильно подобрать структуру периодической оболочки, а её период должен быть сравним с поперечной компонентой поля волноводной моды сердцевины. Такой режим распространения и определил название «фотонно-кристаллические» волокна, хотя, как было отмечено, он не является принципиально необходим, для световодов со сплошной сердцевинной. Практически начиная с момента развития тематики микроструктурированных световодов со сплошной сердцевинной для полых фотонно-кристаллических волноводов были поняты их принципиальные преимущества и начались активные исследования в области транспортировки и спектральных преобразований мощных лазерных импульсов в волноводном режиме.

В работе [70] показано, что изменяя структуру сердцевины и оболочки, можно сдвигать пики пропускания в спектре волноводных мод, достигая, таким образом, максимума пропускания на требуемой длине волны. С точки зрения дисперсионных свойств полых ФК волокон, важной является та особенность, что дисперсия групповых скоростей в каждой фотонно-запрещенной зоне монотонно изменяется от положительной до отрицательной независимо от центральной длины волны фотонно-запрещенной зоны, что открывает широкие возможности для управления дисперсионным профилем. В работе [71] демонстрируется возможность передавать фемтосекундные лазерные импульсы с интенсивностями порядка  $10^{10}$  Вт/см<sup>2</sup> в сердцевине полого волокна вблизи нуля дисперсии групповых скоростей без нелинейно-оптического искажения спектрально-временных характеристик излучения. Так как оптическая нелинейность вещества в газовой фазе при нормальных условиях на три порядка ниже (например, для атмосферного воздуха) нелинейности плавленого кварца, а порог оптического пробоя значительно выше порога

пробоя прозрачного диэлектрика, заполненные газовой средой полые ФК-волноводы позволяют реализовать солитонные [72] режимы распространения для фемтосекундных импульсов мегаваттного уровня пиковой мощности [73]. Солитонное сжатие мощных сверхкоротких импульсов в полых ФК-волокнах было осуществлено в работах [74,75]. Полые ФК волноводы могут использоваться в качестве различных логических элементов для мощных лазерных импульсов: переключателей [76], ограничителей [77] и диодов [78]. Явления пространственного самовоздействия мощных лазерных импульсов в полых ФК волноводах приводят к самоканалированию излучения [79], позволяя реализовать принципиально новые режимы транспортировки сверхкоротких импульсов сильных световых полей. Необходимо отметить, что для создания полых ФК волокон может применяться не только кварц или другие типы стекол, но также и органические материалы [80].

Помимо оболочки с фотонно-кристаллической структурой широкое распространение получили полые световоды с решеткой кагоми (рис.1.5.1) вырожденный случай периодической гексагональной структуры капилляров с тонкими стенками, образующей практически идеальную гексагональную решетку), а волноводное распространение поддерживается не за счет фотонно-запрещенной зоны, а благодаря связи, аналогичной связи между состояниями Неймана-Вигнера и континуумом [81]. При этом волноводная мода существует одновременно с модами оболочки без какого-либо существенного взаимодействия между ними [82]. В сравнении с “классическими” ФК волокнами, волокна с решеткой кагоми обеспечивают значительно более широкие спектральные области пропускания, и обладают отличной дисперсией, как по величине, так и по частотной зависимости [83]. В качестве иллюстрации этих свойств волокон с решеткой кагоми можно привести работу [84], в которой спектральная ширина области пропускания полого волокна превышала 1000 ТГц.



*Рис.1.5.1 Фотографии поперечного сечения полых фотонно-кристаллических волокон. а) структура оболочки содержит периодическую структуру, обеспечивающую ее высокую отражательную способность в области фотонно-запрещенных зон; (б)- полое волокно с оболочкой в виде решетки кагоми, поддерживающее волноводное распространение за счет того, что волноводная мода слабо взаимодействует с континуумом мод оболочки благодаря очень большой степени фазового рассогласования поперечных компонент поля мод сердцевины и оболочки. (в) полое антирезонансное волокно револьверного типа.*

В последующие годы круг применений полых волноводов еще больше расширился, были развиты методы частотного сдвига и компрессии миллиджоулевых импульсов мультитигаваттного и субтераваттного уровня пиковой мощности [85–87], методы получения экстремально коротких импульсов с длительностью менее половины оптического периода, в том числе и перестраиваемых по частоте [88–92].

Другой структурой оболочки полого волновода, функционирующего на принципах резонансного (анти-резонансного) интерференционного отражения, является архитектура револьверного типа, когда её полая сердцевина окружена одним кольцом из нескольких тонкостенных капилляров. Эффект антирезонанса на субмикронных стенках капилляров и их отрицательная кривизна (радиус кривизны поверхности капилляров направлен против радиус-вектора) позволяют достичь низких потерь при распространении излучения достигающих 10 дБ/км в нескольких спектральных полосах, шириной более октавы [93,94]. Структура волновода такого типа с одной стороны достаточно проста в производстве по сравнению с другими антирезонансными волокнами, например волокнами с решеткой типа кагоме, но с другой стороны изменение параметров капилляров, толщины их стенок, количества и размера, позволяет очень точно управлять дисперсионными свойствами и положением окон пропускания. Уменьшение толщины стенки капилляра до значения порядка 0.5 мкм позволяет сдвинуть первый резонанс на границу видимого и инфракрасного спектральных диапазонов, создавая окно пропускания с низкими потерями в инфракрасной области шириной более двух октав, а варьирование давления газа, заполняющего полую сердцевину волокна, позволяет управлять положением точки нуля дисперсии групповых скоростей для фундаментальной моды. Отличительные особенности этого типа полого волокна делают его мощным универсальным инструментом для формирования мультиоктавного суперконтинуума и генерации предельно коротких лазерных импульсов мощности в ближнем и среднем инфракрасном диапазоне, чему будет посвящен параграф 4.2.

Помимо важных свойств полых ФК световодов, связанных с возможностью передачи мощных импульсов в волноводном формате, другим принципиально важным преимуществом ФК волокон является то, что они позволяют добиться значительного увеличения эффективности нелинейно-оптического взаимодействия излучения с веществом (жидкостью или газом), заполняющим полую сердцевину, за счет поддержания высокой интенсивности излучения, распространяющегося в волноводном режиме по сердцевине волокна. Волноводный режим распространения излучения обеспечивает увеличение длины взаимодействия импульса (или импульсов) с веществом, что позволяет существенно до  $10^7$  раз повысить эффективность нелинейно-оптических процессов взаимодействия по сравнению с режимом жесткой фокусировки [82]. Это позволяет снизить минимально необходимые концентрации исследуемого вещества [95] или требования мощности используемых лазерных импульсов для нелинейно оптических методик на основе вынужденного комбинационного рассеяния [96,97], четырехволновых взаимодействий [98,99], когерентное антистоксово рассеяние света (КАРС) [100]. В работе [101] с использованием наполненного водородом полого ФК волновода была продемонстрирована генерация частотной гребенки спектральной шириной в три октавы, а

в работе [102] продемонстрирована принципиальная возможность реализации ВКР лазера. С помощью ФК волокон был достигнут значительный прогресс в области управления движением частиц и транспортировки микронных частиц [103].

В работах нашей группы также активно исследовались волноводные свойства полых фотонно-кристаллических волокон, включая модовый состав, спектры пропускания и длины распространения [104,105]. Четвертая глава будет полностью посвящена исследованию возможностей полых фотонно-кристаллических волокон для транспортировки и нелинейно-оптического преобразования лазерных импульсов

## **§ 1.6. Волноводное увеличение эффективности нелинейно-оптических процессов. Методы численного анализа распространения электромагнитного излучения в микроструктурированных волокнах.**

В основе волоконной нелинейной оптики лежит принципиальная идея использования оптических световодов для увеличения длины нелинейно-оптического взаимодействия [2]. Можно оценить степень увеличения эффективности нелинейно-оптических процессов в оптическом световоде (например, фазовой само- или кросс-модуляция), вводя отношение произведения  $l_{eff}$  для волокна и режиме жесткой фокусировки ( $I$  - интенсивность излучения,  $l_{eff}$  - эффективная длина взаимодействия). В режиме жесткой фокусировки длина взаимодействия ограничена длиной области перетяжки (для гауссового пучка  $l_{eff}^t \approx \frac{\pi w_0^2}{\lambda}$ ), где  $w_0$  - радиус перетяжки сфокусированного пучка,  $\lambda$  - длина волны излучения, тогда можно записать выражение для коэффициента увеличения эффективности нелинейно-оптического процесса в волокне с коэффициентом потерь  $\alpha$  ( $\alpha l \gg 1$ ,  $l$  - длина волокна) [3]:

$$\frac{I_f l_{eff}^f}{I_t l_{eff}^t} \approx \frac{\lambda}{\pi w_0^2 \alpha'} \quad (1.3)$$

где  $I_f$ ,  $I_t$  - интенсивности излучения в случае использования волокна или режима жесткой фокусировки. Это выражение в явном виде демонстрирует, что увеличение эффективности нелинейно-оптических процессов достигается за счет локализации поля в сердцевине волокна с малым радиусом сердцевины  $a$  и малыми потерями ( $l_{eff}^f \approx \frac{1}{\alpha}$ ). Этот рецепт повышения эффективности нелинейно-оптических процессов оказывается пригодным лишь до определенных пределов, т.к. при уменьшении размера сердцевины волокна возрастает влияние эффектов дифракции, приводящих к уменьшению доли мощности излучения, локализованной в сердцевине волокна. Для учета дифракционных потерь запишем произведение интенсивности электромагнитного излучения на эффективную длину взаимодействия в оптическом волокне в следующем виде:

$$I_f l_{eff}^f = \int_0^l \frac{P\eta}{\pi a^2} \exp(-\alpha z) dz, \quad (1.4)$$

где  $\eta$  - часть мощности излучения, локализованная в сердцевине волокна. Вычисляя интеграл в этом выражении и считая, что для волновода выполняется  $\alpha l \gg 1$ , получим

$$\xi = \frac{I_f I_{eff}^f}{I_t I_{eff}^t} \approx \frac{\lambda \eta}{\pi a^2 \alpha} \quad (1.5)$$

Это выражение позволяет оценить фактор волноводного увеличения эффективности нелинейно-оптических процессов с учетом распределения мощности излучения между сердцевиной и оболочкой волокна. Как уже обсуждалось, физический предел увеличения эффективности нелинейно-оптических процессов в волноводном режиме, возникающий из-за наличия дифракционных потерь, увеличивающихся с уменьшением размера сердцевины, может быть существенно расширен за счет высокой степени локализации электромагнитного излучения в волноводных модах микроструктурированных волокон.

Настоящая диссертационная работа включает в основном экспериментальные результаты. Однако, интерпретация и понимание процессов спектрально-временного преобразования импульсов в микроструктурированных волокнах были бы невозможны без теоретического анализа, который включает численный анализ. Более того можно сказать, что и изначальная реализация самих световодных структур с необходимыми нелинейными и дисперсионными свойствами была бы затруднительна без реализации методов, рассчитывающих эти структуры. Соответственно, заметный вклад во многие представленные работы принадлежит сотрудникам нашей группы Е.Е. Серебрянникову и А.А. Воронину, выполнивших большинство численных расчетов.

Задачу теоретического анализа можно условно разделить на две части: во-первых, это анализ собственных мод микроструктурированных световодов, в результате которых определяются дисперсионные и нелинейный характеристики световодов, и во-вторых, непосредственно численный анализ распространения излучения в световодах, который представляет физические механизмы и явления, ответственные за спектрально временные преобразования импульсов накачки.

Как уже было отмечено, фотонно-кристаллические волноводы были созданы под влиянием развития тематики фотонных кристаллов и особенностей распространения излучения в подобных структурах. Фотонно-кристаллический световод рассматривался как двумерный фотонный кристалл с нарушением структуры решетки в виде расположенных в центре стержней или отсутствия нескольких центральных элементов (волновод с полый сердцевиной), а полученный таким образом дефект является сердцевиной световедущей системы. Структура микроструктурных оптических волокон имеет цилиндрическую симметрию и постоянна вдоль оси волокна  $z$ , соответственно зависимость поля от координаты  $z$  может быть описана фазовым множителем  $\exp(i\beta z)$ , где  $\beta$  – постоянная распространения. Расчёт собственных мод световода состоит в определении постоянной распространения  $\beta$  и соответствующей ей формы моды для заданного поперечного сечения волокна и длины волны поля. Задача описания волноводных мод микроструктурированных световодов в общем случае сводится к анализу системы уравнений Максвелла [1,106] для векторов электрического и магнитного поля. С учетом

того, что профиль диэлектрической проницаемости в оптическом волокне зависит только от поперечных координат, волновые уравнения сводятся к задаче на собственные функции и собственные значения уравнения Гельмгольца с соответствующими граничными условиями [106]:

$$\Delta \vec{E} = \varepsilon(r, \omega) \frac{\omega^2}{c^2} \vec{E}, \quad (1.6)$$

где  $\Delta$  – оператор Лапласа, а  $\varepsilon(r, \omega)$  – структура диэлектрической проницаемости волокна. Можно сказать, что нахождение собственных мод оптического световода аналогично решению стационарного уравнения Шредингера [1]. Однако для реальных микроструктурированных волокон нахождение невозмущенного базиса мод, как правило, оказывается достаточно трудной задачей. Поэтому для анализа световодов со сложной структурой распределения профиля показателя преломления обычно применяется ряд приближенных численных методов (см., например, [5,107–112], каждый из которых имеет свою область применения и обладает теми или иными достоинствами и недостатками. Ниже кратко остановимся на их особенностях.

Одним из самых известных и распространенных методов численного решения задач электродинамики является метод конечных разностей во временной области (FDTD) [107,113]. В классической постановке метод FDTD основан на дискретизации уравнений Максвелла, записанных в дифференциальной пространственно-временной формулировке. Существует множество модификаций данного метода с применением нелинейных или неортогональных сеток [110,114,115], повышающих эффективность исходного варианта и дающих возможность рассчитывать, например, сложные структуры с дефектами (в том числе фотонно-кристаллические волноводы). Универсальность данного метода позволяет применять его для как для расчетов полей в структурах, так и для вычисления коэффициентов отражения и пропускания сложных диэлектрических сред, а также для построения дисперсионных диаграмм и диаграмм плотности состояния с целью нахождения фотонных запрещенных зон.

Метод конечных элементов [116,117] является сеточным методом, предназначенным для решения задач микроуровня, для которого модель объекта задается системой дифференциальных уравнений в частных производных с заданными краевыми условиями. Преимущество данного метода заключается в возможности использования конечных элементов простой формы, вычисление интегралов по которым не вызывает затруднений. Однако при вычислении дисперсионных характеристик и полей в фотонно-кристаллических волноводах с оболочкой в виде такой сложной структуры, как, например, решетка Кагоми пользоваться настоящим методом нецелесообразно, так как подобрать соответствующие конечные элементы простой формы не удастся.

Метод многократного рассеяния был специально разработан для расчета структур, представляющих собой среду из параллельных диэлектрических цилиндров, находящихся в однородной диэлектрической среде [118]. Причем, расположение цилиндров друг относительно друга может быть произвольным и даже случайным. Поле в данном методе

представляется в виде падающего и рассеянного излучения с помощью преобразования Фурье-Бесселя. Данное разложение содержит падающее поле, результат его рассеяния на цилиндрах и локальной дифракции. Использование данного метода затрудняется наличием в структуре большого числа элементов. Кроме того, в случае, когда решетка фотонного кристалла или оболочки фотонно-кристаллического волокна образована не цилиндрами, а трубками сложной формы, задача составления матриц рассеяния становится нетривиальной и не гарантирует точных результатов.

Метод локализованных функций [119,120] был разработан специально для расчета мод, локализованных в дефектах фотонно-кристаллических структур. Первый шаг заключается в нахождении с помощью любого удобного метода решения в виде волны Блоха в отсутствие дефекта, то есть для идеально периодической бесконечной периодической диэлектрической среды. Вариант метода локализованных функций, в котором разложение ведется по известным полиномам Гаусса-Эрмита, позволяет довольно точно рассчитывать двумерные структуры с малым числом дефектов, но при этом требует оперирования достаточно большим числом базисных функций. Главным недостатком методов данного типа остается невозможность учесть и рассчитать вытекающие и делокализованные моды, такие как поверхностные и объемные волны.

На фоне упомянутых выше способов расчета наиболее удобным и простым в реализации представляется метод разложения по плоским волнам [66, 67, 76–79]. Метод плоских волн – это векторный полуаналитический метод. В нём векторное волновое уравнение сводится к алгебраической задаче на собственные значения разложением поперечного поля и поперечного профиля показателя преломления по ортогональному набору базисных функций – плоским волнам. Его основная идея заключается в записи общего уравнения для компонент электрического или магнитного поля в виде задачи на собственные значения, решения которой, согласно теореме Блоха, производится посредством представления поля в исследуемой структуре в виде суперпозиции плоских волн. При этом рассматриваемое фотонно-кристаллическое волокно представляется в виде бесконечной среды из периодически упорядоченных волноводов. Такой подход позволяет рассчитывать как электромагнитные поля в волноводных структурах, так и их дисперсионные свойства.

Существует несколько относительно простых приближенных методов, так для качественного анализа свойств фотонно-кристаллического волокна с поллой сердцевиной может быть использована модель коаксиального волновода [110,124]. В рамках этой модели оболочка волокна, окружающая полую сердцевину, представляет собой периодическую систему коаксиальных диэлектрических цилиндров. Для получения дисперсионного соотношения, определяющего постоянные распространения волноводных мод, структура волокна разбивается на две области. Вблизи сердцевины точное решение уравнений Максвелла определяется парой линейно независимых цилиндрических функций и матрицей перехода от одного цилиндрического слоя к другому, определяющейся граничными условиями. На большом расстоянии от сердцевины используется асимптотическое представление функций Бесселя, а для описания решения в этой области используется теорема Блоха. Сшивка решений на границе областей, позволяет найти

дисперсионное соотношение. Распределение поля может быть получено при помощи матрицы перехода, если предварительно задать начальные значения коэффициентам при функциях Бесселя, описывающее поле в сердцевине волокна.

В использованных коллегами методов [3,125,126] для определения свойств волноводных мод микроструктурированных и полых фотонно-кристаллических волокон использовались подходы, которые укладываются в схему обобщенного метода Галеркина [127]. В заданной системе координат электромагнитное поле представляется в виде разложения по системе базисных функций. Подстановка полученных функциональных рядов в волновое уравнение (1.7) сводит исходную задачу к нахождению собственных функций и собственных значений матричного уравнения, что позволяет определить постоянные распространения и распределения поля в волноводных модах. Для волокон использующих разные механизмы волноводного распространения в качестве базиса удобно использовать различные системы функций. Метод, основанный на разложении поля по функциям Эрмита-Гаусса [5,108], хорошо зарекомендовал себя при расчете микроструктурированных волноводов работающих на явлении полного внутреннего отражения. Причем, как для волокон с периодической и квазипериодической оболочкой, так и для волокон со случайным профилем показателя преломления. В работе [128] проводится подробное сравнение и анализ численных методов с точки зрения их эффективности и применимости к различным типам микроструктурированных световодов.

Дисперсия играет одну из определяющих ролей при распространении сверхкороткого импульса в оптическом волокне. Хорошо известно, что дисперсионный профиль представляет собой взаимосвязь волнового вектора  $k$  и несущей частоты  $\omega$ . В волноводных модах вместо вектора  $k$  удобно пользоваться постоянной распространения  $\beta$ , которая представляет собой проекцию вектора  $k$  распространяющегося излучения на ось волновода. Часто бывает удобно представить эту зависимость в виде разложения в ряд Тейлора с началом в точке несущей частоты импульса  $\omega_0$ :

$$\beta(\omega) = \beta_0(\omega_0) + \beta_1(\omega_0)(\omega - \omega_0) + \beta_2(\omega_0)(\omega - \omega_0)^2/2 + \dots, \quad (1.7)$$

где  $\beta_1 = 1/v_{gr}(\omega_0)$ ,  $\beta_2 = k''(\omega_0)/2$  - дисперсия групповой скорости. Для сверхкоротких импульсов, которые обладают значительной спектральной шириной, такое представление уже является недостаточно полным, поэтому в расчетах требуется учитывать более высокие члены ряда Тейлора. Часть спектра, где  $\beta_2 > 0$  называется областью нормальной дисперсии. В этом случае из соотношения  $\beta_2 = -\frac{1}{v_{gr}^2} \frac{dv_{gr}}{d\omega} > 0$ , видно, что более высокую групповую скорость имеют спектральные компоненты с большей длиной волны. При распространении в среде с нормальной дисперсией передний фронт импульса постепенно обогащается “красными” спектральными компонентами. Соответственно, часть спектра, где  $\beta_2 < 0$ , носит название области аномальной дисперсии. В этой области более коротковолновые компоненты опережают длинноволновые.

На распространение сверхкороткого лазерного импульса в оптическом волокне влияют как линейные (затухание, дисперсия), так и нелинейные эффекты (фазовая

само модуляция, рамановское (комбинационное) рассеяние, параметрические процессы на  $\chi^{(3)}$ , генерация третьей гармоники самокручение заднего фронта импульса, ионизация, плазменная нелинейность и поглощение). Эти процессы приводят к изменению как профиля импульса во времени, так и к изменению его спектрального состава.

Моделирование распространения сверхкоротких импульсов в волокне выполнено на основе одномерного обобщенного нелинейного уравнения Шредингера (ОНУШ) для комплексной версии поля  $A(z, t)$ , полученного в рамках параксиального приближения. Отсутствие медленно меняющейся огибающей поля в этой модели и приближения медленно меняющихся амплитуд позволяет рассчитывать импульсы с длительностью до одного и даже менее одного оптического периода [129].

$$\begin{aligned} \frac{\partial A(z, \omega)}{\partial z} = & i \left( \beta(\omega) - \frac{\omega}{v_g} - \alpha(\omega) \right) A(z, \omega) + \\ & + \frac{i\omega}{c} F \left[ n_2 \left\{ \int_{-\infty}^{\infty} R(t-t') |A(z, t')|^2 dt' + \frac{\chi^{(3)}}{4n_0^2 c \epsilon_0} |A(z, t)|^3 \right\} A(z, t) \right] - \\ & - F \left[ \frac{U_i W(I) (\rho_0 - \rho(z, t))}{2I} A(z, t) \right] - \left( \frac{i\omega_0^2 \omega}{2cn_0 \rho_c (\omega^2 + \tau_c^{-2})} + \frac{\sigma(\omega)}{2} \right) F[\rho(z, t) A(z, t)] \end{aligned} \quad (1.8)$$

Здесь  $z$  – координата распространения,  $\omega$  – частота,  $\beta(\omega)$  – дисперсия основной моды ФК волокна, рассмотренная в предыдущем подпункте,  $v_g$  – скорость сопровождающей импульс системы координат,  $t$  – время в сопровождающей импульс системе координат,  $n_2$  – нелинейный показатель преломления,  $\alpha(\omega)$  – волноводные потери на вытекание моды и поглощение,  $F$  – оператор преобразования Фурье,  $n_0$  – показатель преломления на центральной частоте импульса  $\omega_0$ , функция отклика  $R(t)$  включает в себя как мгновенный отклик электронов, так и запаздывающий молекулярный отклик  $R(t) = (1 - f_R)\delta(t) + f_R h_R(t)$ , где  $h_R(t) = \frac{\tau_1^2 + \tau_2^2}{\tau_1 \tau_2} \exp(-t/\tau_2) \sin(t/\tau_1)$ ,  $\chi^{(3)}$  – нелинейная восприимчивость третьего порядка для процесса генерации третьей гармоники,  $c$  – скорость света в вакууме,  $\epsilon_0$  – диэлектрическая проницаемость в вакууме. Значения параметров  $\tau_1, \tau_2$ , например, для плавленого кварца можно найти в [1]. В случае распространения мощных импульсов в полых волноводах значительную роль может иметь ионизация, описанная в членах на третьей строчке уравнения (1.7). Здесь  $U_i$  – потенциал ионизации,  $W(I)$  – скорость ионизации, вычисленная по модификации Попова-Переломова-Терентьева модели Келдыша,  $\rho(z, t)$  – электронная плотность,  $\rho_0$  – плотность нейтральных частиц,  $\rho_c$  – критическая плотность плазмы,  $\tau_c$  – эффективное время электронных столкновений,  $\sigma$  – сечение лавинной ионизации, учитываемой по модели Друде.

Первое слагаемое в правой части ОНУШ отвечает за линейные эффекты, т.е. дисперсию и потери, а второе – за нелинейные эффекты, куда включены фазовая само модуляция, дисперсия нелинейности (приводящая к самокручению фронта импульса), рамановское рассеяние, генерация третьей гармоники. Третье слагаемое описывает ионизацию, плазменную нелинейность, дисперсию и потери. Решение уравнения ОНУШ производится в основном методом расщепления по физическим факторам [1], в

котором линейная часть решается Фурье-методом, а нелинейная методом Рунге-Кутты четвертого порядка точности. На выходе получаются карты динамики огибающей импульса  $|A(z, t)|^2$  и его спектра  $|A(z, \omega)|^2$  при распространении вдоль волокна. Задав длину распространения, можно получить спектр импульса на выходе из волокна. Именно спектр является наиболее простым способом сравнения результатов моделирования с экспериментальными результатами.

При дальнейшем изложении материалов диссертационной работы будут не раз использоваться результаты численного моделирования, выполненные с использованием методов расчета как дисперсии используемых в экспериментах волокон, так и особенностей спектрально-временной трансформации импульсов при распространении в волокнах, основанной на решении обобщенного нелинейного уравнения Шредингера (ОНУШ).

Подводя итоги настоящей главы, можно сказать, что микроструктурированные (фотонно-кристаллические) световоды являются уникальным объектом для реализации новых режимов нелинейно-оптического преобразования в волоконном формате. Потенциал МС волокон сразу привлек повышенное внимание к исследованию их дисперсионных и нелинейных свойств. В диссертационной работе наибольшее внимание будет уделено вопросам, связанным с: (i) спектрально-временными преобразованиями в микроструктурированных волокнах с твердотельной сердцевиной импульсов от хром-форстеритовых лазерных систем в солитонном режиме; (ii) исследованиями возможности транспортировки и нелинейно-оптических преобразований мощных импульсов в волноводных модах полых фотонно-кристаллических световодов; (iii) демонстрацией различных приложений различных типов МС световодов для нелинейно-оптической микроспектроскопии, сенсорики и квантовой оптики.

## **Глава 2. Экспериментальная техника и методики анализа спектрально-временных преобразований лазерных импульсов в микроструктурированных световодах.**

Представленные в настоящей диссертационной работе экспериментальные результаты были получены на протяжении более чем двух десятков лет в различных лабораториях и организациях. Для решения поставленных задач требовалось обладать тремя основными составляющими - непосредственно микроструктурированными световодами, лазерными источниками импульсов накачки и измерительно-аналитическим оборудованием для проведения анализа спектрально-временных трансформаций излучения накачки. В большинстве случаев принципиальная схема экспериментов по нелинейно-оптическому преобразованию лазерных импульсов выглядит достаточно просто: излучение накачки с определенными характеристиками с помощью линз или объективов заводится в микроструктурированный световод таким образом, чтобы избежать фотоповреждения сердцевины или оболочки волокна и обеспечить наилучшее согласование числовых апертур фокусирующих элементов и световодных структур для достижения максимального коэффициента заведения. При распространении импульсов в световоде возникают различные линейные и нелинейно-оптические эффекты, которые проявляются в изменении спектрально-временных, пространственных и модовых характеристик излучения, анализируемых с помощью соответствующих приборов или методик.

Поскольку в диссертационной работе не ставится задача детально описать каждую использованную экспериментальную схему, в данной главе будут кратко представлены основные составляющие экспериментальной лазерной техники, которые будут сгруппированы и сведены в таблицу. При изложении оригинальных результатов будут также даваться необходимые ключевые характеристики используемых источников, волокон и методик, и также соответствующие ссылки на представленные в данной главе и опубликованные материалы, в которых можно ознакомиться с подробным описанием той или иной темы.

### **§ 2.1. Лазерные системы для исследования нелинейно-оптических преобразований в микроструктурированных световодах.**

Для экспериментального исследования нелинейно-оптических преобразований в микроструктурированных волноводах прежде всего требуется наличие импульсных лазерных источников. В настоящем параграфе описаны характеристики основных типов используемых лазерных источников и систем видимого, ближнего и среднего инфракрасного диапазона, которые будут сведены в итоговую таблицу.

Можно без сомнения утверждать, что фемтосекундные лазерные системы на кристалле Ti:Sapphire занимают лидирующие позиции в приложениях, где требуется использование сверхкоротких лазерных импульсов. Вибронный кристалл Ti:Sapphire ( $Ti^{3+}:Al_2O_3$ ) обладает исключительно широким спектром усиления 650 – 1100 нм с центральной длиной волны около 800 нм, что позволяет генерировать сверхкороткие импульсы с длительностями около 10 фс без использования дополнительных (внешних) нелинейно-

оптических преобразований с последующей временной компрессией. Кроме того, кристалл Ti:Sapphire обладает высоким порогом пробоя и прекрасной теплопроводностью. Хорошо развитые технологии изготовления кристаллов с большой апертурой и высокими значениями коэффициентов усиления обеспечивают возможность построения полностью твердотельных лазерных систем петаваттного уровня мощности. С другой стороны, получение сверхкоротких импульсов с высокой частотой повторения и энергией от нескольких нано- до микроджоулей возможно непосредственно из генераторов, что является востребованным в задачах нелинейной микроспектроскопии, биофотоники и микромодифицирования. Ti:Sapphire лазерные генераторы и системы стали незаменимым инструментом в научных и технологических задачах, и сейчас практически невозможно в полном объеме описать все области их приложения.

В наших исследованиях были использованы различные лазерные системы на кристалле Ti:Sapphire, которые имелись непосредственно в распоряжении нашей группы в МГУ имени М.В.Ломоносова или использовались в рамках совместных работ с группами в университете г. Эссен (Германия) и Международного лазерного центра Братиславы (Словакия). При проведении экспериментов с высоконелинейными микроструктурированными волокнами со сплошной сердцевиной обычно достаточно использования излучения Ti:Sapphire генераторов. В этом случае импульсы обладали следующими характерными параметрами: центральная длина волны 800 нм, область перестройки в пределах 720 – 870 нм, частота повторения порядка 100 МГц (соответствует длине резонатора порядка одного метра), энергия импульса до 10-15 нДж (средняя мощность до 1 Вт), длительность импульса варьировалась от 30 до 120 фс.

Для проведения экспериментов со световодами с увеличенной сердцевиной или полыми фотонно-кристаллическими волокнами требуются импульсы с гораздо большей энергией, что диктует необходимость использования многопроходных или регенеративных систем на основе принципа усиления чирпированных импульсов. В различных вариантах используемых лазерных систем энергия импульсов варьировалась от 0.1 до 2.4 мДж при частоте повторения от 50 до 1000 Гц. Конечно, такие значения являются очень высокими, поэтому для устранения возможных последствий, связанных с разрушением материалов волокон, энергия этих импульсов значительно ослаблялась.

Для расширения спектральной области перестройки лазерных систем использовались оптические параметрические усилители (ОПУ), накачиваемые излучением Ti:Sapphire усилителей. Оптические параметрические усилители были построены на кристаллах ВВО с двух или трехпроходными схемами. В результате на выходе ОПУ формировались перестраиваемые по длине волны импульсы на длинах волн сигнальной (1100 – 1550 нм) и холостой (1650 – 2100 нм) волн. Энергия импульсов в различных схемах и реализациях варьировалась от десятков до сотен микроджоулей, а длительности импульсов имели разброс от 60 до 120 фс.

Хотелось бы еще раз отметить, что в экспериментах использовались разные модификации Ti:Sapphire лазерных систем, которые неоднократно модернизировались в процессе эксплуатации, что отражается в достаточно высоком разбросе указанных выше

параметров. Характерные особенности, параметры и локализация установок представлена в Таблице 1.

Особое значение в наших исследованиях играли фемтосекундные лазерные системы на основе кристалла хром-форстерита ( $\text{Cr}^{4+}:\text{Mg}_2\text{SiO}_4$ ), что во многом было связано с многолетним и плодотворным сотрудничеством с группой А.А.Иванова в Центре Фотохимии РАН. На первых этапах развития исследований нелинейно-оптических преобразований в микроструктурированных световодах это была единственная доступная для нас в России фемтосекундная лазерная система. Фемтосекундный генератор в Центре Фотохимии РАН был построен по стандартной Z-образной схеме с керровской нелинейностью на кристалле  $\text{Cr}^{4+}:\text{Mg}_2\text{SiO}_4$  с оптической накачкой от непрерывного Nd:YAG лазера. В начале совместных работ лазер позволял получать импульсы со следующими параметрами: длительность 30 – 100 фс, перестройка длины волны в области от 1.22 – 1.28 мкм при средней мощности излучения около 250 мВт на центральной длине волны и частоте повторения лазерных импульсов 120 МГц. В дальнейшем хром-форстеритовый генератор неоднократно модифицировался, в частности вместо непрерывной накачки твердотельного Nd:YAG лазера использовались волоконные иттербиевые источники. Далее в совместных работах были созданы варианты этого лазера с большой средней мощностью (до 1 Вт), удлиненным резонатором, позволяющим получать импульсы с энергией до 30 нДж, что является уникальным значением для данного типа фемтосекундных источников. Эти лазеры были уже реализованы непосредственно в нашей группе в МГУ им. М.В.Ломоносова [130–132]. При этом хотелось бы отметить заметное значение исследований, проводимых в МГУ для развития источников на кристалле хром-форстерита. В частности, в 2000 году была опубликована работа [133], сформулировавшая основные перспективы этих источников для развития оптики сверхкоротких импульсов, это нашло свое продолжение в создании современной лазерной установки для разнонаправленных исследования в области фемтосекундной оптики среднего инфракрасного диапазона [134].

В совместных работах в Центре Фотохимии РАН нами также использовался регенеративный хром-форстеритовый фемтосекундный усилитель, накачиваемый излучением импульсного Nd:YLF-лазера. Усиление проводилось в режиме усиления чирпированных импульсов до энергий порядка 100 мкДж при частоте повторения 1 кГц, а сжатие лазерных импульсов осуществлялось решеточным компрессором, обеспечивавшим их длительность в диапазоне 70 - 150 фс. Эти импульсы использовались в различных экспериментах с волокнами с увеличенной сплошной сердцевиной или полыми фотонно-кристаллическими волокнами. Также необходимо отметить сотрудничество нашей группы и А.А.Иванова с группой профессора Ч.К.Суна из Национального университета Тайваня (Тайпей, Тайвань), в соавторстве с которым был опубликован ряд работ, связанных с развитием фемтосекундных хром-форстеритовых источников [135] и исследованию с их помощью нелинейно-оптических преобразований в микроструктурированных волокнах.

Физически важной причиной использования хром-форстеритовых источников является расширение спектрального диапазона накачки оптических световодов относительно возможностей Ti:Sapphire лазерных систем. Кроме того, центральная длина

волны  $\text{Cr}^{4+}$ :форстеритовых источников лежит в области 1.25 мкм, что соответствует нулю дисперсии групповых скоростей (ДГС) для плавленого кварца, который в основном используется для изготовления микроструктурированных световодов. При распространении импульсов в области с аномальной ДГС возможно формирование оптических солитонов. Как уже отмечалось, замечательным свойством МС световодов является возможность сдвига нуля дисперсии групповых скоростей в пределах недостижимых для стандартных волокон, в частности в области характерные для  $\text{Ti:Sapphire}$  и итербиевых источников (700 – 1100 нм). Однако, такой сдвиг достигается в основном за счет уменьшения размера сердцевины световода, что ограничивает возможность увеличения энергии используемых импульсов накачки из-за возможности оптического пробоя материала. При увеличении сердцевины ДГС волокна приближается к значениям характерным для материала, из которого изготовлено волокно (в основном речь идет о плавленом кварце), поэтому использование источников в области 1.25 имеет важную роль для исследований нелинейно-оптических эффектов, связанных с солитонными явлениями в световодах с увеличенной сердцевиной. Эти вопросы будут подробно рассмотрены в следующей Главе 3.

В диссертационной работе также представлены эксперименты с пико- и наносекундными лазерными источниками. Использование наносекундных источников имеет большие преимущества для целей осуществления спектроскопии, в частности спектроскопии на основе когерентного антистоксова рассеяния света (КАРС) с высоким спектральным разрешением. В то же время пикосекундные импульсы занимают некоторое промежуточное положение, обеспечивая достаточно высокие пиковые мощности импульсов накачки при относительно узкой спектральной ширине, что делает возможным их применение как в области спектроскопии, так и лазерного микромодифицирования и биомедицины. В экспериментах использовались импульсные источники на кристалле  $\text{Nd:YAG}$  (центральная длина волны 1.06 мкм). В случае наносекундных импульсов генерация осуществлялась в режиме модуляции добротности с последующим усилением до энергий 200 мДж при их длительности порядка 10 нс. Эти импульсы использовались как непосредственно для экспериментов на основной длине волны, так и для накачки лазеров на красителе с предварительным удвоением основной частоты излучения в кристаллах  $\text{KDP}$  или  $\text{DKDP}$  до энергий порядка 20 – 30 мДж. При использовании различных схем лазеров на красителях (реализованных с использованием в качестве диспергирующего элемента набора призм или дифракционной решетки) и различных органических красителей удавалось получать перестраиваемые по длине волны импульсы в области 560 – 720 нм с различной спектральной шириной. Эти импульсы впоследствии использовались для метрологии МС волокон, получения суперконтинуума от наносекундных импульсов в боковых каналах микроструктурированных волокон или схемах КАРС-спектроскопии, о чем подробно изложено в Главе 5.

Пикосекундные импульсы также были получены с помощью  $\text{Nd:YAG}$  лазерного генератора с пассивной синхронизацией мод, позволяющим получить цуг 40 пс импульсов с суммарной энергией до 1 мДж на длине волны 1.06 мкм. За счет использования электрооптической системы было возможно выделять одиночный импульс, который

усиливался в двух каскадах до значений порядка 40 мДж. Эти импульсы возможно было использовать для генерации второй оптической гармоники и получения пикосекундных импульсов с энергией 5-8 мДж на длине волны 532 нм. Система функционировала с частотой 2 Гц и использовалась для демонстрации возможностей использования полых фотонно-кристаллических волокон для передачи высокоэнергетичных импульсов для целей лазерной хирургии и стоматологии (Глава 4), а также демонстрации возможности радикального повышения эффективности четырехволнового взаимодействия в полых фотонно-кристаллических световодах (Глава 5).

Наконец, в наших экспериментах использовались две иттербиевые фемтосекундные твердотельные лазерные системы. Во-первых, это лазерный генератор производства компании Авеста (Россия), позволяющий генерировать импульсы с длительностью 200 фс на длине волны 1030 нм, частотой повторения импульсов порядка 120 МГц и средней мощностью до 5 Вт. Во-вторых, это установленная в Российском квантовом центре (ООО «МЦКТ») уникальная лазерная система, разработанная в Венском технологическом университете. В состав системы входят: фемтосекундный генератор, четырёхпроходный стретчер, регенеративный усилитель и компрессор. Импульсы фемтосекундного генератора на кристалле Yb:KGW с накачкой непрерывным излучением лазерных диодов растягиваются во времени в стретчере, а затем поступают в регенеративный усилитель на основе кристалла Yb:CaF<sub>2</sub>. Накачка лазерного кристалла осуществляется мощным InGaAs лазерным диодом, излучающем в непрерывном режиме. После усиления и сжатия в компрессоре до длительности порядка 200 фс энергия лазерных импульсов составляет 7 мДж. Для накачки оптического параметрического усилителя используется порядка 1 мДж, в то время как остальные 6 могут использоваться в других оптических экспериментах независимо. Частота повторения импульсов на выходе регенеративного усилителя составляет 1кГц, центральная длина волны равна 1030 нм, флуктуации энергии менее 1.5% RMS, качество пучка M<sup>2</sup> не хуже 1.2. Импульс с энергией порядка 1 мДж, входящий в ОПУ делится на 4 реплики, одна из которых служит источником генерации суперконтинуума для затравки, а остальные - для накачки четырёх каскадов усиления фемтосекундного оптического параметрического усилителя. Суперконтинуум генерируется в недопированном кристалле алюмоиттриевого граната, обеспечивающем высокую спектральную яркость с центром в области 1460 нм. Накачка каскадов усилителя на основе кристаллов КТР осуществляется 200-фс импульсами задающей системы на длине волны 1030 нм. Первые три каскада ОПУ на нелинейно-оптических кристаллах КТР усиливают сигнальный импульс на длине волны 1500 нм. На выходе из третьего кристалла отфильтровывается импульс холостой волны с энергией порядка 6 мкДж и усиливается в четвёртом каскаде ОПУ на основе нелинейно-оптического кристалла КТА до энергии порядка 70-100 мкДж, длительность импульса составляет около 200 фс.

Генерируемые в оптических параметрических усилителях (ОПУ) как этой лазерной системы, так и описанной ранее Ti:Sapphire лазерной системы использовались для исследования спектрального сверхуширения импульсов накачки и генерации предельно коротких лазерных импульсов в заполненных газами полых антирезонансных волокнах (Глава 4).

**Таблица 1. Параметры лазерных систем, используемых в экспериментах по исследованию нелинейно-оптических явлений в микроструктурированных световодах.**

Наименование	Функциональные блоки	Длительность импульсов	Энергия, частота следования, средняя мощность	Центральная длина волны, область перестройки	Местонахождение, ссылка на публикации автора
1. Наносекундный лазерный комплекс	Задающая Nd:YAG генератор с электрооптической модуляцией с двумя каскадами усиления	10 нс	150 мДж < 10 Гц	1.06 мкм	МГУ им. М.В.Ломоносова  (67 – 74)
	Система удвоения частоты на кристалле KDP	10 нс	< 20 мДж (два канала) < 10 Гц	532 нм	
	Лазер на красителе	10 нс	1 - 2 мДж < 10 Гц	540- 720 нм (для различных красителей)	
2. Пикосекундный лазерный комплекс	Задающий Nd:YAG генератор с пассивной синхронизации мод	40 пс	< 1 мДж 2 Гц	1.06 мкм	МГУ им. М.В.Ломоносова  (43, 44, 46, 49, 50, 65, 66)
	Три каскада Nd:YAG усилителей	40 пс	< 30 мДж 2 Гц	1.06 мкм	
3. Ti:Sapphire фемтосекундный комплекс	Генератор	70 фс	< 3 нДж 100 МГц 0.5 Вт	800 нм (770 – 830 нм)	Университет г.Эссен-Дуйсбург, Германия  (3- 8)
	Регенеративный усилитель	70 фс	< 1 мДж 1 кГц	800 нм	
4. Ti:Sapphire фемтосекундный комплекс (КДП, Россия)	Генератор	50 - 70 фс	< 3 нДж 100 МГц 0.5 Вт	800 нм (760 – 840 нм)	Международный Лазерный Центр Братислава, Словакия  (10 – 15)
	Регенеративный усилитель	70 фс	< 1 мДж 1 – 4 кГц	800 нм	
5. Ti:Sapphire фемтосекундный комплекс (КДП, Россия)	Генератор	30 – 50 фс	< 3 нДж 100 МГц 0.5 Вт	800 нм (760 – 840 нм)	МГУ им. М.В.Ломоносова  (20, 35, 38, 39, 85, 86)
	Многопроходный усилитель	60 - 70 фс	< 1 мДж 50 кГц	800 нм	
6. Ti:Sapphire фемтосекундный	Генератор	30 – 40 фс	< 5 нДж 70 МГц	800 нм (760 – 840 нм)	МГУ им. М.В.Ломоносова

комплекс 2 (Авеста, Россия)			0.5 Вт		(54, 55, 57 – 59, 87 – 93, 96)
	Регенеративный усилитель	50 – 60 фс	< 2.2 мДж 1 кГц	800 нм	
	Оптический параметрический усилитель. Система генерации разностной частоты	50 – 60 фс 50 – 60 фс	< 0.2 мДж 1 кГц < 20 мкДж 1 кГц	1100 - 2200 нм 3000 – 10000 нм	
7. Ti:Sapphire комплекс	Генератор, параметрический генератор	100 – 120 фс	< 20 нДж 76 МГц < 4 Вт	760 - 840 нм	Казанский Квантовый Центр КНИТУ-КАИ (62, 94, 95)
8. Фемтосекундная Cr:forsterite система	Фемтосекундный генератор	50 - 100 фс	< 3 нДж 100 МГц < 0.4 Вт	1200 - 1300 нм	Центр фотохимии РАН (16, 17, 40, 42, 51, 77, 78)
	Регенеративный усилитель	100 фс	< 1 мДж 1 кГц	1200 нм	
9. Лазер на кристалле Cr:forsterite	Фемтосекундный генератор	50 - 100 фс	< 5 нДж 100 МГц < 0.5 Вт	1200 - 1300 нм	Университет г. Милуоки, Висконсин, США (34)
10. Лазер на кристалле Cr:forsterite	Фемтосекундный генератор	50 - 100 фс	< 5 нДж 100 МГц < 0.5 Вт	1200 - 1300 нм	МГУ им. М.В.Ломоносова (25, 26)
11. Лазер на кристалле Cr:forsterite	Фемтосекундный генератор с удлиненным резонатором	50 - 100 фс	< 25 нДж 20 МГц < 0.3 Вт	1200 - 1300 нм	МГУ им. М.В.Ломоносова (22, 23, 27 – 31, 36, 37, 79– 83)
12. Иттербиевая лазерная система	Фемтосекундный генератор с регенеративным усилителем	180 - 200 фс	< 8 мДж 1 кГц < 8 Вт	1060 нм	Российский квантовый центр, Сколково (56)
	Оптический параметрический усилитель	180 - 200 фс	< 100 мкДж 1 кГц	2000 – 4000 нм	
13. Иттербиевый фемтосекундный генератор	Фемтосекундный генератор	200 фс	< 10 нДж 100 МГц < 5 Вт	1060 нм	МГУ им. М.В.Ломоносова (52)

## **§2.2. Методы изготовления и основная классификация микроструктурированных световодов.**

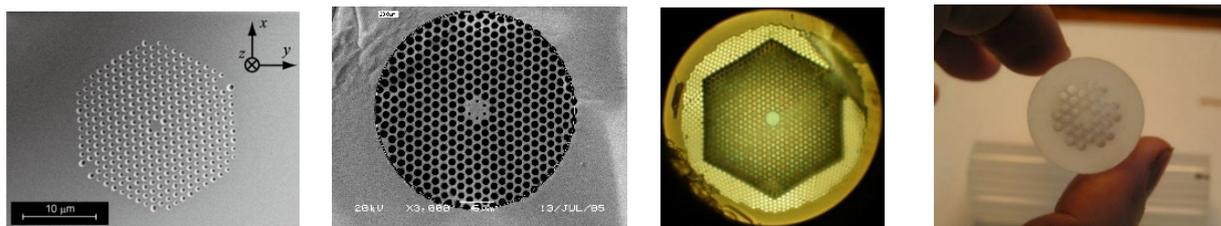
Изготовление простейших типов (микроструктурированных) волокон не представляло принципиальных сложностей уже на ранних этапах развития волоконной оптики. Известным фактом является, что в начале 70-х годов прошлого века в компании Corning (США) были изготовлены волокна, которые по своей архитектуре могли бы быть классифицированы как «фотонно-кристаллические» в современной интерпретации этого термина. Однако, понимание функциональных возможностей фотонно-кристаллических (микроструктурированных) волокон стало возможным гораздо позже, и было достигнуто на основе идейного и технического прогресса сразу в нескольких областях оптики и лазерной физики, включая оптику сверхкоротких импульсов и физику фотонных кристаллов. Как уже отмечалось, первое сообщение об изготовлении фотонно-кристаллических волокон было опубликовано в работе группы Ф.Рассела (Bath, UK) в 1996 году [2], и вот уже почти на протяжении трех десятков лет это направление активно развивается. В результате активной работы большого числа научных групп и компаний были продемонстрированы различные технологии изготовления и направления применений фотонно-кристаллических волокон в качестве преобразователей частоты лазерных импульсов, волоконных усилителей, источников квантовых состояний света, сенсоров и многих других применений.

Следуя представленной в [3] классификации, можно отметить четыре основных типа фотонно-кристаллических (микроструктурированных) световодов: МС волокна со стеклянной (сплошной) сердцевиной и оболочкой с воздушными каналами, волокна с набором интегрированных световодных каналов, перетянутые и полые ФК волокна. Однако, по причине бурного развития тематики фотонно-кристаллических волокон в начале этого века, расширения разнообразия структур, принципов волноводного распространения и областей применений МС волокон, вряд ли сейчас есть необходимость пытаться провести строгую классификацию их структуры.

В настоящее время производство МС световодов осуществляется несколькими компаниями в Англии, США, Дании, Австралии и Китае и такие волокна являются коммерчески доступным продуктом. Архитектура МС волокон является чрезвычайно разнообразной - размеры сердцевины и капилляров в оболочке изменяются от субмикронных масштабов до десятков микрометров, а набор отверстий в оболочке может представлять либо периодическую структуру, либо вообще состоять из одного цикла отверстий, что определяет особенности распространения света в конкретных микроструктурированных световодах. Несмотря на значительный прогресс в технологиях изготовления, потери даже в лучших образцах микроструктурированных волокон еще достаточно сильно превышают потери в стандартных волокнах, и речь об их использовании для телекоммуникационных приложений не идет. Но микроструктурированные волноводы уже прочно занимают позиции во многих научных приложениях, связанных с лазерной физикой и нелинейной оптикой.

В нашей стране микроструктурированные волокна изготавливаются (или изготавливались) в ГОИ им. С.М.Вавилова в Санкт-Петербурге, Институте технологий и обработки стекла (ТООС) в Саратове и Научном центре волоконной оптики Института Общей Физики имени А.М.Прохорова РАН в Москве. В исследованиях, проводимых в группе фотоники и нелинейной спектроскопии МГУ им. М.В.Ломоносова и представляемых в рамках настоящей работы, использовались в основном отечественные микроструктурированные волокна. Однако, нельзя не отметить, что несколько образцов различных типов ФК волокон было предоставлено группами Ф.Рассела и университета г.Тянджин в рамках совместных исследований, и также использовалось коммерческое волокно модели NL-PM-750 (NKT-Photonics).

Как уже отмечалось в первой главе, технология получения микроструктурированных световодов во многом подобна технологии изготовления стандартных световодов. Это достаточно сложная многоступенчатая процедура, которую можно условно разделить на две важные части – создание преформы и затем вытяжка из этой преформы волоконного световода. Создание исходной преформы является ответственной операцией, так как дальнейшие операции уже не могут изменить структуру расположения отверстий и стабильность их размеров по длине преформы. Наиболее распатроненным методом формирования исходной преформы является так называемый метод "stack and draw" (сборка и перетяжка). В этом случае сначала изготавливаются (вытягиваются) исходные стеклянные капилляры и стержни. Затем отрезки этих капилляров и стержней собираются в задаваемую структуру. В сборке структурные элементы – капилляры укладываются в упаковку (наиболее часто гексагональную), в центре которой находился кварцевый сплошной стержень с диаметром равным диаметру капилляра, который в дальнейшем будет служить световодной сердцевиной (в случае изготовления волокон со сплошной сердцевиной). Завершается формирование исходной преформы стадией спекания капилляров и стержней, чтобы ликвидировать пустоты между ними. Преформа микроструктурного световода представляет собой стеклянный стержень диаметром 10-30 мм с внутренними отверстиями, расположенными вдоль продольной оси. Изготовление такой преформы в одну стадию является слишком трудной задачей, поэтому она разбивается на несколько стадий. Сначала изготавливается исходная преформа с размером отверстий порядка 1 мм. Затем она растягивается, и на нее "нахлопывается" стеклянная трубка. Далее осуществляется вытяжка из этой сборки предволокна диаметром 2-3 мм, и затем на окончательном этапе осуществляется перетяжки предволокна в микроструктурированного волокна с заданной архитектурой. В зависимости от используемой марки стекла экспериментальным путем определяется оптимальное значение температуры нагревателя, при которой в процессе перетяжки сборки происходит схлопывание межэлементных полостей, но не наблюдается существенная деформация элементов структуры. С целью создания избыточного давления внутри капилляров, и тем самым предотвращения деформации структуры и единичных элементов при перетяжке, все используемые при получении структуры трубки запаиваются с одной стороны.



*Рис.2.2.1. Образцы используемых микроструктурных волокон*

С точки зрения формирования структуры фотонно-кристаллических волокон, задающей его принципиальные свойства, является первый этап формирования преформы. В Научном центре волоконной оптики при Институте общей физики им. А.М.Прохорова РАН проводились исследования по разработке методики изготовления преформ микроструктурированных волноводов с помощью сверления в массивном стеклянном стержне. В этом случае исходная преформа изготавливается в одну стадию, что позволяет избежать трудностей, связанных с точностью сбора преформы из капилляров и стержней, а также проблем при высокотемпературной вытяжке первичной преформы. Этот метод позволяет создавать преформы с требуемыми параметрами для большого спектра задач. Более того, он применим также для создания преформ из других материалов (например, с высокой нелинейностью, таких как теллуридное или свинцовосиликатное стекло), из которых трудно получить необходимые для сборки капилляры.

Основное отличие процедуры изготовления полых фотонно-кристаллических волноводов заключается, в том, что на этапе сборки преформы в центре структуры изымается определенное количество капилляров. Образовавшийся дефект служит волноводом при условии наличия периодической структуры оболочки, обеспечивающей наличие фотонно-запрещенных зон. Необходимо отметить, что в случае световодов с решеткой кагоме или полых анти-резонансных волокон детали технологии изготовления существенно отличаются, при сохранении общих принципов.

В диссертационной работе представляются результаты экспериментов с использованием широкого набора микроструктурированных (фотонно-кристаллических) световодов, соответственно при описании конкретного эксперимента будут даваться необходимые основные свойства волокон.

### **§ 2.3. Анализ свойств микроструктурированных световодов для повышения эффективности четырехволновых взаимодействий.**

В параграфе 1.6 отмечалось, что в общем случае расчет распределения поля, модового состава, нелинейных и дисперсионных свойств микроструктурированных световодов представляет сложную задачу, требующую применения различных численных методов. Однако, для определения базовых свойств часто бывает достаточно проведения

относительно несложного анализа и расчета, который позволяет оценить основные особенности дисперсии и нелинейности микроструктурированных волокон.

Микроструктурированное волокно (рассматривается волокно со сплошной сердцевиной) достаточно точно может быть описано несколькими физическими параметрами: материалом, из которого оно изготовлено, радиусом сердцевины  $a$ , коэффициентом заполнения оболочки воздухом  $f$  и величиной двулучепреломления  $\delta n$ . Технологичность и замечательные оптические свойства плавленого кварца делают его наиболее часто используемым материалом при изготовлении световодов. Будем рассматривать световод со сплошной сердцевиной, показатель преломления  $n_{core}(\omega)$  задается уравнениями Селмейра  $n_{core}(\omega) = 1 + \sum_j \frac{B_j \omega_j^2}{\omega_j^2 - \omega^2}$ , а соответствующие коэффициенты представлены в [136]. «Классическая» структура микроструктурированного световода выполнена в виде гексагональной решетки с периодом  $\Lambda$ , состоящей из капилляров с диаметром отверстия  $d$ . Вместо одного из капилляров используется стержень, который создает дефект в периодической структуре и является волноводной структурой, по которой распространяется излучение за счет явления полного внутреннего отражения. На рис. 2.3.1 показаны варианты архитектур поперечных сечений фотонно-кристаллических световодов. Коэффициент заполнения оболочки волокна воздухом вычисляется как отношение площади воздушных отверстий к общей площади поперечного сечения оболочки.

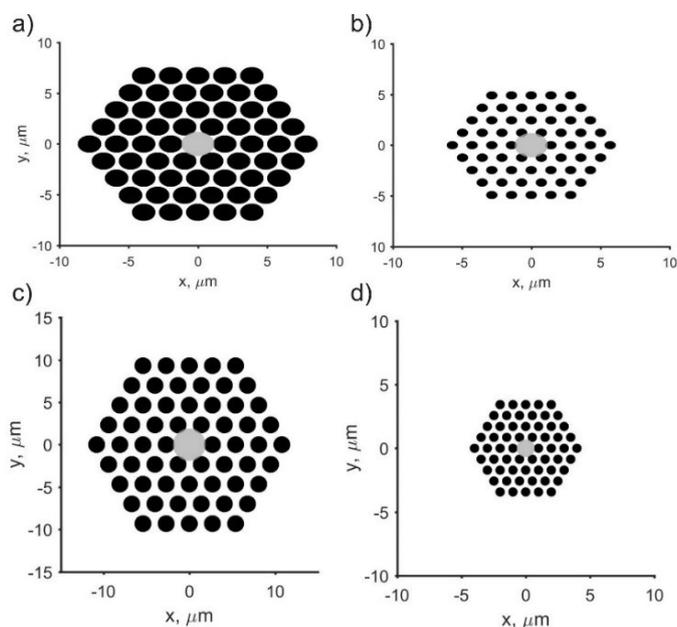


Рис. 2.3.1. Примеры структуры поперечного сечения микроструктурированных световодов с различными значениями радиусов сердцевины  $a$  и коэффициентами заполнения оболочки воздухом  $f$ : a)  $a = 1.2$  мкм,  $f = 70\%$ ; b)  $a = 1.2$  мкм,  $f = 30\%$ ; c)  $a = 2$  мкм,  $f = 50\%$ ; d)  $a = 0.5$  мкм,  $f = 50\%$ . Воздушные отверстия показаны черным цветом.

Строго говоря, для описания распространения света в подобных сложных волноводных структурах (рис. 2.3.1) требуется численное решение уравнений Максвелла [137]. Однако, в работе [128] было показано, что для фундаментальной моды  $HE_{11}$

постоянная распространения  $\beta(\omega)$  и нелинейность  $\gamma$  с достаточной точностью совпадает с параметрами стандартного световода со ступенчатым показателем преломления, у которого показатель преломления сердцевинки  $n_{core}(\omega)$ , а эффективный показатель преломления оболочки задается как  $n_{clad}(\omega) = f + (1 - f)n_{core}(\omega)$ . В этом случае характеристическое уравнение для постоянных распространения волноводных мод  $\beta(\omega)$  представляется [138]:

$$\left[ \frac{J'_\nu(p)}{pJ_\nu(p)} + \frac{K'_\nu(q)}{qK_\nu(q)} \right] \left[ \frac{J'_\nu(p)}{pJ_\nu(p)} + \frac{n_{core}^2(\omega) K'_\nu(q)}{n_{clad}^2(\omega) qK_\nu(q)} \right] = \left( \frac{vc\beta(\omega)}{\omega n_{core}} \right)^2 \left( \frac{V}{pq} \right)^2 \quad (2.1)$$

где  $p = \sqrt{(\omega n_{core}(\omega)/c)^2 - \beta^2}$ ,  $q = \sqrt{\beta^2 - (\omega n_{clad}(\omega)/c)^2}$ ,  $V = 2\pi a/\lambda \sqrt{n_{core}^2 - n_{clad}^2}$ ,  $J_\nu$ - функция Бесселя порядка  $\nu$ ,  $K_\nu$ - модифицированная функция Бесселя второго рода,  $c$  - скорость света. При заданном значении  $\nu$   $m$ -й корень уравнения (2.1) определяет гибридную моду  $HE_{vm}$ . Фундаментальная мода  $HE_{11}$  рассматривается и используется в подавляющем количестве решаемых задач. Более того, можно напомнить, что одной из особенностей фотонно-кристаллических световодов, отмеченных с самого начала их развития, является существование одномодового режима распространения для аномально широкого спектра.

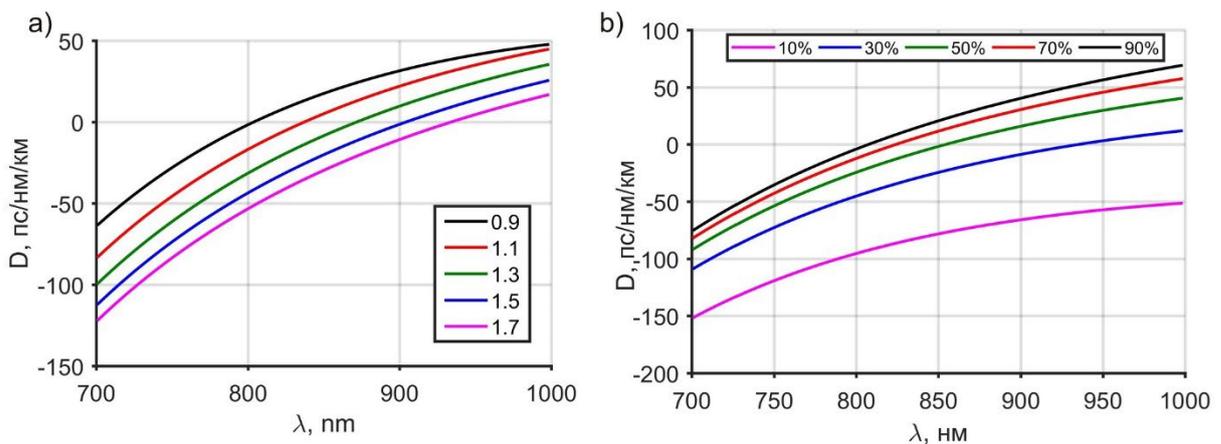


Рис. 2.3.2. Графики, представляющие смоделированные профили дисперсии групповой скорости основной моды различных структур ФК волокон. а)  $f = 50\%$  и разных радиусов, обозначенных на цветной вставке (0.9 - 1.7 мкм). б)  $a = 1.2$  мкм и коэффициентов заполнения оболочки воздухом от 10% до 90%.

Для анализа нелинейно-оптического преобразований в фотонно-кристаллических световодах прежде всего необходимо обладать информацией об их дисперсионных и нелинейных свойствах [1]. Поскольку наиболее распространёнными источниками сверхкоротких импульсов являются Ti:Sapphire лазеры с центральной длиной волны в районе 800 нм, то будем моделировать свойства фотонно-кристаллических волокна для данной спектральной области. Эффективность нелинейно-оптических преобразований зависит от фазовой расстройки взаимодействующих волн, что в случае взаимодействия в световодах требует преимущественной реализации нелинейно-оптических процессов в области нуля дисперсии групповых скоростей (ДГС) волокна [1]. На рис. 2.3.2 показаны

рассчитанные на базе решения уравнения (2.1) зависимости от длины волны дисперсии фотонно-кристаллического световода  $D(\lambda)$  при различных параметрах радиуса сердцевин  $a$  и коэффициента заполнения  $f$  ( $D < 0$  соответствует нормальной, а  $D > 0$  аномальной ДГС).

Другим основным параметром, влияющим на эффективность спектрально-временных преобразований в фотонно-кристаллическом волокне, является его нелинейность, которая помимо нелинейности самого материала определяется как непосредственно малым размером сердцевин, так и высокой степенью локализации излучения в сердцевине за счет высокого контраста между показателями преломления сердцевин и оболочки. Для фундаментальной  $HE_{11}$  моды нелинейный параметр волокна вычисляется следующим образом [6]:

$$\gamma = \omega \bar{n}_2 / c / A_{eff} \quad (2.2)$$

где  $\bar{n}_2$ - усредненный по площади моды коэффициент нелинейности материала волокна и воздуха,  $\omega$  - частота излучения накачки,  $A_{eff}$ - эффективная площадь моды. На рис. 2.3.3. представлены зависимости нелинейности волокна от радиуса сердцевин при двух различных коэффициентах заполнения оболочки воздухом.

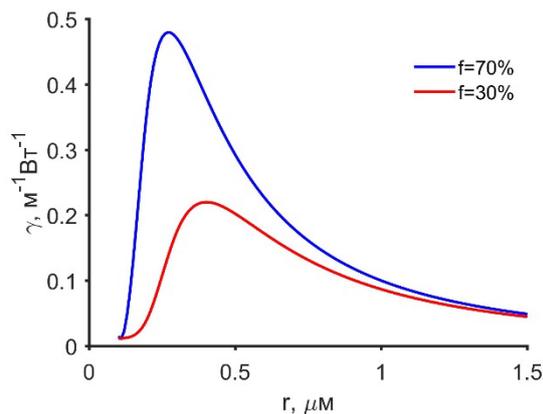


Рис. 2.3.3. Зависимость нелинейности ФК волокна от радиуса сердцевин при  $f = 70\%$  (синяя линия) и  $f = 30\%$  (красная линия).

Из рис. 2.3.3 видно, что при коэффициенте заполнения оболочки воздухом  $f = 70\%$ , нелинейный параметр достигает значения  $\gamma_{max} = 0.5 \text{ Вт}^{-1}\text{м}^{-1}$ , что более чем на два порядка превышает нелинейность стандартных телекоммуникационных одномодовых световодов. Уменьшение  $f$  приводит к увеличению эффективную площадь моды, худшим условиям локализации излучения и соответственно уменьшению нелинейности волокна. Максимумы двух представленных зависимостей соответствуют радиусам сердцевин в диапазоне 0.3 – 0.5 мкм, и их наличие демонстрирует две противоположные тенденции: уменьшение размера сердцевин снижает эффективную площадь моды, но в этом случае также уменьшается величина сосредоточенной в сердцевине мощности излучения. И это определяет фундаментальный предел максимально достижимых нелинейностей фотонно-кристаллических волокон [7].

В заключительных разделах диссертационной работы рассмотрены вопросы, связанные с генерацией квантовых состояний света, в частности коррелированных фотонных пар в процессе спонтанного четырехволнового рассеяния в высоконелинейных двулучепреломляющих фотонно-кристаллических световодах. Ниже представлен анализ, который помогает определить необходимые свойства и подобрать волокна, наиболее подходящие для осуществления процесса спонтанного ЧВВ при использовании в качестве накачки излучения Ti:Sapphire генератора фемтосекундных импульсов с достаточно ограниченным диапазоном перестройки 760 – 840 нм.

Спонтанное четырехволновое взаимодействие можно представить как параметрический процесс на нелинейности третьего порядка  $\chi^{(3)}$ , при котором два фотона накачки  $\omega_{p1}$  и  $\omega_{p2}$  вследствие взаимодействия с вакуумными флуктуациями электромагнитного поля распадаются на фотоны сигнальной  $\omega_s$  и холостой  $\omega_i$  волны. В случае скалярного характера взаимодействия (все волны имеют одинаковую поляризацию) законы сохранения энергии и условия фазового синхронизма можно записать в следующем виде:

$$\Delta\omega = \omega_{p1} + \omega_{p2} - \omega_s - \omega_i = 0; \quad (2.3)$$

$$\Delta k = k(\omega_{p1}) + k(\omega_{p2}) - k(\omega_s) - k(\omega_i) - \gamma P_1 - \gamma P_2 = 0, \quad (2.4)$$

$k$  – волновые вектора для фотонов с  $\omega_{p1,2}$ ,  $\omega_s$  и  $\omega_i$ ,  $P_{1,2}$  – пиковая мощность импульсов накачки,  $\gamma$  – нелинейный коэффициент волокна (для наиболее распространённого случая частоты фотонов накачки  $\omega_p$  совпадают) При импульсной накачке соотношение (2.3) выполняется с точностью до спектральной ширины импульсов, а последнее слагаемое в (2.4) описывает нелинейный набег фазы в световоде (в расчетах используется значение нелинейного коэффициента плавленого кварца  $n_2 = 2.6 \cdot 10^{-20} \text{ м}^2/\text{Вт}$ ). Использование сверхкоротких импульсов с высокой пиковой мощностью позволяет на несколько порядков повысить число генерируемых фотонов  $N \sim (\gamma PL)^2$  в волокне длиной  $L$

Как было указано выше, численное решение уравнения (2.1) позволяет определить  $\beta(\omega)$ , далее соответствующая подстановка в выражения (2.3), (2.4) дает возможность рассчитать длины волн, на которых будет генерироваться фотонная пара, соответствующая условиям фазового согласования процесса ЧВВ. При моделировании рассматривались величины радиуса сердцевины фотонно-кристаллических волокон в диапазоне от 0.3 мкм до 2.5 мкм, и параметром заполнения оболочки воздухом от 0.1 до 0.9. На рис. 2.3.4 в логарифмическом масштабе приведены примеры рассчитанных на базе численного решения уравнений (2.2) – (2.4) карты фазового согласования  $l_c = \pi/\Delta k$  процесса скалярного ЧВВ (яркий красный цвет соответствует областям, где наиболее точно выполняются условия фазового согласования). При заданной длине волны накачки эти карты позволяют найти длины волн, на которых возможна эффективная генерация сигнального и холостого фотонов. Например, при длине волны накачки в районе 800 нм сигнальный фотон будет иметь длину волны 720 нм, холостой – около 900 нм (рис. 2.3.4б).

Дисперсия групповой скорости (ДГС) играет ключевую роль, определяющую характер и эффективность нелинейно-оптических спектральных преобразований. Как уже упоминалось выше (см. также рис. 2.3.2) структура фотонно-кристаллических волокон позволяет сдвинуть нулевое положение ДГС в область, близкую к центральной длине волны Ti:Sapphire лазерных источников - 800 нм. Как видно из рис. 2.3.4, условия генерации сигнальных и холостых фотонов в режиме положительной и отрицательной ДГС сильно различаются (область разветвления примерно соответствует нулевому значению ДГС). В области аномальной дисперсии длины волн фотонной пары близки к длине волны накачки, при этом величина частотной отстройки не превышает 10 ТГц (необходимо отметить, что в области аномальной дисперсии отстройка может быть несколько увеличена при повышении мощности накачки, тогда как отстройка в области нормальной дисперсии практически не меняется). С другой стороны, в области нормальной ДГС отстройка заметно больше и может превышать 100 ТГц. Особенности нелинейно-оптического преобразования в волокнах связаны с неустранимым влиянием процесса спонтанного рамановского (комбинационного) рассеяния, формирующегося в плавленом кварце с широкой полосой с центром отстройки от длины волны накачки примерно в 13 ТГц (около 30 нм при длине волны накачки 800 нм), что в данном случае означает наличие шумовых фотонов в области генерации холостых фотонов [139].

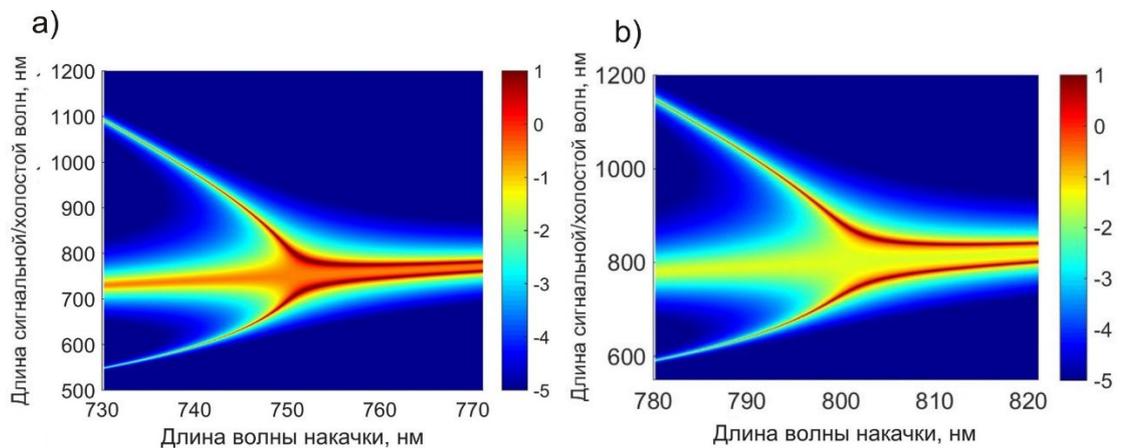


Рис. 2.3.4. Карты фазового согласования скалярного ЧВВ в ФК волокнах. (а)  $a = 0.9$  мкм,  $f = 0.7$ ; (б)  $a = 1.2$  мкм и  $f = 0.9$

Простым и очевидным решением для преодоления этого ограничения и реализации хорошего соотношения сигнал/шум при комнатной температуре является генерация фотонной пары с отстройкой от длины волны накачки более 50 ТГц, что обеспечивает возможность эффективной спектральной фильтрации рамановского шума с помощью полосовых интерференционных фильтров. Это условие в случае скалярного ЧВВ процесса определяет преимущества генерации фотонных пар в области нормальной дисперсии групповых скоростей волокна. Поскольку длина волны накачки задается в условиях наших экспериментов в области 760 – 840 нм, то использование фотонно-кристаллических световодов с радиусом сердцевин менее 0.5 – 0.6 мкм для генерации фотонных пар в процессе спонтанного скалярного ЧВВ затруднено из-за того, что такие ФК волокна имеют

аномальную дисперсию в диапазоне 700-900 нм, кроме того, как отмечалось выше, изготовление таких световодов имеет технологические ограничения. Следуя перечисленным выше рассуждениям, можно говорить об оптимальных параметрах структуры фотонно-кристаллического волокна для генерации фотонных пар: радиус сердцевинки соответствует значениям порядка одного микрометра при обеспечении высокой нелинейности за счет большого коэффициента заполнения оболочки. Повторим, что подбор необходимого волокна помимо перечисленных выше условий определяется доступными параметрами накачки, и требуемыми длинами волн сигнального и холостого фотонов. Также немаловажным фактором является однородность световода, что делает предпочтительным выбор в пользу коммерчески доступных фотонно-кристаллических световодов, имеющих относительно высокую однородность.

До сих пор был рассмотрен скалярный процесс ЧВВ, когда поляризация всех участвующих в процесс волн совпадают. Однако, векторное ЧВВ обеспечивает гораздо большее разнообразие режимов генерации и свойств фотонных пар, о чем подробно будет изложено в последних разделах диссертации. Векторным ЧВВ в дальнейшем будем называть все конфигурации процесса четырехволнового взаимодействия, в котором волны имеют различную поляризацию, что дает дополнительные возможности управления параметрами генерируемой фотонной пары. Например, это преимущество ярко проявляется для подавления рамановского рассеяния, которое оказывается принципиально неустранимым для скалярного процесса нелинейного преобразования.

Использование режима векторного ЧВВ в фотонно-кристаллическом волокне с двулучепреломлением позволяет кардинальным образом модифицировать условия фазового согласования, обеспечить необходимую отстройку сигнальных и холостых длин волн и генерировать фотонные пары в поляризационных модах, отличных от поляризации вводимого излучения, что в том числе позволяет осуществить эффективную поляризационную фильтрацию шумовых рамановских фотонов. По аналогии с процессом спонтанного параметрического рассеяния на нелинейности второго порядка рассматриваются четыре конфигурации поляризации накачки и рассеянных фотонов, которые можно раз делить на две группы: ЧВВ I типа (два фотона накачки в одной поляризационной моде генерируют сигнальный и холостой фотоны в ортогональной моде) и ЧВВ II типа (фотоны накачки берутся из разных поляризационных мод и рождают ортогонально поляризованные фотонные пары). Обычно в двулучепреломляющих волокнах выделяют две поляризационные моды: быструю ( $f$ ) с показателем преломления  $n$  и медленную ( $s$ ) с  $n + \delta n$  (считается, что волокна с сильным двулучепреломлением обладают  $\delta n > 10^{-3}$  [140]). В случае векторного режима ЧВВ условие фазового синхронизма (2.4) модифицируется и принимает вид [141]:

$$\Delta k = 2k(\omega_p) - k(\omega_s) - k(\omega_i) - \frac{2}{3}\gamma P + \frac{2\omega_p}{c}\delta n = 0. \quad (2.5)$$

Здесь рассматривается векторное ЧВВ  $\omega_{p_1} + \omega_{p_2} = \omega_s + \omega_i$ , в процессе которого поля накачки с центральными совпадающими частотами  $\omega_{p_1}$  и  $\omega_{p_2}$  в поляризационных

модах  $j_1$  и  $j_2$  порождают сигнальные и холостые поля с центральными частотами в  $\omega_s$  и  $\omega_i$  также в различных поляризационных модах. Индексы мод  $j_1$  и  $j_2$  могут принимать одно из двух значений,  $j_1, j_2 = f, s$ , соответствующих быстрой и медленной поляризационным модам двулучепреломляющего оптического волокна. Поскольку в дальнейшем для экспериментального исследования режимов векторного ЧВВ использовалось коммерчески доступное высоконелинейное фотонно-кристаллическое волокно модели NL-PM-750, то в расчетах использовались параметры близкие к характеристикам этого волокна. Одномодовое двулучепреломляющее фотонно-кристаллическое волокно модели NL-PM-750 изготовлено из плавленого кварца, диаметр сердцевины составляет около 1,6 мкм. Волокно обладает двумя значениями нулевой дисперсии групповых скоростей (для интересующего нас спектрального диапазона нулевое значение ДГС лежит в области  $750 \pm 15$  нм) и обладает высоким коэффициентом нелинейности  $\gamma = 0.1 \text{ Вт}^{-1} \text{ м}^{-1}$ . Фотонно-кристаллическое волокно NL-PM-750 имеет значительное двулучепреломление вследствие эллиптической формы сердцевины, и как отмечалось выше, помимо скалярного ЧВВ позволяет генерировать фотонные пары за счет векторного ЧВВ. Свойства этого волокна подробно рассмотрены в [142], а фотография поперечного сечения показана на рис. 2.2.1д.

На рисунке 2.3.5 представлены рассчитанные карты фазового согласования для различных поляризационных конфигураций векторного ЧВВ и характеристик волокна близких к модели NL-PM-750. При расчёте использованы значения  $P = 50 \text{ Вт}$ , что соответствует средней мощности накачки около 1 мВт для фемтосекундных импульсов с частотой повторения 100 МГц.

Проведенный анализ показывает, что при генерации сигнального фотона в быстрой (f) моде, условия синхронизма могут соблюдаться только в области нормальной дисперсии для заданного спектрального диапазона накачки. Из двух оставшихся режимов наиболее удобным (с учетом доступного диапазона работы кремниевых однофотонных лавинных фотодетекторов) является векторное ЧВВ II типа в поляризационной геометрии  $s_p + f_p = s_s + f_i$ . Анализирую карту фазового согласования для различных длин волн накачки этого в этом случае видно, что генерация фотонных пар может происходить в различных режимах. Например, в области 815 нм на рисунке 2.3.5i наблюдается практически горизонтальная холостая ветвь, что может быть использовано для создания источника одиночных провозглашённых фотонов. Напротив, в области нуля дисперсии групповых скоростей можно ожидать генерацию широкополосных фотонных пар с сильной спектральной корреляцией.

К недостаткам векторного ЧВВ можно отнести появление коэффициента  $1/3$  в нелинейном набеге фазы в уравнении (2.5) вследствие того, что недиагональные компоненты тензора  $\chi^{(3)}$  в изотропной среде в 3 раза меньше диагональных. В 3 раза меньшая эффективная нелинейность приводит к почти 10-кратному снижению яркости источников на базе векторного ЧВВ по сравнению со скалярными процессами. Тем не менее, из рисунка 2.3.5 видно, что векторный режим ЧВВ обеспечивает большое разнообразие режимов генерации сигнальной и холостой волн, в том числе со значительной частотной отстройкой в широком диапазоне длин волн накачки, что позволяет при

соответствующей спектральной фильтрации снизить влияние рамановского шума. Кроме того, поскольку фотоны рамановского рассеяния преимущественно поляризованы вдоль накачки, используемая геометрия позволяет дополнительно подавить рамановский шум поляризаторами.

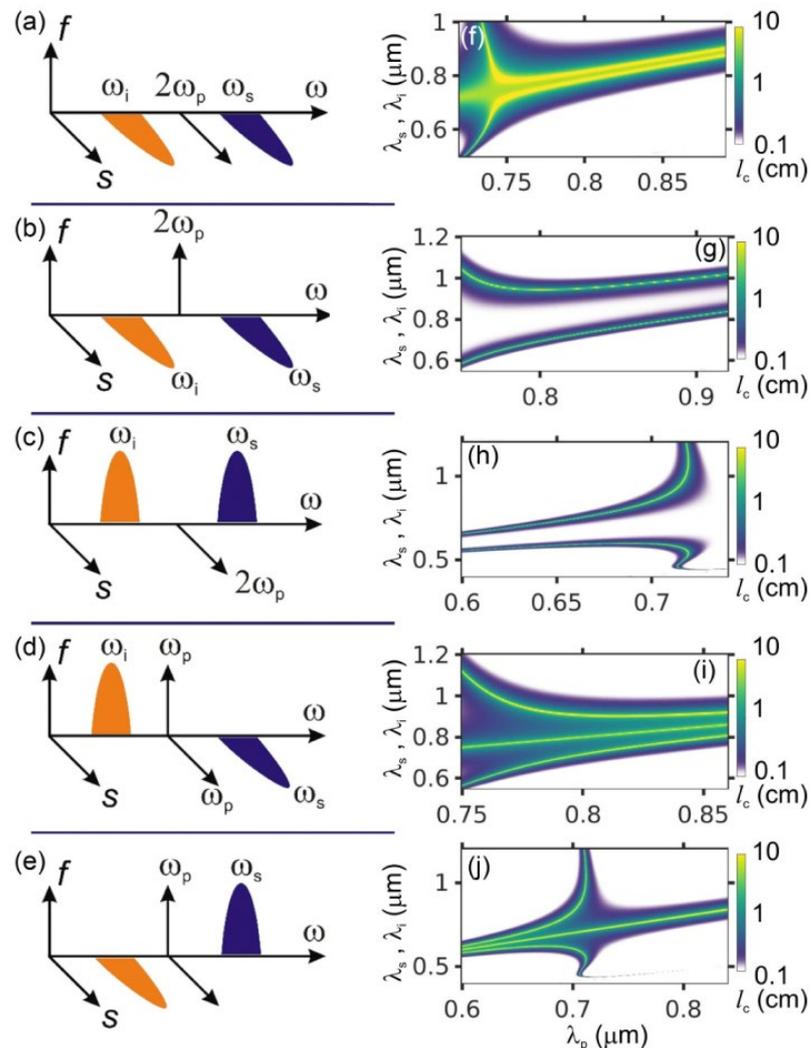


Рис.2.3.5 (a)-(e) Поляризационные геометрии ЧВВ в двулучепреломляющем оптическом волокне с быстрой и медленной осями  $f$  и  $s$  и (f)-(j) соответствующие карты фазового согласования, показывающие длину когерентности  $l_c = \pi/|\Delta\beta|$  как функцию длин волн накачки, сигнальных и холостых фотонов для оптического волокна с  $\gamma = 100 \text{ Вт}^{-1}\text{км}^{-1}$ ,  $\delta n = 10^{-4}$  (g), (h),  $\delta n = 10^{-3}$  (i), (j), и профилем дисперсии групповых скоростей, показанным на рис.2(a): (a), (f) скалярное ЧВВ, (b), (g) ff - ss, (c), (h) ss - ff, (d), (i) sf - fs и (e), (j) sf - sf.

Итак, в этом параграфе представлен анализ позволяющий моделировать и оценить свойства фотонно-кристаллических волноводов. При рассмотрении условий, необходимых для эффективной генерации фотонных пар в процессе спонтанного скалярного ЧВВ, выработан «оптимальный портрет» ФК волокна – одномодовое высоконелинейное ( $\sim 0.1 \text{ Вт}^{-1}\text{м}^{-1}$ ) ФК волокно с диаметром сердцевины 1 – 2 мкм из плавленого кварца и периодической гексагональной структурой воздушных отверстий в оболочке. В свою очередь, задача реализации векторных режимов ЧВВ диктует использование двулучепреломляющих световодов, поэтому было выбрано фотонно-кристаллическое

волокно NL-PM-750, исследованиям с использованием которого посвящены последние два раздела диссертационной работы.

## **§ 2.4. Экспериментальные методы характеристики нелинейно-оптического преобразования в микроструктурированных световодах.**

Как уже отмечалось, принцип исследований спектрально-временных преобразований лазерных импульсов в микроструктурированных волноводах принципиально выглядит достаточно просто – излучение накачки фокусируется на входной торец микроструктурированного волновода, при этом необходимо обеспечить наилучшее согласование числовых апертур фокусирующей оптики и волноводной структуры образца. Это важно не только с точки зрения обеспечения максимально возможного коэффициента заведения излучения в волноводную структуру, но также влияет на обеспечение сохранности торца волновода. Поскольку для обеспечения высоких коэффициентов преобразования используются высокие значения пиковых мощностей и потоков энергии, то неоптимальная фокусировка способствует фотоповреждению сердцевины или оболочки торца волокна, что драматическим образом влияет на эффективность заведения и приводит к необходимости замены или обрезания поврежденного участка волокна. В наших экспериментах мы использовали для фокусировки короткофокусные и асферические линзы, микроскопные объективы (ЛОМО, OLYMPUS, NIKON) и параболические зеркала. Для наилучшего заведения эти оптические элементы (или непосредственно передний торец волокна) помещались на высокоточные трехмерные трансляционные столики, также сохранялась возможность дополнительной точной юстировки в двух угловых координатах с помощью направляющих зеркал.

Наиболее сложной частью экспериментальных исследований является анализ спектрально-временных характеристик импульсов, претерпевающих нелинейно-оптические преобразования в микроструктурированных световодах. В качестве регистрирующей аппаратуры использовались автоматизированные спектрометры для ультрафиолетового, видимого и инфракрасного диапазона производства компаний ЛОМО (Россия, СССР), Ocean Optics (США), Solar LS (Беларусь). Для регистрации излучения использовались как встроенные Si и InGaAs матрицы, так и внешние кремниевые линейки или фотоэлектронные умножители. Каждый спектрометр и регистрирующая система подбирались под решаемую задачу в зависимости от спектрального диапазона, требуемого спектрального разрешения и энергетического уровня регистрируемого сигнала.

Для сбора и анализа оптического сигнала использовались различные методы: накопления и усреднения, электронного стробирования (BOXCAR), синхронного детектирования. При этом измерение энергетических характеристик импульсов проводилась с помощью сертифицированных измерителей мощности и энергий лазерного излучения (Thorlabs, Coherent), что позволяло оценить эффективность преобразования в абсолютных значениях. Такое разнообразие техники и методов позволяло аккуратно

оценивать амплитудно-спектральные характеристики как импульсов, получаемых в различных лазерных системах, так и импульсов, регистрируемых после прохождения различных типов микроструктурированных световодов.

В проводимых измерениях сверхкоротких импульсов фемтосекундной длительности наиболее ответственной и принципиально сложной частью, зачастую требующей оригинальных решений, является анализ временных и спектрально-фазовых характеристик импульсов. Поскольку прямое измерение длительностей оптических импульсов с помощью современных электронных приборов ограничено в лучшем случае значениями десятков пикосекунд, то для анализа временных характеристик сверхкоротких лазерных импульсов используются автокорреляционные техники измерений, получившие широкое распространение уже с 60-х годов прошлого века. В общем виде автокорреляционные методы заключаются в раздвоении импульса на два плеча, обеспечении задержки одного относительно другого и далее пространственного совмещения и временного сканирования задержки между ними, что во многом повторяет схему интерферометра Майкельсона. Анализ интенсивности перекрывающихся импульсов может осуществляться по временной или пространственной координате. Например, за счет наблюдения чередующейся интерференционной картины или, как наиболее часто реализуется в современных автокорреляторах второго порядка, в процессах генерации нелинейного сигнала второй гармоники в нелинейных кристаллах, двухфотонного поглощения или флуоресценции. Автокорреляционная методика является наиболее простой и функциональной, однако позволяет измерять только относительно длинные импульсы, и, что наиболее важно, не дает информации о спектральной фазе импульсов.

Настоящий прорыв в области характеристики сверхкоротких оптических импульсов произошел с развитием методики FROG (Frequency Resolved Optical Gating – оптическое стробирование с разрешением по частоте), которая позволяет не только определить профиль поля  $E(t)$  импульса, но и его спектральную фазу. В простейшем случае реализация SHG-FROG на основе генерации второй гармоники в нелинейном кристалле принципиально отличается от схемы автокоррелятора второго порядка только наличием спектрального прибора в схеме измерения сигнала, однако анализ этого сигнала позволяет извлекать информацию о спектральной фазе (чирпе) анализируемого импульса (SHG-FROG не позволяет определить знак чирпа). Существует несколько вариантов методики FROG: Double-Blind FROG, PG-FROG, THG-FROG, GRENOUILLE, которые построены в том числе на регистрации сигнала при перекрытии импульсов на нелинейности третьего порядка. Эти модификации FROG позволяют значительно расширить границы и спектр параметров анализируемых импульсов.

В наших экспериментах мы использовали метод SHG-FROG в основном для анализа характеристик импульсов накачки, которые имели длительность 30 – 120 фс и в основном были спектрально ограниченными. Во многих экспериментах для измерения спектра, временной огибающей и спектральной фазы светового импульса на выходе МС волокон также использовалась техника кросс-корреляционного оптического стробирования с разрешением по частоте (XFROG) [143,144]. Этот метод основан на измерении спектра сигнала суммарной частоты, генерируемого путем смешения в нелинейной среде

(кристалле) импульса, переданного через микроструктурированное волокно,  $E_{\text{out}}$ , и известного опорного импульса,  $E_0$ , для различных значений времени задержки  $\tau$  между этими импульсами. Получаемая с помощью такой методики спектрохронограмма  $S(\tau, \omega) \propto \left| \int E_{\text{out}}(t) E_0(t) \exp(-i\omega t) dt \right|^2$  позволяет найти свертку спектров импульсов  $E_{\text{out}}$  и  $E_0$  путем интегрирования по  $\tau$ , а также рассчитать кросс-корреляционную функцию этих импульсов путем интегрирования по частоте  $\omega$ . В качестве опорных импульсов в наших экспериментах наиболее часто использовались импульсы излучения лазерных источников. Поскольку, как правило, на выходе как усилителей, так и генераторов получаются спектрально ограниченные импульсы с известной (измеримой) длительностью, они хорошо подходят для анализа оптического сигнала после МС волокон. При этом, поскольку в наших измерениях использовалось излучение в различных спектральных диапазонах, и временные рамки измеряемых импульсов изменялись в очень широких пределах, то практически в каждом случае вставала необходимость адаптации схемы измерений. Например, для анализа коротких импульсов требовались более тонкие нелинейные кристаллы для уменьшения влияния группового разбегания импульсов и увеличения спектральной ширины синхронизма. Нами также была разработана бездисперсионная схема измерения импульсов с использованием генерации суммарной частоты в газовой среде. Основным преимуществом этой методики характеристики импульсов при помощи нелинейного смешения в газе исследуемого излучения с опорным импульсом является беспрецедентная относительно нелинейного кристалла ширина спектрального диапазона, в котором выполняются условия фазового синхронизма. Однако более высокий порядок нелинейности процесса четырехволнового смешения приводит к более высоким требованиям, накладываемым на минимальную пиковую мощность измеряемого и опорного импульса. Временное разрешение данного метода также существенно зависит от длительности опорного импульса, которая не должна значительно превышать длительность исследуемого излучения для минимизации ошибки восстановления.

Для характеристики предельно коротких импульсов, формируемых с помощью полых фотонно-кристаллических волноводов (Глава 4) возникла необходимость использования принципиально другой техники измерения, в силу сложности получения достаточно короткого импульса для реализации XFROG в газе. Для решения этой проблемы нами был реализован метод характеристики на основе техники прямого восстановления поля методом спектральной интерферометрии (SPIDER) [145,146]. В реализованной в экспериментах модификации схемы прямого измерения поля (рис. 2.3.1) информация о фазе поля кодируется с помощью пространственной, а не частотной карты спектральной интерференции (X-SEA-F-SPIDER). Такой подход позволяет существенно уменьшить ошибки и избежать многих артефактов при восстановлении структуры поля сверхкоротких импульсов [147,148].

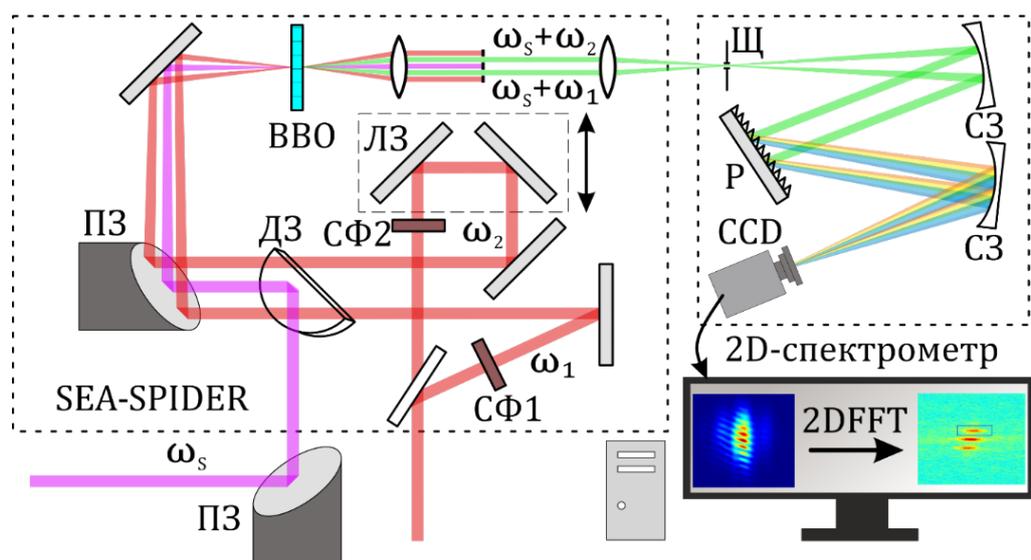


Рис.2.3.1. Характеризация светового поля с помощью пространственной карты спектральной интерференции: ПЗ – параболические зеркала, ДЗ – зеркало D-формы, СФ1, СФ2 – узкополосные спектральные фильтры, пропускающие частоты  $\omega_1$  и  $\omega_2$ , ЛЗ – линия задержки, ВВО – нелинейный кристалл, Щ – цель спектрометра, СЗ – сферические зеркала, Р – дифракционная решетка, CCD – CCD-камера с кремниевой матрицей.

На вход схемы, реализующей характеристику сверхкороткого импульса, подается исследуемое излучение из световода  $\omega_s$ , а также пробный импульс, получаемый напрямую из регенеративного усилителя. Пробное излучение разделяется на два плеча, в каждом из которого расположены узкополосные фильтры СФ1,2 с центральной длиной волны 808 нм и шириной полосы пропускания 1 нм, выделяющие излучение на длинах волн 800 нм и 805 нм ( $\omega_{1,2}$ ) за счет поворота фильтров. Это позволяло управлять необходимым спектральным сдвигом  $\Omega = \omega_1 - \omega_2$  между пробными импульсами, распространяющимися в разных плечах. Исследуемое ИК излучение перестраивается с торца волновода на кристалл ВВО толщиной 20 мкм (рис. 2.3.1) при помощи параболических зеркал. Для того чтобы избежать возможность оптического пробоя кристалла и нежелательных нелинейных эффектов в нем, ИК импульсы ослаблялись при отражении от передней поверхности  $\text{CaF}_2$  клина, обеспечивающего коэффициент отражения около 7.5%.

В результате нелинейного взаимодействия в кристалле ВВО, формируется пара импульсов на суммарных частотах  $\omega_s + \omega_1$  и  $\omega_s + \omega_2$ . Неколлинеарная геометрия преобразования ( $\sim 5$  градусов между измеряемым и пробными пучками) необходима для наблюдения пространственной интерференции, а также позволяет использовать пространственную фильтрацию для выделения излучения на суммарных частотах  $\omega_s + \omega_1$  и  $\omega_s + \omega_2$ . Изображение интерференционной картины перестраивается с нелинейного кристалла на щель изображающего спектрометра при помощи отражательной  $4f$  системы, состоящей из параболических зеркал с фокусным расстоянием 5 см и 10 см. Спектрометр состоит из серебрянных сферических зеркал с фокусным расстоянием 10 см (СЗ на Рис.2.3.1.) и дифракционной решетки с плотностью штрихов 300 шт/мм. Увеличение пучков в спектрометре необходимо для разрешения полос пространственной

интерференционной картины при помощи CMOS-камеры (Thorlabs, CS895MU, 2160x4096 пикселей).

Восстановление поля производится на основе анализа интерференционной картины двух разложенных по спектру приходящих на камеру пучков, получаемых в результате up-конверсии  $\omega_1 + \omega_s$  и  $\omega_2 + \omega_s$ . Для восстановления спектральной фазы необходимо выделить постоянную и осциллирующую компоненты интерференционной картины, для разделения которых производится двумерное преобразование Фурье. На карте Фурье-образа присутствуют три пика, центральный из которых соответствует постоянной (DC) компоненте, то есть спектральной интенсивности  $I_{DC} = |E_1^2|^2 + |E_2^2|^2$ , а два боковых пика отвечают за осциллирующие (AC) компоненты  $I_{AC} = |E_1||E_2| \cos(\pm(\varphi(\omega) - \varphi(\omega - \Omega) - \Delta K))$ , где  $E_{1,2}$  поля пучков ап-конверсии на частотах  $\omega_1 + \omega_s$  и  $\omega_2 + \omega_s$ ,  $\varphi(\omega)$ , искомая спектральная фаза ИК излучения,  $\Omega = \omega_1 - \omega_2$ , разница частот двух полей накачки,  $\Delta K$ , геометрическая разница оптических плеч двух пучков, которая может быть вычислена независимо с помощью калибровочного измерения при  $\Omega = 0$ :  $I_{AC}^0 = |E_1||E_2| \cos(\pm\Delta K)$ .

Для восстановления спектральной интенсивности ИК излучения  $I(\omega)$  и разности фазы  $\Delta\varphi(\omega) = \varphi(\omega) - \varphi(\omega - \Omega)$  необходимо поочередно выделять при помощи цифрового фильтра (прямоугольной или супергауссовой формы) пики DC и AC, после чего произвести обратное двумерное преобразование Фурье. Вычисление интеграла  $\varphi(\omega) = \int \Delta\varphi(\omega) d\omega / \Omega$  вдоль каждой пространственной компоненты позволяет восстановить спектральную фазу импульса. В итоге удастся получить информацию о пространственном распределении мощности и спектральной фазы ИК излучения вдоль одной из координат пучка суперконтинуума, генерируемого на выходе полого световода.

На Рис.2.3.2б представлены спектр и спектральная фаза импульса холостой волны на выходе оптического параметрического усилителя, полученные двумя описанными выше методиками - методом оптического стробирования с разрешением по частоте на основе генерации второй гармоники (SHG-FROG) с использованием 50 мкм кристалла ВВО и X-SEA-F-SPIDER на кристалле ВВО толщиной 20 мкм. Профиль спектральной фазы, изображённый синим цветом, восстановлен с помощью метода спектральной интерферометрии, в то время как красным отображены результаты измерений методом SHG-FROG. На 2.3.2а производится сравнение соответствующих временных огибающих импульса: синяя получена путем преобразования Фурье спектра интенсивности, представленного на Рис.2.3.2б, красная – получена в результате характеристики холостой волны ОПУ методом SHG-FROG. Произведенное сравнение показывает, что результаты характеристики сверхкоротких импульсов на основе этих двух методик совпадают с высокой точностью.

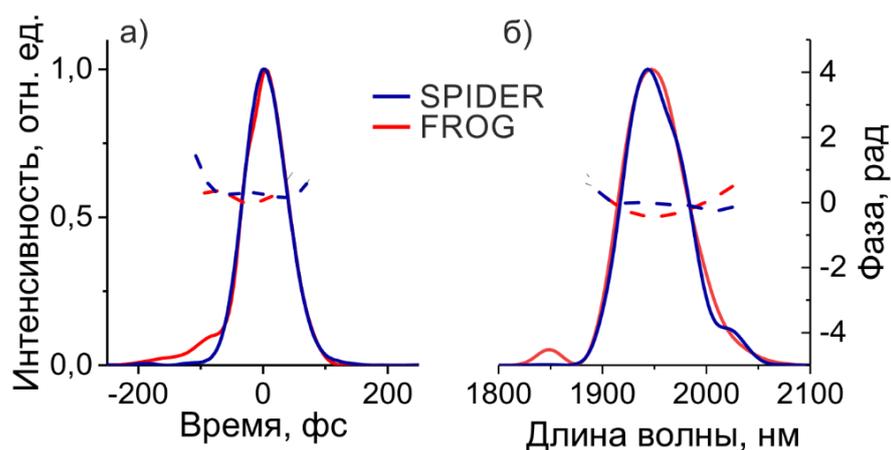


Рис.2.3.2. (а) Временная огибающая (сплошная кривая) интенсивности и фаза (пунктирная кривая) импульса холостой волны на выходе оптического параметрического усилителя, восстановленная с помощью метода спектральной интерферометрии (синие кривые) и оптического стробирования с разрешением по частоте на основе генерации второй гармоники (красные кривые) и (б) соответствующие им спектральная интенсивность (сплошная кривая) и спектральная фаза (пунктирная кривая) импульса.

Экспериментальная реализация описанного метода характеристики предельно коротких импульсов при помощи пространственной картины спектральной интерференции была выполнена в нашей работе с использованием кристалла ВВО толщиной 20 мкм на миллиметровой кварцевой подложке. Материал нелинейного кристалла прозрачен для излучения в ближнем инфракрасном диапазоне вплоть до длины волны порядка 2.3 мкм, и применение его для  $\omega$ -конверсии излучения с большей длиной волны, в том числе и в интересующем нас среднем инфракрасном спектральном диапазоне, ограничено наличием поглощения как самого кристалла, так и подложки, на которой он выращивается. Однако данное ограничение может быть преодолено выбором подходящего нелинейного кристалла для конкретного исследуемого спектрального диапазона. В работе [148] рассмотрен вопрос о возможности распространения использованного нами метода на более длинноволновый диапазон вплоть до 10 мкм (рис.2.3.3) при использовании вспомогательного излучения на центральной длине волны 1030нм, соответствующей иттербиевым лазерным системам.

Из представленных на рис.2.3.3 зависимостей следует, что метод характеристики, основанный на генерации суммарной частоты, может быть успешно использован для исследования мультиоктавного суперконтинуума и предельно коротких импульсов в среднем инфракрасном диапазоне при смешении его с опорными импульсами на длине волны около 1030 нм, соответствующей излучению иттербиевых лазерных систем, в кристалле GaSe толщиной около 100 мкм. Селенид галлия широко применяется в задачах формирования и характеристики инфракрасного и терагерцового излучения, в том числе и в нашей титан-сапфировой лазерной системе в качестве нелинейного кристалла для генерации разностной частоты сигнальной и холостой волн на выходе оптического параметрического усилителя. Использование кристалла GaSe в процессах генерации суммарной частоты с опорным импульсом на длине волны 800 нм из более

распространённых в настоящее время титан-сапфировых лазерных систем осложнено тем, что в результате ир-конверсии спектр излучения выходит за границы прозрачности кристалла. В то же время, излучение на центральной длине волны около 1000 нм в титан-сапфировых системах относительно просто может быть получено в результате удвоения частоты холостой волны оптического параметрического усилителя, часто являющегося составной частью перестраиваемого источника сверхкоротких импульсов среднего инфракрасного диапазона. Отдельный интерес вызывает возможность совмещения методов спектрально-фазовой интерферометрии с нелинейно-оптическим преобразованием в процессе четырёхволнового смешения в газовых средах, обладающим чрезвычайно широким фазовым синхронизмом и не требующим использования тонких нелинейных кристаллов [149,150].

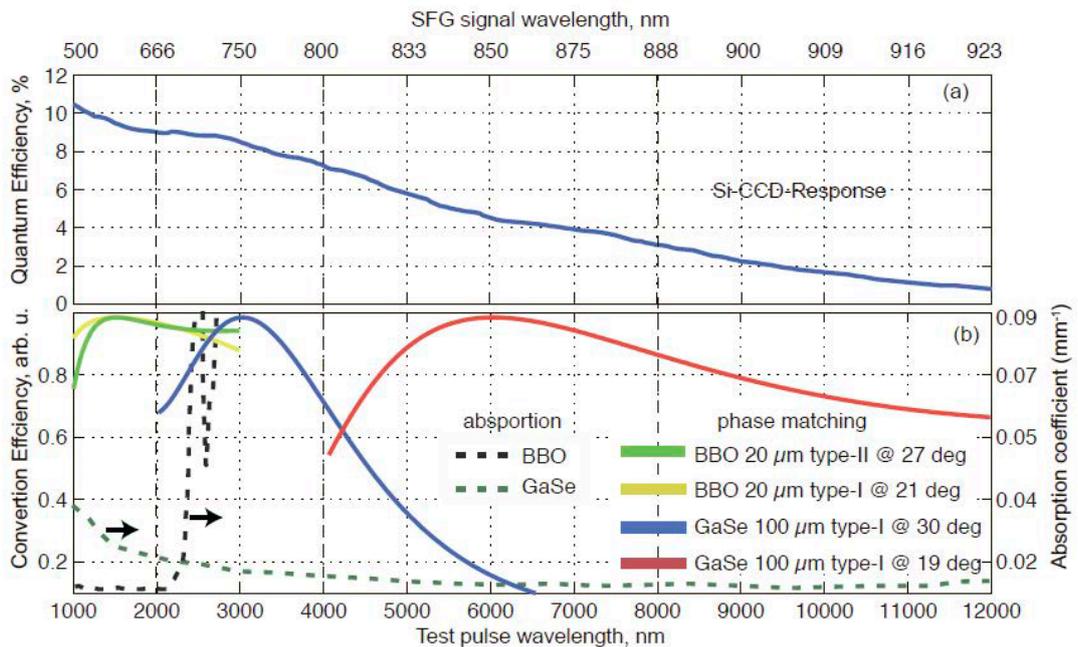


Рис.2.3.3. Расчёт условий фазового синхронизма для процесса генерации суммарной частоты исследуемого излучения среднего инфракрасного диапазона с квазимонохроматическим опорным импульсом на длине волны около 1030 нм в кристаллах BBO и GaSe в различных спектральных областях; (a) отклик кремниевой ПЗС матрицы для результирующего сигнала в видимом диапазоне; (b) кривая фазового синхронизма для 20 мкм кристалла BBO и 100 мкм кристалла GaSe под различными углами. Пунктирной линией показано поглощение кристаллов [148].

Описанные в этом параграфе методы характеристики сверхкоротких импульсов были применены в наших экспериментах, представленных в параграфе 4.2: SHG FROG на тонких (50-100 мкм) кристаллах BBO и AGS – был основным инструментом для измерения временной огибающей относительно длинных (50-200 фс) импульсов накачки в ближнем инфракрасном диапазоне на центральной длине волны 800 и 1030 нм; FWM XFROG в атмосфере с накачкой импульсами на длине волны 800 нм и 1030 нм применялся в экспериментах в среднем инфракрасном диапазоне и позволил полностью охарактеризовать фемтосекундные и предельно короткие импульсы длительностью

порядка одного периода поля на центральной длине волны в диапазоне от 1.2 до 8 мкм; X-SEA-F-SPIDER на 20 мкм кристалле ВВО с накачкой импульсами на длине волны 800 нм был применён в задаче полной временной характеристики мультиоктавного излучения суперконтинуума, формирующегося в результате солитонной самокомпрессии сверхкороткого импульса на центральной длине около 2 мкм в полном антирезонансном волноводе.

Таким образом, в настоящей главе были кратко представлены три основные составляющие, необходимые для проведения исследований нелинейно-оптических преобразований лазерных импульсов в микроструктурированных световодах. Одним из замечательных преимуществ микроструктурированных световодов является возможность изменять масштабы и архитектуру поперечного сечения в масштабах недостижимых для стандартных телекоммуникационных волокон, что определяет многообразие их свойств и применений и соответственно широкий спектр используемых методов исследования. Результаты этих исследований будут представлены в следующих главах диссертационной работы.

### **Глава 3. Спектрально-временные преобразования импульсов накачки ближнего инфракрасного диапазона в микроструктурированных световодах со сплошной сердцевиной.**

Расширение спектральной области генерации и усиления сверхкоротких лазерных импульсов и выход за пределы наиболее развитых технологий на основе кристалла Ti:Sapphire представляет собой одну из важных задач лазерной физики уже на протяжении последних трех десятилетий и не теряет своей актуальности в связи высокой востребованностью для решения многих прикладных задач. Среди развиваемых технологий генерации излучения в ближнем и среднем инфракрасном диапазонах можно отметить различные стратегии, включая оптическое параметрическое усиление и использование новых лазерных материалов для непосредственно прямой генерации излучения в ближней и средней инфракрасной областях спектра. При этом оказываются востребованными направления создания как источников высокоэнергичных импульсов, позволяющих добиться релятивистских интенсивностей, так реализации лазеров с высокой частотой повторения, что находит широкое применение в задачах нелинейно-оптической микроспектроскопии и биовизуализации.

Современные волоконные технологии играют и играют важную роль в этом направлении, позволяя создавать компактные и надежные волоконно-оптические источники и преобразователи оптических сигналов. Основные принципиальные преимущества обусловлены самой волноводной геометрией генерации, усиления и нелинейно-оптического преобразования лазерного излучения, а также технологичностью и относительной дешевизной.

Как было отмечено в Главе 1, развитие тематики микроструктурированных (фотонно-кристаллических) световодов инициировало небольшую “революцию” в современной нелинейной оптике, заставив заново переосмыслить многие известные нелинейно-оптические эффекты применительно к волноводному режиму [3]. Под нелинейно-оптическими эффектами в волокнах прежде всего имеются в виду такие явления как фазовая само- и кроссмодуляция, модуляционная неустойчивость, четырехволновые взаимодействия и др. [1]. При этом необходимо отметить особую роль солитонных механизмов спектрально-временного преобразования сверхкоротких импульсов, которые реализуются при их распространении в среде с аномальной дисперсией, когда нелинейный набег фаз может уравниваться дисперсионным вкладом, обеспечивая распространение выделенных “солитоноподобных” форм электромагнитного поля. При распространении сверхкоротких импульсов в солитонном режиме наблюдаются нелинейно-оптические преобразования спектра импульсов, в частности, эффективная генерация суперконтинуума и солитонный самосдвиг частоты (ССЧ), который заключается в постепенном сдвиге центральной частоты солитона в низкочастотную область спектра [38,151]. В спектральном представлении ССЧ можно представить как вынужденное комбинационное усиление низкочастотной части спектра солитона за счет его высокочастотного крыла [1]. Микроструктурированные волокна обеспечивают существенное увеличение скорости ССЧ

[152] за счет высокой степени концентрации лазерного излучения в сердцевине МС волокна с малой площадью поперечного сечения. Оптимизация дисперсионного профиля МС волокон позволяет добиться высокой эффективности передачи энергии маломощных сверхкоротких лазерных импульсов накачки в сдвигаемый по частоте солитон [153]. Благодаря уникальному сочетанию возможностей МС-волокна позволяют использовать явление ССЧ для плавной перестройки маломощных импульсов с длительностью огибающей, соответствующей нескольким периодам оптического поля [154], а также реализовать новые удобные и надежные схемы синхронизации импульсов накачки и затравки в оптических параметрических усилителях чирпированных импульсов [155]. К солитонным эффектам относится и временная самокомпрессия импульсов, происходящая на первом этапе распространения в волокне солитона высшего порядка. В работе [156] продемонстрирована возможность солитонной самокомпрессии в широком диапазоне длительностей лазерного импульса на входе в волновод, а также [157] исследована самокомпрессия в коротких отрезках волноводов длиной всего около миллиметра. В экспериментах [158] показано, что смещенную длину волны солитона можно стабилизировать в широком диапазоне входных энергий импульса, используя специально подобранный дисперсионный профиль МС волокна с двумя нулями дисперсии. Также в этой работе продемонстрирована генерация дисперсионных волн сдвигающимся по частоте солитоном не только в коротковолновой, но и в длинноволновой области спектра.

Условие поддержания распространения солитона заключается в балансе между волноводной дисперсией и нелинейностью, что определяет типичный диапазон энергий спектрально преобразованных импульсов в пределах от сотен пикоджоулей до единиц наноджоулей. Проблема увеличения энергии импульсов может быть частично решена с помощью полых микроструктурированных волокон, которые могут обеспечить поддержание солитонных режимов распространения для мегаваттных, и даже гигаваттных уровней пиковых мощностей импульсов [159–161] (этим вопросам посвящен материал следующей главы). Однако, важным остается поиск путей использования МС волокон с твердотельной сердцевиной для получения мощных перестраиваемых солитонов. Так в экспериментах [162] в МС волокне с площадью моды  $110 \text{ мкм}^2$  получены перестраиваемые по длине волны в диапазоне 1160–1260 нм импульсы с пиковой мощностью более 10 кВт.

Одним из возможных методов повышения энергии распространяемых импульсов является увеличение площади сечения сердцевины волокон, что в свою очередь уменьшает возможности сдвига нуля ДГС волокна и делает её близкой к материальной дисперсии. Микроструктурированные световоды позволяют реализовать аномальную волноводную дисперсию в кварцевых волокнах в видимой области спектра (значение нуля дисперсии групповых скоростей для кварца лежит в области 1.25 мкм), однако, это связано с необходимостью уменьшения диаметра сердцевины, что опять-таки существенно ограничивает энергию импульса и соответственно круг решаемых задач. Поэтому использование импульсов накачки в области 1.25 мкм, позволяет значительно расширить роль и влияние солитонных механизмов в процессах генерации новых спектральных компонент в оптических волокнах. В данной главе представлены результаты наших исследований с различными типами микроструктурированных волноводов со сплошной

сердцевиной, накачиваемых источниками излучения на базе Cr:forsterite лазерных систем, либо с другими лазерными системами, но с длинами волн близкими к центральной длине волны излучения хром-форстеритовых источников. Использование хром-форстеритовых лазеров (наряду с широко развиваемыми в настоящее время иттербиевыми технологиями) и микроструктурированными волокнами позволяет реализовать перестраиваемый источник импульсов в широком спектральном диапазоне с мультимегаваттными уровнями пиковых мощностей на удобной и технологичной волоконной платформе.

### §3.1. Особенности солитонного режима распространения фемтосекундных импульсов в микроструктурированных волноводах

При распространении лазерных импульсов в оптическом волокне возможно формирование солитонов при определенном соотношении дисперсионных и нелинейных эффектов. Понятие "солитона" относится к широкому классу волновых пакетов, которые могут сохранять свою форму при распространении на достаточно большие расстояния, определяемые условиями задачи. Одним из основных условий для поддержания солитонного режима распространения является наличие аномальной дисперсии. Кратко остановимся на механизмах, демонстрирующих особенности распространения оптических солитонов в оптических волноводах. Рассмотрим решение нелинейного уравнения Шредингера (НУШ) для комплексной огибающей импульса  $u$ .

$$-i \frac{\partial u}{\partial z} = \frac{1}{2} \frac{\partial^2 u}{\partial t^2} + |u|^2 u \quad (3.1)$$

Здесь единицы времени, координаты, мощности нормированы на начальную длительность импульса, дисперсионную длину, и начальную пиковую мощность импульса, таким образом, уравнение записано в безразмерных единицах. При анализе НУШ с применением метода обратной задачи рассеяния [1], в которой необходимо задавать длину волны  $\lambda$  электромагнитного излучения,  $D$  – дисперсию групповой скорости, а  $A_{eff}$  – эффективная площадь волноводной моды, возможно показать условия формирования фундаментального солитона в каноническом виде [1]:

$$u = \operatorname{sech}(t) \exp\left(i \frac{z}{2}\right) \quad (3.2)$$

При этом уравнение (3.1) помимо фундаментального солитона (3.2) предполагает и периодически эволюционирующие решения для любого целого  $N$ , называемого солитонным числом, определяемого как начальными характеристиками импульса накачки – длительностью  $\tau_0$  и его пиковой мощностью  $P_0$ , так и характеристиками волокна:

$$N_{sol} = \sqrt{\frac{L_d}{L_{nl}}} = \sqrt{\frac{\gamma P_0 \tau_0^2}{|\beta_2|}} \quad (3.3)$$

где  $L_d$  и  $L_{nl}$  – дисперсионная и нелинейная длины. Длительность фундаментального солитона с высокой точностью описываемой соотношением [1]:

$$\tau_{sol} = \sqrt{\frac{|\beta_2|}{\gamma P_0}} \quad (3.4)$$

В случае коротких лазерных импульсов накачки солитонный режим распространения в световодах интересен не только как фундаментальное явление, но и как источник новых и интересных режимов спектрального преобразования. Солитоны более высоких порядков в присутствии возмущающих их дисперсии высших порядков, самоукрочения, рамановского рассеяния, на начальном этапе демонстрируют солитонную самокомпрессию импульса [156,157], а затем делятся на несколько фундаментальных солитонов, причем в их последовательности каждый последующий имеет меньшую длину волны и более низкую амплитуду огибающей, а также обладает большей длительностью, по сравнению с предыдущим [36]. При уменьшении длительности лазерных импульсов влияние запаздывающей нелинейности, а также эффектов дисперсии высоких порядков, начинает стремительно усиливаться. В результате их воздействия солитон перестаёт быть устойчивым, что проявляется в делении солитона высшего порядка на фундаментальные солитоны с последующим постепенным сдвигом их центральной частоты в длинноволновую область спектра, явление которое носит название солитонный самосдвиг частоты (ССЧ) [38,151], а также процессе излучения дисперсионных волн, который можно интерпретировать как аналог черенковского излучения [41,158].

Условие распространения солитона заключается в балансе между волноводной дисперсией и нелинейностью [1], что определяет следующее отношение между пиковой мощностью солитона  $P$  и длительности импульса  $\tau_s$  с дисперсионным параметром второго порядка  $\beta_2$  и коэффициентом нелинейности  $\gamma$ :  $P = \beta_2 \gamma^{-1} \tau_s^{-2}$ . Это соотношение приводит к выражению для энергии солитона:  $W = 2P\tau_s = 2\beta_2 \gamma^{-1} \tau_s^{-1}$ . В случае, если солитон испытывает адиабатический ССЧ, записанные выше формулы могут считаться приближенными соотношениями, показывающими локальные значения мощности солитона  $P(z)$ , энергии  $W(z)$ , и длительности импульса  $\tau_s(z)$ , зависящие от текущего значения координаты распространения  $z$  через локальные значения дисперсии волновода  $\beta_2(z)$  и нелинейности  $\gamma(z)$ , которые так же меняются с координатой распространения  $z$ , и по мере того как солитон испытывает постоянный сдвиг частоты.

Анализ динамики изменения частоты в нелинейной среде с запаздывающей нелинейностью впервые разработан Гордоном [163] и демонстрирует следующее выражение для величины частотного сдвига на единице длины волокна:

$$\frac{dv}{dz} \approx -\frac{\kappa_G}{\tau_s^4} \quad (3.5)$$

где  $\kappa_G = \kappa_0 \lambda^2 D$  — коэффициент, полагаемый в модели Гордона постоянным.

Формула Гордона позволила идентифицировать важные тенденции и объяснить ряд интересных свойств ССЧ. С появлением МС-волокон, обеспечивающих радикальное увеличение эффективности нелинейно-оптических взаимодействий и позволяющих достигать частотные сдвиги порядка 600 – 700 нм в волокнах длиной 15 – 20 см, возникает необходимость учета факторов, приводящих к отклонениям от формул Гордона. Численный анализ обобщенного НУШ с учетом вклада запаздывающей части оптической нелинейности (рамановского вклада) указывает на замедление частотного сдвига солитона, а также сверхкороткого импульса более общего вида по мере распространения излучения в оптическом волокне. Результаты численных расчетов прямо указывают на замедление ССЧ, вызванное частотной зависимостью эффективной площади волноводной моды. Для практического использования явления ССЧ остроактуальной является задача поиска путей снижения чувствительности ССЧ и времени задержки, смещенного по частоте солитона от параметров входных импульсов. Решение последней задачи оказывается тесно связанным с анализом физических факторов, приводящих к замедлению ССЧ по сравнению со скоростью частотного сдвига, диктуемой формулой Гордона (3.5).

В работе [164] модель Гордона была расширена с учетом закона сохранения числа фотонов в солитоне, испытывающем рамановское (комбинационное) рассеяние. Получена зависимость частотного сдвига солитона от координаты:

$$z(v) = \frac{8(1.763)^4 v_0^8}{\pi c \sigma W_0^4 \gamma_0^4} \int_{v_0}^v \frac{|\beta_2(v_s)|^3}{v_s^8 h(\eta)} dv_s \quad (3.6)$$

где  $\sigma$  – коэффициент рамановского усиления материала волокна,  $\gamma_0$  – коэффициент нелинейности волновода на начальной центральной частоте импульса,  $W_0$  – начальная энергия импульса,  $h(\eta)$  – временная форма функции рамановского отклика материала волокна. В работе [164] было показано, что формула (3.6) показывает хорошее согласие с численными расчетами для сдвига солитонов с короткими длительностями до 7 фс.

Солитоны существуют и как решения более сложного уравнения, включающего в себя помимо дисперсии и керровской нелинейности другие члены, такие как нелинейное поглощение и усиление. Такие уравнения с успехом применяются к описанию волоконных лазерных систем, в которых усиление в значительной степени распределено по длине резонатора, и впервые описаны в пионерской работе [165]. В дальнейшем эти решения были исследованы более глубоко в работах [166,167].

Подводя итоги краткого теоретического обзора, можно сказать, что солитонные режимы распространения в микроструктурированных волокнах открывают возможности управления нелинейно-оптическими взаимодействиями в режиме изолированных волноводных мод, что позволяет значительно повысить эффективность преобразования частоты и трансформации спектра фемтосекундных лазерных импульсов. Более подробный обзор экспериментальных работ и численных расчетов спектрально-временного преобразования импульсов в микроструктурированных световодах в режиме солитонного распространения может быть найден в обзорах [17,37].

### **§ 3.2. Спектрально-временные преобразования импульсов генератора на кристалле хром-форстерита в микроструктурированных световодах с увеличенной сердцевиной.**

Перестраиваемые источники лазерных импульсов находят применения в широком спектре научных и технологических задач. В частности, наличие таких источников с перестраиваемыми центральной длиной волны и длительностью является основополагающим вопросом успешной реализации многих современных методик нелинейно-оптической спектроскопии. В настоящем параграфе рассматриваются возможности получения перестраиваемого излучения в ближней инфракрасной области спектра в микроструктурированных волокнах с увеличенной сердцевиной при использовании импульсов накачки с центральной длиной волны 1.25 мкм от хром-форстеритового генератора фемтосекундных импульсов в процессе солитонного самосдвига частоты, для реализации которого необходимо наличие аномальной дисперсии групповых скоростей световода [151,163]. Как было отмечено в предыдущем разделе, микроструктурированные волокна обеспечивают существенное увеличение скорости ССЧ за счет высокой степени концентрации лазерного излучения в сердцевине МС-волокна с малой площадью поперечного сечения [168–170]. Центральная длина волны генерируемых солитонов на выходе из световода зависит от коэффициента нелинейности, дисперсии и длины волокна, а также энергии, длительности и чирпа входных лазерных импульсов [163,171]. Ключевая идея увеличения мощности и энергии солитонов на выходе из МС волокна заключается в изменении архитектуры МС волокна, которая связана с увеличением его сердцевины и обеспечением достаточно ровной дисперсионной кривой [172].

Используемый в экспериментах фемтосекундный лазерный источник на кристалле  $\text{Cr}^{4+}:\text{forstereite}$  длиной 10 мм кристалла, был собран в МГУ имени М.В.Ломоносова по стандартной двухплечевой схеме с накачкой непрерывным излучением волоконного иттербиевого лазера мощностью 7–10 Вт. Характерной особенностью данного генератора являлось удлинение резонатора, что позволяет получать высокоэнергетичные импульсы с максимальной энергией до 25 нДж в импульсе с длительностью 40–70 фс при частоте повторения порядка 20 МГц (такие энергетические параметры являются уникальными для хром-форстеритовых источников). Лазерные импульсы заводились в МС волокно с помощью микрообъективов, обеспечивающих максимальную эффективность заведения на уровне 35-40%. Так как спектр заводимых в волокно лазерных импульсов попадал в область аномальной дисперсии использованного в наших экспериментах МС волокна, то импульсы формировали солитоны по мере распространения внутри волокна, которые перестраиваются по длине волны благодаря ССЧ.

Для достижения эффективного спектрального преобразования неусиленных фемтосекундных лазерных импульсов за счет ССЧ было использовано МС волокно (см. вставку на рис. 3.2.1, изготовлено в ГОИ им.С.И.Вавилова) с диаметром сплошной сердцевиной  $d \approx 5$  мкм, заметно большим, чем значения  $d$  для типичных высоконелинейных МС волокон (приблизительно 1-2 мкм), но все еще существенно меньшим, чем в МС

волноводах с большой площадью моды (обычно более 10 мкм) [173]. Эффективная площадь моды была оценена как 20 мкм<sup>2</sup>, а параметр нелинейности  $\gamma \approx 10 \text{ Вт}^{-1}\text{км}^{-1}$  на длине волны 1 мкм позволял называть такое волокно высоконелинейным, хотя как уже отмечалось, для МС волноводов параметр нелинейности может достигать гораздо больших величин. Подобные МС волокна с твердотельной сердцевиной и увеличенной площадью моды [174] были использованы для создания мощных волоконных лазеров [175], компрессии импульсов с высокой пиковой мощностью [176] и генерации суперконтинуума [177]. Профиль дисперсии МС волокна можно подобрать с помощью генетического алгоритма [178,179]. В наших экспериментах при выборе дисперсионного профиля МС волокна мы были ограничены рядом имеющихся световодов. Как видно на рис. 3.2.1, ноль дисперсии используемого волокна лежит вблизи длины волны 960 нм, дисперсия монотонно возрастает в широком спектральном диапазоне от 950 до 1900 нм.

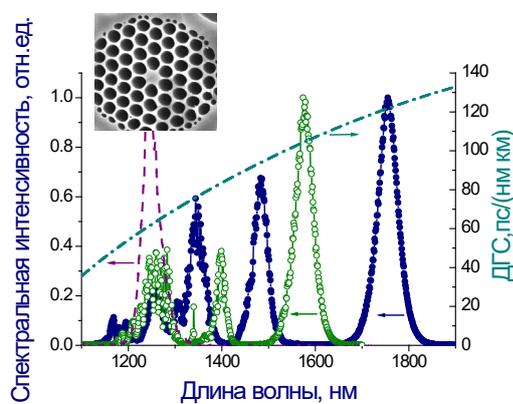


Рис. 3.2.1. Спектральное преобразование импульсов накачки хром:форстеритового генератора (пунктир) с длительностью 55 фс в МС волокне для начальных энергий 5 нДж (полые кружки) и 7 нДж (заполненные кружки). Дисперсия групповых скоростей (ДГС) изображена штрих-пунктирной линией.

В характерных спектрах излучения на выходе из МС волокна, показанных на рис. 3.2.1. и 3.2.2, видны хорошо различимые пики в длинноволновой области, отождествляемые со сдвигающимися по частоте солитонами. Возможность перестройки длины волны солитона на выходе 12-см отрезка МС волокна проиллюстрирована на рис. 3.2.1, где изображены спектры импульсов лазера на хром-форстерите с различными энергиями на входе. Спектрально сдвинутый солитон с центром на длине волны 1770 нм имеет энергию 2.9 нДж при длительности импульса 35 фс, что соответствует пиковой мощности 83 кВт.

Экспериментальные результаты подтвердились теоретическим анализом эволюции импульса в волокне на основе решения обобщенного нелинейного уравнения Шредингера (ОНУШ) [1]. Этот анализ обеспечивает достаточно точные предсказания центральных длин волн, спектральных ширин, энергий и длительностей, смещенных в длинноволновую область солитонов, наблюдаемых в спектре излучения на выходе из МС волокна (рис. 3.2.2). Здесь также рассмотрен случай chirpирования импульсов с энергией порядка 3,8 нДж от начальной длительности 55 фс до 85 фс. Солитон с большей энергией испытывает больший частотный сдвиг, образуя в спектре на выходе из 35-см отрезка волокна пик с центром в

районе 1670 нм. И результаты экспериментов, и численное моделирование дают оценку энергию этого солитона 1.8 нДж. Для этого солитона теоретический анализ предсказывает длительность импульса около 60 фс, а экспериментальные измерения, осуществленные с использованием техники XFROG (в качестве опорного использовался импульс на основной длине волны хром-форстеритового генератора [180])). Эти измерения дают оценку длительности импульса в 65 фс, что соответствует пиковой мощности солитона 28 кВт.

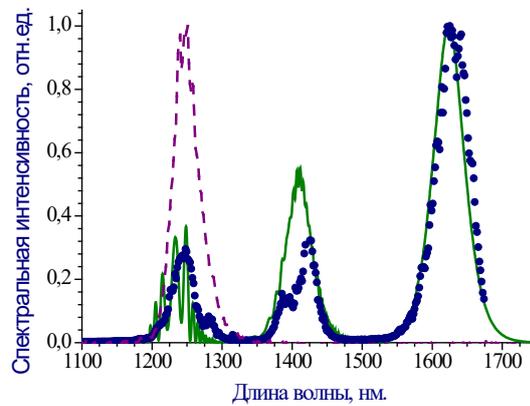


Рис.3.2.2. Экспериментальная (сплошная кривая) и теоретическая (точки) формы солитонных импульсов, сформированных в МС волокне длиной 35 см. Входные импульсы (пунктир) с энергией 3.5 нДж были chirпированы до длительности 85 фс.

Численное моделирование на основе решения ОНУШ показало, что при подходящей оптимизации параметров волокна и импульса можно добиться субмегаваттной пиковой мощности импульсов при генерации солитонов. На рис. 3.2.3 демонстрируется формирование солитонов на длине волны 1830 нм с энергией около 7 нДж и длительностью около 25 фс, что соответствует пиковой мощностью около 300 кВт.

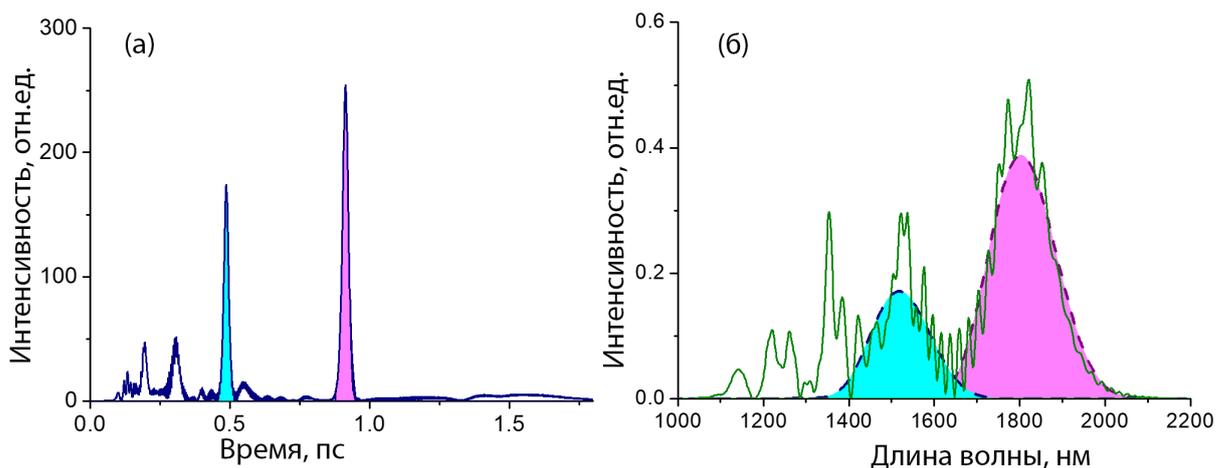


Рис. 3.2.3. Временная огибающая (а) и спектр (б) фемтосекундного импульса из хром-форстеритового лазера, прошедшего двухсантиметровый отрезок ФК волокна с дисперсионным профилем, показанным на рис.3.2.1 штрих-пунктирной линией. Энергия входного импульса 20 нДж. Пунктирные линии и закрашенные области показывают спектры отдельных солитонов, вычисленных с помощью Фурье-преобразования двух солитонных структур, наблюдаемых во временном представлении в пределах временного окна равно  $3\tau_s$ .

При увеличении энергии смещенных по спектру солитонов в МС волокне их спектральная ширина может стать настолько большой, что наблюдаются эффекты спектральной интерференции, искажающие временной и спектральный профиль солитонов (рис. 3.2.3б). Этот эффект усиливается при увеличении энергии входного импульса и является одним из ограничивающих факторов повышения энергетических характеристик солитонов. Для используемых в расчетах параметров лазерного импульса и МС волокна максимальная пиковая мощность полученных солитонов составила 0.5 МВт. При дальнейшем увеличении мощности солитоны перестают разрешаться в спектре выходного импульса, который сливается в сплошной суперконтинуум.

Таким образом, было показано, что дисперсия и нелинейность МС волокна со сплошной увеличенной сердцевиной позволяет формировать мощные сверхкороткие перестраиваемые по частоте солитоны в диапазоне длин волн от 1300 до 1800 нм с пиковой мощностью до 83 кВт и длительностью 30 – 70 фс. Результаты численного анализа хорошо согласуются с экспериментальными данными, что позволяет предсказать возможность масштабирования энергии перестраиваемых по частоте солитонов до субгигаваттного уровня пиковых мощностей. Необходимо отметить, что аналогичные результаты примерно в то же время были получены в работе [181], также при использовании накачки импульсами от Cr:forsterite генератора. В этих экспериментах было достигнуто смещение центральной длины волны солитонов до 2.1 мкм, однако, энергия и пиковая мощность была заметно меньше, чем в нашей работе [173].

Поскольку эксперименты подтвердили перспективность использования данной схемы с использованием МС волокон в сочетании с накачкой хром-форстеритового генератора с удлиненным резонатором для реализации источника перестраиваемых фемтосекундных импульсов, то далее были проведены работы по улучшению технологичности схемы, с целью ее дальнейшего использования в целях нелинейно-оптической спектроскопии и микроспектроскопии. Использование асферических микролинз с высокой числовой апертурой и просветлением на длины волны 1.25 мкм позволило повысить эффективности заведения излучения модифицированного Cr:forsterite лазера в аналогичный МС световод с увеличенной сердцевиной до 75% [182]. При заведении импульсов с длительностью 68 фс и энергией 5 нДж (рис.3.2.4а) в спектре на выходе волокна можно видеть изолированный по спектру солитон на длине волны 1550 нм длительностью 47 фс, что также было подтверждено численным анализом на основе решения обобщенного нелинейного уравнения Шредингера. Эффективность преобразования энергии из импульса накачки в солитон зависит от центральной длины волны последнего и составляет величину до 35%. На рис.3.2.4б показана типичная XFROG спектрохронограмма, полученная при измерении импульса на длине волны 1640 нм длительностью 54 фс.

Варьирование энергии импульса накачки при помощи аттенюатора позволило наблюдать стабильную и воспроизводимую генерацию с мегагерцовой частотой повторения перестраиваемых по длине волны импульсов в диапазоне от 1300 до 1800 нм, длительностью от 47 фс до 70 фс с энергией 1–2.5 нДж и пиковой мощностью до 50 кВт (рис. 3.2.3в). Солитонные импульсы с разными длинами волн распространяются в световоде

с разными групповыми скоростями, что отражается во временной задержке между ними, отражённой на измеренных методом XFROG спектрохронограммах (рис.3.2.4г).

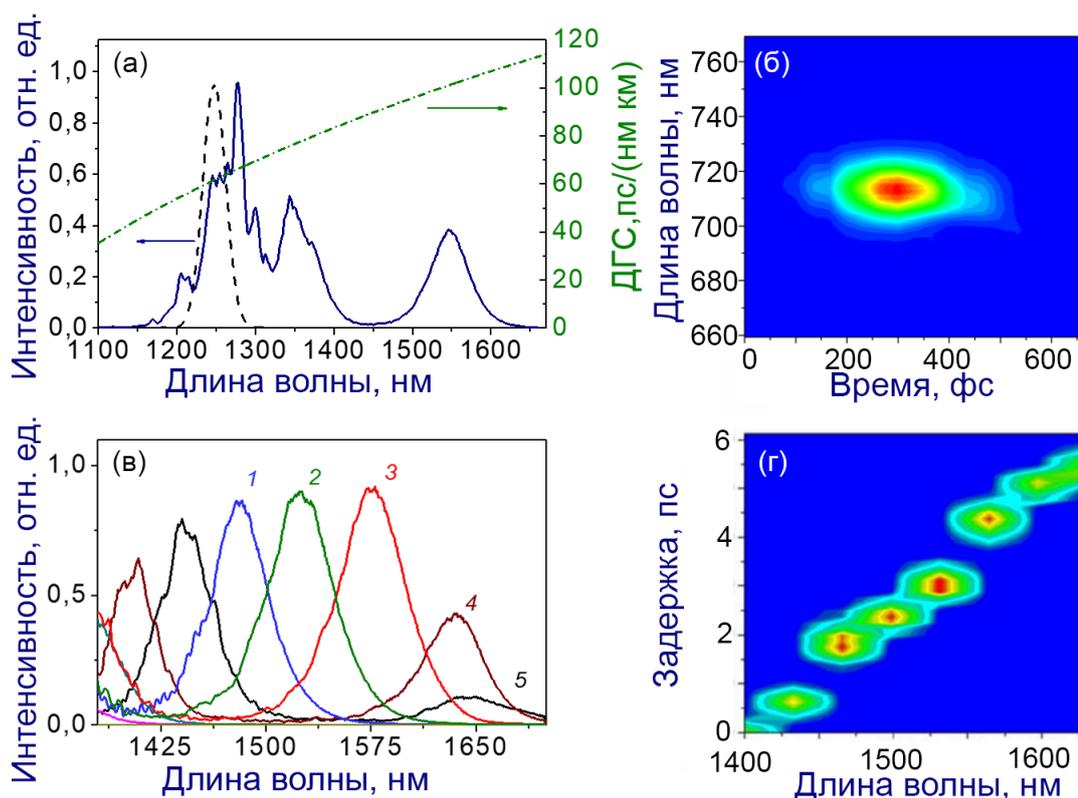


Рис.3.2.4. (а) Спектр импульса лазера Sr:форстерит (пунктирная линия) и спектр излучения из МС-световода длиной 20 см, измеренный при входной энергии импульса накачки 5 нДж (сплошная линия); (б) XFROG-карта солитона на длине волны 1650 нм длительностью 55 фс; (в) спектры сдвинутых по длине волны солитонов в МС-волноводе при энергии заводимого в световод импульса 3.5 нДж (1), 4 нДж (2), 4.4 нДж (3), 4.9 нДж (4), 6.3 нДж (5), и 7.5 нДж (6); (г) спектрохронограмма изменения временной задержки солитона относительно импульса из лазера накачки от его центральной длины волны.

Небольшие флуктуации мощности вводимого в волокно импульса и сильная зависимость ССЧ от параметров входного импульса приводят к нежелательным изменениям центральной длины волны солитона, а также к флуктуациям времени задержки, смещенного по частоте солитона (рис.3.2.4г). Этот фактор является нежелательным, в частности, он может ограничивает точность временной привязки солитона с импульсом накачки. Однако, как отмечалось выше, могут существовать режимы, определяемые ДГС волокна, в которых смещение частоты солитона существенно замедляется или даже достигать асимптотического предела ССЧ. Это явление можно также описать как спектральную отдачу (отскок) солитона, проявляющегося в виде излучения сдвинутых в длинноволновую область дисперсионных волн. Замедление ССЧ уменьшает нежелательные изменения центральной длины волны и флуктуации времени задержки, смещенного по частоте солитона относительно импульса на входе волокна. Это обстоятельство позволяет улучшить точность временной синхронизации зондирующих импульсов в схемах нелинейно-оптической спектроскопии [164,171,183]. Выполненные эксперименты показывают, что МС-волокна со специальным профилем дисперсии

позволяют создать высокоэффективные источники перестраиваемых по частоте коротких световых импульсов для нелинейной спектроскопии.

### **§ 3.3. Генерация перестраиваемого излучения в видимом диапазоне в процессе солитонного самодвига частоты в микроструктурированных волокнах при накачке фемтосекундными импульсами от хром-форстеритового генератора**

Преобразование частоты лазерного излучения в коротковолновую область в основном ассоциируется с применением нелинейно-оптических кристаллов. Основные факторы, ограничивающие эффективность преобразования частоты сверхкоротких импульсов в нелинейных кристаллах, определяются дисперсией групповых скоростей и возможностью обеспечения условий фазового согласования лишь в ограниченном спектральном диапазоне, а также относительно небольшой длиной нелинейно-оптического взаимодействия. Альтернативные решения могут быть связаны с микроструктурированными световодами [2,4,6,184], которые обеспечивают возможности гибкого управления нелинейностью и волноводной дисперсией, а также большую длину нелинейно-оптического взаимодействия.

Наиболее распространенным способом управления дисперсией и пространственным профилем мод МС-волокон является изменение масштаба сердцевинки и структуры оболочки, а также варьирование геометрических параметров системы воздушных отверстий в оболочке волокна [11–14]. Однако, в работах [15,185,186] было продемонстрировано, что диапазон и специфика управления дисперсией, пространственным профилем поля и нелинейностью МС-волокон могут быть существенно расширены за счет использования системы воздушных отверстий с нанометровыми размерами, модифицирующими сердцевину световода.

В наших исследованиях эта идея нашла свою реализацию, которая показала, что система воздушных отверстий диаметром 100 - 500 нм в сердцевине МС-волокна позволяет сформировать частотный профиль дисперсии (смещение точки нулевой дисперсии групповой скорости, управление формой дисперсионной кривой и ее наклоном вблизи этой точки) и пространственное распределение электромагнитного поля в направляемых волноводных модах, обеспечивающие эффективное преобразование частоты фемтосекундных импульсов хром-форстеритового лазера, приводящее к генерации перестраиваемого излучения в спектральном диапазоне от 0.45 до 1.0 мкм [187–189]. Добавление в сердцевину волокна наноструктур с размером заметно меньшим длины волны света не приводит к критическим изменениям в характере распространения излучения. С другой стороны, в силу того, что излучение локализовано в основном в сердцевине, то даже небольшие возмущения показателя преломления сердцевинки, вызванные добавлением наноразмерных отверстий, приводят к значительному влиянию на дисперсию волокна. Изменяя количество, размер и расположение наноразмерных воздушных отверстий в сердцевине волокна можно контролируемым образом изменять профиль дисперсии

микроструктурированного волновода, что является дополнительной опцией к «стандартным» возможностям управления дисперсией МС волокон за счет изменения размера сердцевины и структуры оболочки. Для демонстрации возможностей наноструктурирования рассмотрим структуру кварцевого МС волокна (см. рис. 3.3.1а): сердцевина МС волокна имеет радиус  $R$  порядка 1 мкм и окружена системой капилляров с таким же диаметром, на расстоянии  $R_0$  от центра симметрично располагаются шесть отверстий с радиусом  $d$  порядка 100 нм.

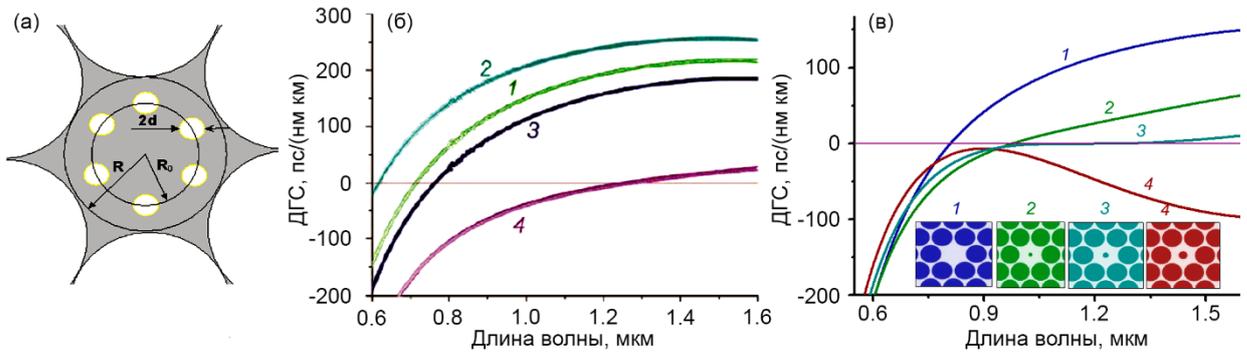


Рис. 3.3.1. (а) Модификация сердцевины МС волокна наноразмерными отверстиями (серый цвет соответствует среде с большим показателем преломления). (б) Профиль ДГС микроструктурированного волокна с радиусом сердцевины 1 мкм без модификации сердцевины (линия 1) и модифицированная циклом наноразмерных отверстий (линии 2 и 3 для значений  $R_0/R = 0.3$  и  $0.6$ , соответственно). Линией 4 представлена материальная дисперсия кварца. (в) Влияние одного наноразмерного воздушного отверстия, располагающегося в центре сердцевины МС волокна, на форму его волноводной дисперсии.

Для анализа свойств направляемых мод электромагнитного поля в исследуемой волноводной структуре использовалась полностью векторная модификация метода локализованных функций. Метод основан на разложении поперечных составляющих поля  $\vec{E}(z, t) = \vec{E} \exp(i(\beta z - ckt))$  (здесь  $\vec{E} = (E_x, E_y)$ ,  $\beta$  – постоянная распространения волноводной моды,  $k$  – волновое число,  $c$  – скорость света в вакууме) по системе полиномов Гаусса-Эрмита и разложении двумерного пространственного профиля показателя преломления  $n^2(x, y)$  в ряд по системе полиномов Гаусса-Эрмита и тригонометрических функций. При таком представлении  $E_x, E_y, n^2(x, y)$  решение векторных волновых уравнений для поля сводятся к решению задачи на собственные функции и собственные значения (см. параграф 1.6). Для основной моды подобного наноструктурированного световода расчет пространственного распределения поля позволяет оценить величину коэффициента оптической нелинейности для излучения с длиной волны 1.25 мкм как  $\gamma \approx 700 \text{ Вт}^{-1}\text{км}^{-1}$ . Можно также рассчитать зависимости дисперсии групповых скоростей для основной и нескольких высших мод МС-волокна, представленных на рис. 3.3.1б. Дисперсионный профиль (линия 1) «невозмущенного» волокна будет заметно изменяться при наноструктурировании его сердцевины циклом из шести отверстий для значений  $R_0/R = 0.3$  и  $0.6$  (линии 2 и 3, соответственно). Также на этом рисунке представлена материальная дисперсия кварца (линия 4). Наноструктурирование сердцевины волокна значительно (на

100 нм) смещает точку с нулевой дисперсией групповых скоростей в коротковолновую область по сравнению с исходным МС волокном [15,185,186].

Помимо смещения точки с нулевой дисперсией групповых скоростей, наноструктурирование оболочки позволяет управлять формой дисперсионной кривой, в частности, значительно уменьшить наклон дисперсии групповой скорости вблизи этой точки. Управление наклоном дисперсионной кривой способствует улучшению эффективности нелинейно-оптических процессов, что и служит задаче создания эффективных компактных устройств трансформации спектра лазерного излучения и источников перестраиваемого излучения.

Демонстрация этого результата проиллюстрирована на рис. 3.3.1в. В данном случае наноструктурирование достигается с помощью одного отверстия, располагающегося в центре сердцевинки. Дисперсионной кривой МС волокна с немодифицированной сердцевинкой и радиусом 1 мкм соответствует линия 1. При добавлении наноразмерных отверстий с радиусами 100, 200 и 400 нм в сердцевину волокна (см. вставки на рис. 3.3.1в) дисперсионные зависимости (линии 2, 3, 4), существенно изменяют свою форму. Для значения радиуса отверстия 200 нм удается значительно изменить наклон дисперсионной кривой, сделав его пологим в широком спектральном диапазоне (линия 3).

Изображение поперечного сечения использовавшегося в экспериментах МС-волокна представлено на вставке к рис. 3.3.2. Оболочка волокна имеет близкую к периодической структуру с шагом 1.4 мкм и диаметром воздушных отверстий 1.2 мкм. В сердцевине волокна имеется система из шести воздушных отверстий с диаметром около 500 нм. Оптические волокна изготовлены из стекла марки ТФ10 в ТОСС (Саратов). Оптическая нелинейность стекла этого типа почти на порядок превышает нелинейность плавленого кварца, обычно используемого для изготовления оптических волокон. Материальная дисперсия стекла ТФ10 также заметно отличается от дисперсии плавленого кварца. В частности, длина волны  $\lambda_z$ , соответствующая нулевому значению дисперсии групповой скорости (ДГС), смещена в область длинных волн ( $\lambda_z \approx 2.0$  мкм) по сравнению с точкой нуля ДГС в объеме плавленого кварца.

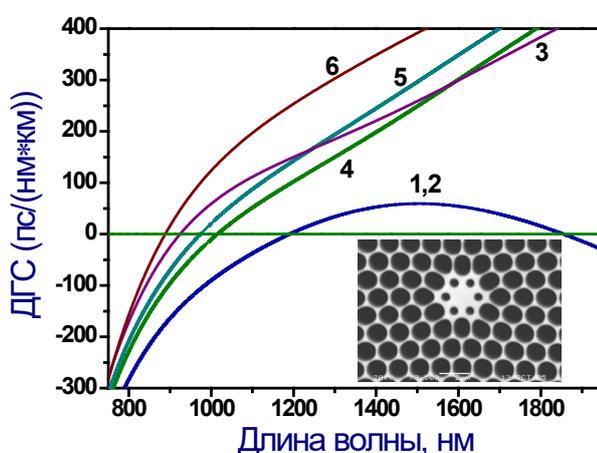


Рис. 3.3.2. (а) Зависимости дисперсии групповой скорости от длины волны для дублета основных (1, 2) и нескольких высших (3 – 6) мод МС волокна с наноструктурированной сердцевинкой (фотография поперечного сечения МС волокна показана на вставке).

Центральная длина волны излучения хром-форстеритового генератора лазера 1.25 мкм лежит в области аномальной дисперсии МС-волокна. При этих условиях распространение фемтосекундных лазерных импульсов с пиковой мощностью, обеспечиваемой хром-форстеритовым лазером, сопровождается формированием солитонов. Солитоны испытывают низкочастотный сдвиг по мере распространения в волокне за счет запаздывающей части оптической нелинейности. Дисперсия высших порядков приводит к нарушению баланса между нелинейностью и дисперсией, необходимого для существования солитона. Возмущения такого рода приводят к излучению избыточной энергии солитонов в виде дисперсионных волн, наблюдаемых в виде интенсивных, видимых глазом спектральных линий в видимом и ближнем ИК диапазонах спектра (рис. 3.3.3). При варьировании энергии излучения накачки и изменении модового состава излучения, распространяющегося в волокне, обеспечивалась перестройка наиболее интенсивных спектральных линий, генерируемых на выходе МС-волокна в области от 0.45 до 1.0 мкм. В экспериментах модовый состав излучения варьировался изменением угла наклона лазерного пучка относительно оси волокна.

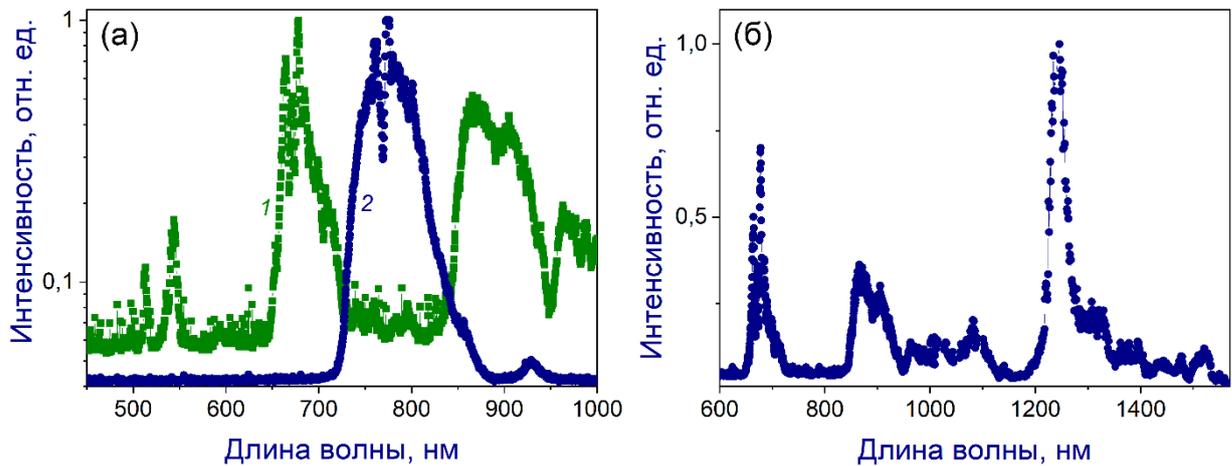


Рис. 3.3.3. (а) Коротковолновая часть спектра излучения, регистрируемого на выходе МС-волокна с наноструктурированной сердцевиной. Накачка волокна производится лазерным пучком, ориентированным (1) строго по оси волокна, (2) под углом к оси волокна. (б) Длинноволновая часть спектра излучения на выходе из МС-волокна. Длина волокна – 20 см. Энергия входного импульса – 2 нДж. Начальная длительность импульса – 70 фс.

Центральная длина волны испускаемого солитоном излучения определяется условием фазового согласования между солитоном и излучаемой дисперсионной волной. На рис. 3.3.4 представлена расстройка  $\delta\beta = \beta_s(\lambda_0) - \beta(\lambda_d)$  постоянной распространения солитона  $\beta_s(\lambda_0)$  на длине волны излучения накачки,  $\lambda_0 = 1.25$  мкм, и постоянной распространения  $\beta(\lambda_d)$  дисперсионной волны, рассчитанная в зависимости от длины волны  $\lambda_d$ . Сравнение спектров излучения, измеренных на выходе МС-волокна (рис.3.3.3), с результатами расчетов (рис. 3.3.4) показывает, что центральные частоты наблюдающихся в эксперименте наиболее интенсивных спектральных компонент на выходе МС-волокна с хорошей точностью согласуются с частотами, на которых удовлетворяется условие фазового согласования  $\delta\beta = 0$  между солитоном и дисперсионной волной.

Представленные результаты показывают, что система воздушных нанометровых отверстий, модифицирующих сердцевину оптического волокна, позволяет активно формировать частотный профиль дисперсии и пространственный профиль светового поля волноводных мод. Разработаны и экспериментально продемонстрированы МС-волокна из стекла с высокой нелинейностью с сердцевиной, модифицированной системой воздушных отверстий диаметром около 500 нм. Профиль дисперсии волноводных мод в представленных в настоящей работе МС-волокнах обеспечивает высокоэффективное преобразование частоты фемтосекундных импульсов хром-форстеритового лазера, приводящее к генерации перестраиваемого излучения в диапазоне 0.45–1.0 мкм.

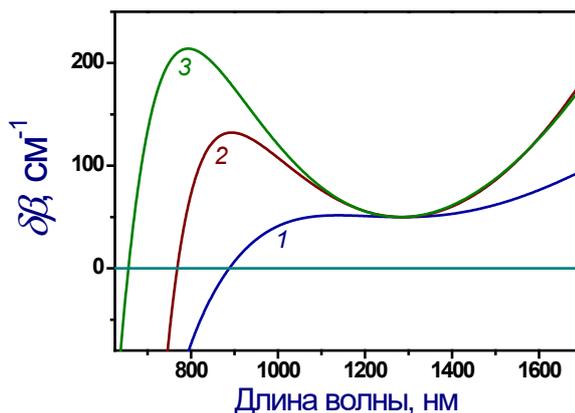


Рис. 3.3.4. Расстройка  $\delta\beta = \beta_s(\lambda_0) - \beta(\lambda_d)$  постоянной распространения солитона  $\beta_s(\lambda_0)$  на длине волны излучения накачки,  $\lambda_0 = 1.25$  мкм, и постоянной распространения  $\beta(\lambda_d)$  дисперсионной волны, рассчитанная в зависимости от длины волны  $\lambda_d$ .

Ниже рассмотрим проявление другого эффекта, приводящего к получению изолированных спектральных компонент в видимой области спектра при накачке импульсами хром-форстеритового лазера, а именно генерацию третьей гармоники (ГТГ). ГТГ одно из ключевых нелинейно-оптических явлений, применяемое как для преобразования частоты лазерного излучения, так и в области нелинейно-оптической спектроскопии и микроскопии для получения информации о структуре материалов и свойствах быстропротекающих процессов. Микроструктурированные световоды позволяют наблюдать новые, необычные режимы ГТГ. Так в работе [190] мы демонстрируем, что высокая степень локализации света в сердцевине МС волокна (диаметр сердцевины 1,5 мкм, длиной 8 см и  $f = 16\%$ ) усиливает нелинейно-оптические процессы третьего порядка - наблюдалось спектральное уширение лазерных импульсов из-за фазовой самомодуляции и генерации излучения третьей гармоники. Как импульсы накачки, так и импульсы третьей гармоники оказываются спектрально уширенными на выходе волокна, при этом спектры третьей гармоники, демонстрируют характерную асимметрию, что свидетельствует о влиянии фазовой кросс-модуляции (ФКМ) при наличии эффектов групповой задержки. Это наблюдение процесса генерации третьей гармоники, контролируемого ФКМ-чирпом, обеспечивает принципиальные возможности использования микроструктурированных волокон для преобразования частоты с одновременным управлением чирпом и/или компрессией импульса. Помимо возможностей

сжатия импульсов с преобразованной частотой, анализ кросс-фазовой модуляции при генерации третьей гармоники также очень важен для более глубокого понимания нелинейно-оптических процессов, способствующих генерации суперконтинуума, в частности с иллюстрацией того, как довольно сложная комбинация различных процессов четырехволнового смешения приводит к качественным спектральным преобразованиям сверхкоротких импульсов, распространяющихся в микроструктурированных волокнах. Аналогичные эксперименты по ГТГ проводились с перетянутыми волокнами и неусиленными импульсами Cr:forsterite лазера [191]. Анализ дисперсионных свойств перетянутого волокна указывает на возможность фазового согласования генерации третьей гармоники в модах волновода более высокого порядка. Когда импульсы накачки и третьей гармоники не согласованы по групповой скорости, оптимальное фазовое согласование достигается для частотных компонент спектрально смещенных относительно центральной частоты импульса накачки, что приводит к асимметрии в спектре третьей гармоники.

В наших экспериментах с использованием МС с элементами наноструктурирования показано, что аналогично процессу излучения дисперсионных волн непрерывно сдвигающимися по длине волны в «красную» спектральную область солитонами можно наблюдать эффективный процесс ГТГ [192,193]. В многомодовых для коротковолнового излучения световодах непрерывно смещаемая частота солитона, распространяющегося в основной моде, проходит последовательность резонансов фазового согласования с разными волноводными модами высокого порядка поля третьей гармоники. Как следствие, в спектре третьей гармоники на выходе волокна наблюдаются последовательности изолированных спектральных компонент, имеющие центральные частоты, которые существенно отличаются от утроенной начальной частоты поля накачки на входе в волокно.

Максимальная эффективность процесса ГТГ достигается при условии фазового согласования поля накачки и поля третьей гармоники. Вследствие того, что солитон в волокне возникает при компенсации дисперсии групповой скорости Керровской нелинейностью и распространяется без существенного изменения формы, его дисперсия отличается от дисперсии обычной волны. Из-за этого условие фазового согласования для процесса ГТГ (как и для всех четырехволновых взаимодействий) в поле солитонной накачки не совпадают с условиями фазового синхронизма для процесса ГТГ в обычном режиме.

Условие фазового согласования солитонной накачки и несолитонной (дисперсионной) волны третьей гармоники [193] заключается в том, что эффективный показатель преломления для волноводной моды поля третьей гармоники определяется выражением  $n_m(3\omega) = \beta_{TH}(3\omega)c/(3\omega)$ , где  $\beta_{TH}(3\omega) = \beta_m(3\omega)$  - постоянная распространения моды  $m$  на частоте третьей гармоники. Условие фазового согласования для процесса ГТГ при этом имеет вид  $n_m(3\omega) = n_{sol}(\omega)$ , где  $n_{sol}(\omega) = \beta_{sol}(\omega)/k$  - эффективный показатель преломления солитона,  $k = 2\pi/\lambda$ ,  $\lambda$  - длина волны.

На рис. 3.3.5а,б представлены результаты экспериментального исследования процесса ГТГ в МС световодах, иллюстрирующие наиболее важные свойства явления ГТГ в поле солитонной накачки. Фемтосекундные импульсы хром-форстеритового лазера с начальным

спектром, представленным штриховой кривой на рис. 3.3.5а, распространяются в МС-световоде со структурой поперечного сечения, показанной на рис. 3.3.6а. Центральная длина волны излучения хром-форстеритового лазера лежит в области аномальной дисперсии основной моды МС волокна, чей спектральный профиль дисперсии групповой скорости представлен штрих-пунктирной кривой на рис. 3.3.5а. Солитон, формируемый в волокне лазерным импульсом, испытывает низкочастотный сдвиг, связанный с запаздывающей оптической нелинейностью кварца. На выходе МС волокна длиной около 12 см спектр импульса с начальной энергией около 0.5 нДж оказывается смещен в низкочастотную область примерно на 100 нм (рис. 3.3.5а).

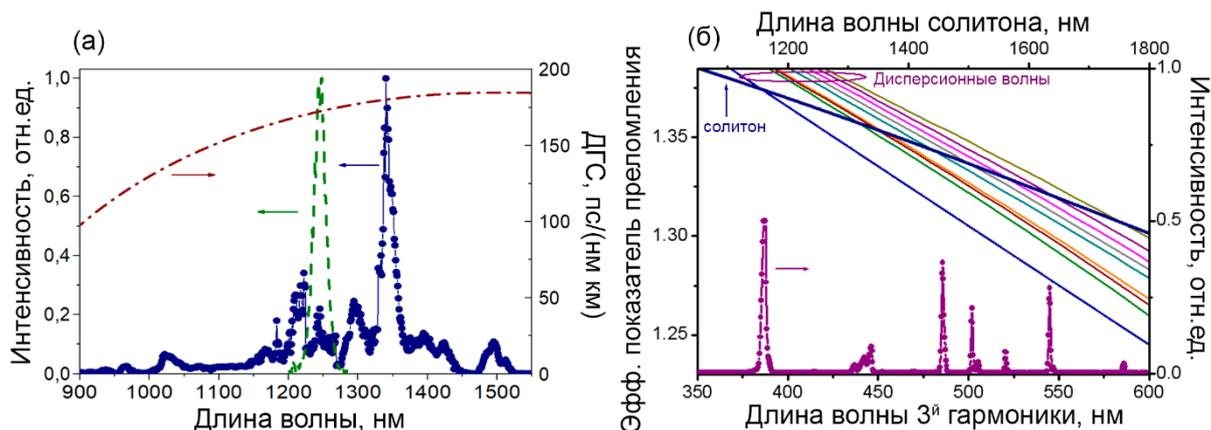


Рис. 3.3.5. (а) Спектральный профиль дисперсии групповой скорости (штрих-пунктирная кривая) МС-световода. Спектр фемтосекундного импульса хром-форстеритового лазера (0.5 нДж) на входе и выходе МС-световода длиной 12 см. (б) Спектр на выходе МС-световода длиной 30 см от импульса накачки с длительностью 120 фс и энергией 2 нДж. Утолщенной сплошной линией показана зависимость эффективного показателя преломления солитона  $n_{sol}$  от длины волны (солитон распространяется в основной моде МС-волокна). Тонкими сплошными линиями показаны зависимости эффективных показателей преломления  $n_m$  различных волноводных мод высокого порядка.

Распространение лазерного импульса по МС-световоду сопровождается солитонным сдвигом частоты и генерацией третьей гармоники, приводящей к появлению интенсивных изолированных компонент в спектральной области 380 – 550 нм (рис. 3.3.5б). Частоты, на которых наблюдаются эти спектральные компоненты, с высокой точностью согласуются с частотами, на которых достигается фазовое согласование для процесса генерации третьей гармоники из основной моды в одну из мод высокого порядка. В данном случае условием фазового синхронизма будет являться равенство эффективного показателя преломления солитона  $n_{sol}(\omega)$  (утолщенная сплошная линия на рис. 3.3.5б) и эффективного показателя преломления одной из волноводных мод высокого порядка на частоте  $3\omega$  (тонкие сплошные линии на рис. 3.3.5б). Выполнению условия фазового согласования на рис. 3.3.5б соответствует пересечение линии  $n_{sol}(\lambda)$  с дисперсионной зависимостью  $n_m(\lambda/3)$  одной из волноводных мод. Состав спектра третьей гармоники на выходе МС-световода может перестраиваться путем изменения параметров импульса накачки.

Таким образом, МС-волокна со специально подобранным профилем дисперсии групповой скорости, обеспечивают высокую эффективность процесса ГТГ в поле солитонной фемтосекундной накачки. Возможность генерации сигнала третьей гармоники позволяет расширить функциональные возможности фемтосекундных лазерных источников ближнего ИК-диапазона, открывая пути использования таких лазерных систем для инициирования и время-разрешенного исследования широкого класса фотохимических и фотобиологических процессов.

В основном в диссертационной работе описываются результаты с использованием МС волокон, изготовленных из кварца, который обладает наиболее сбалансированными физическими и технологическими свойствами. Однако, как отмечалось в Главе 1, одним из способов управления нелинейными и дисперсионными свойствами оптических световодов является использование других типов стекла. В наших исследованиях [189,194] мы продемонстрировали эффективное преобразование частоты излучения фемтосекундных лазерных источников на кристалле хром-форстерита в микроструктурированных волокнах, изготовленных в ТОСС (Саратов) из различных марок стеклянных заготовок, обладающих высокой нелинейностью. Оболочка МС волокна (рис.3.3.6б) имела структуру типа решетки кагоме и изготовлено из многокомпонентного стекла, а другое МС волокно, используемое в экспериментах, было изготовленное из высоконелинейного стекла ТФ10 (рис.3.3.6в). Свойства и состав этих стекол подробно представлены в [194].

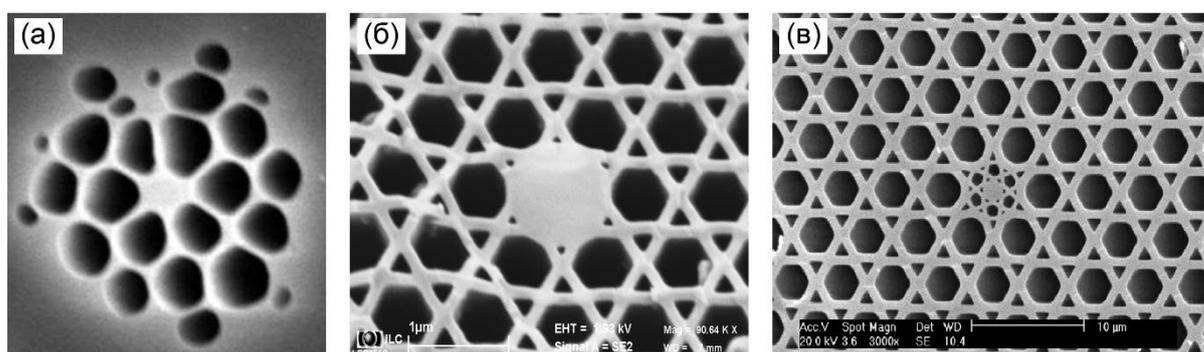


Рис.3.3.6. Фотографии структур поперечного сечения МС световодов из различных марок: а) плавный кварц, б) многокомпонентное стекло; в) высоконелинейное стекло ТФ10.

В работах [189,194] мы продемонстрировали эффективное преобразование частоты излучения фемтосекундных лазерных источников на кристалле хром-форстерита в микроструктурированных волокнах, изготовленных из разных типов стекла, и формирование не только изолированных спектральных компонент, но и рассмотрели условия генерации суперконтинуума. Экспериментально и теоретически было показано, что за счет масштабирования размеров сердцевины и оболочки волокна, удается значительно сдвигать точку с нулевой дисперсией групповой скорости и тем самым изменять условия фазового согласования, приводящие к эффективной генерации суперконтинуума и различных спектральных компонент в видимой области спектра.

Дисперсия и нелинейность МС волокон обоих типов изменилась за счет масштабирования размеров структуры, что достигалось различной степенью вытягивания

волокон из преформ одной геометрии. Аналогично упомянутой выше методике численного анализа, на основе двумерного пространственного профиля показателя преломления в ряд по базису полиномов Гаусса-Эрмита, рассчитаны дисперсионные и нелинейные характеристики волокон. Нулевая дисперсия групповой скорости для многокомпонентного стекла лежит в районе 1.66 мкм, в то время как за счет масштабирования геометрических размеров структуры оболочки (диаметр сердцевинки изменялся от 1.5 до 4 мкм) удавалось сдвигать точку с нулевой дисперсией групповой скорости в пределах от 814 до 1175 нм. МС волокна с меньшим диаметром сердцевинки обеспечивают большую локализацию света и соответственно больший коэффициент нелинейности. При увеличении длины волны нелинейность падает из-за увеличения эффективной площади мод для больших длин волн. Сравнение МС волокон, изготовленных из кварца и мягкого многокомпонентного стекла аналогичной архитектуры показывает, что область с нулевой дисперсией групповой скорости для МС волокон, изготовленных из мягкого стекла, лежит ближе к длине волны излучения хром-форстеритового лазера, что делает более эффективным процесс генерации суперконтинуума от импульсов накачки хром-форстеритового лазера.

Для обоих используемых волокон излучение накачки попадало в область аномальной дисперсии, что предоставляло возможность для генерации солитонов. Из-за наличия дисперсии высших порядков приводящих к выполнению условий фазового согласования между солитонами и дисперсионной волной, генерируются новые спектральные компоненты в коротковолновой области спектра. Для МС волокон из многокомпонентного стекла с решеткой кагоме и диаметром сердцевинки 2.4 мкм, и импульса накачки с энергией до 12 нДж, распространяющегося в сердцевине волокна, генерируется излучение в районе длины волны 613 нм. При увеличении энергии импульса накачки из-за множественной генерации солитонов и фазовой кросс-модуляции эта линия значительно уширяется и сдвигается в коротковолновую область. Уменьшение диаметра сердцевинки волокна этого типа до 2 мкм приводит к увеличению интенсивности света, локализованного в сердцевине при той же энергии импульса накачки. Это приводит к генерации излучения на длине волны 530 – 540 нм в силу механизмов, связанных с излучением дисперсионных волн. При этом в спектре в сумме наблюдались два пика: уширенный импульс накачки в диапазоне от 1100 до 1320 нм и сверхуширенный пик дисперсионных волн в диапазоне от 500 до 930 нм. «Провал» между ними уменьшался, имея тенденцию к формированию непрерывного спектра суперконтинуума, но из-за достаточно сильного затухания в данных типах волокон оцененных как 2 -10 дБ/м, получить полное исчезновение этого провала не удавалось. Наличие таких потерь, связанных с технологическими недостатками процесса изготовления, а также низкий коэффициент заведения излучения в сердцевину (порядка 10%), вызывали необходимость использования для накачки МС волокон в этой серии экспериментов ослабленное излучение из регенеративного хром-форстеритового усилителя. Однако, очевидно, что при уменьшении потерь МС волокон, изготовленных из многокомпонентных стекол, для эффективного спектрально-временного преобразования может быть использовано непосредственно излучение фемтосекундного хром-форстеритового лазера.

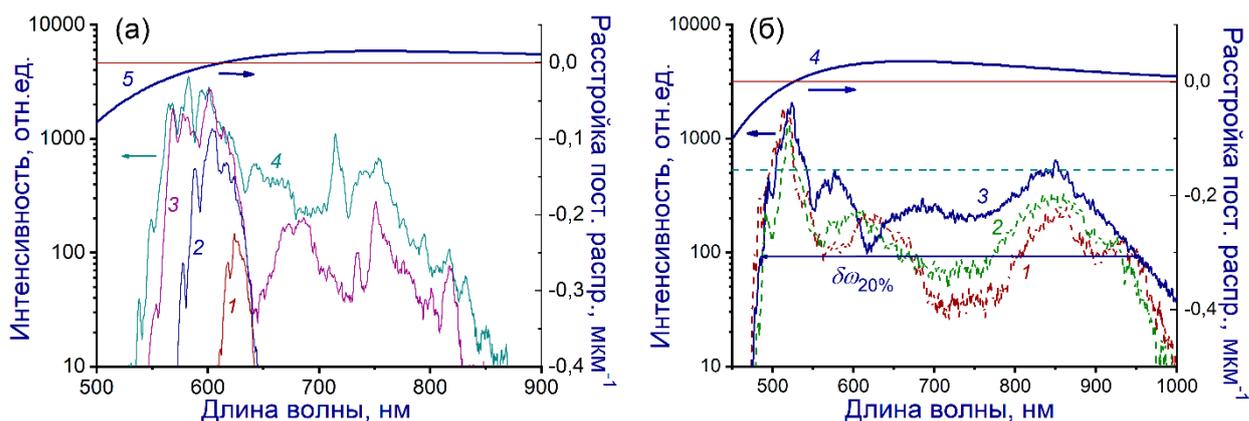


Рис.3.3.7. Выходные спектры мягкого стеклянного МС-волокна со структурой поперечного сечения, показанной на рис.3.3.6б и диаметром сердцевины (а) 2,4 мкм и (б) 2 мкм. Импульс накачки от лазерной Sr: форстеритовой системы с усилителем имеет длительность 200 фс и энергию (а) (1) 10 нДж, (2) 16 нДж, (3) 25 нДж и (4) 40 нДж; (б) (1) 20 нДж, (2) 30 нДж и (3) 40 нДж. Длина волокна составляет 12 см. Линия 5 на рис. 3.3.7а и линия 4 на рис. 3.3.7б показывают рассогласование постоянной распространения  $\delta$  между солитоном с центральной длиной волны 1,25 мкм и направляемыми фундаментальной модой МС волокна дисперсионными волнами. Горизонтальная пунктирная линия на рис. 3.3.7б представляет средний максимальный уровень, определенный как полусумма амплитуд пиков с центрами на 580 и 860 нм;  $\delta\omega_{20\%}$  — это ширина полосы выходного излучения, измеренная на уровне 20% от среднего максимума.

Другой тип МС волокна в экспериментах был изготовлен из высоконелинейного стекла ТФ10 [189,194], для которого нелинейно-оптическая добавка к показателю преломления на порядок больше по сравнению с кварцем, что позволяет ожидать усиление нелинейно-оптических эффектов в таких волокнах по сравнению с волокнами, изготовленными из кварца с аналогичной структурой. Материальная дисперсия ТФ10 также заметно отличается от материальной дисперсии кварца, в частности, длина волны, соответствующая нулевому значению дисперсии групповой скорости сдвинута в длинноволновую область спектра в район 2 мкм. Оболочка волокна из мягкого стекла ТФ10 состояла из капилляров с периодом структуры порядка 1.4 мкм и диаметром отверстий порядка 1.2 мкм. Однако, по сравнению со стандартной периодической архитектурой микроструктурированных волокон, наше волокно имело ряд из шести дополнительных отверстий с диаметром порядка 0.5 мкм, гексагонально примыкающих непосредственно к сердцевине волокна, т.е. снова использовались элементы наноструктурирования. Эти дополнительные отверстия играют роль в формировании дисперсии волокна, что, в частности, обеспечивает выполнения условий фазового согласования для испускания солитонами, формируемыми при распространении фемтосекундных импульсов в сердцевине волокна, спектральных компонент черенковского излучения (рис. 3.3.8).

На основании проведенного численного анализа было найдено распределение поля для различных мод в волокне, рассчитаны дисперсионные профили для различных мод, а также коэффициенты нелинейности. Величина коэффициента нелинейности для основной моды составила значение  $1300 \text{ (Вт}\cdot\text{км)}^{-1}$  для длины волны 800 нм и  $700 \text{ (Вт}\cdot\text{км)}^{-1}$  для длины

волны 1250 нм. Для основной моды используемого волокна точка с нулевой дисперсией групповой скорости располагалась в районе длины волн равной 1.19 мкм, т.е. в непосредственной близости от центральной длины волны излучения форстеритового лазера. Это создает благоприятные условия для спектрального преобразования частоты излучения форстеритового лазера, что позволило эффективно преобразовывать излучение неусиленного фемтосекундного хром-форстеритового лазера за счет эффектов солитонного сдвига частоты и четырехволнового смешения в район длин волн от 540 до 1000 нм (рис. 3.3.8). Величина потерь на длине волны 1.25 мкм была оценена как 12дБ/км, что позволило в данном случае использовать для накачки фемтосекундный генератор на кристалле хром-форстерита.

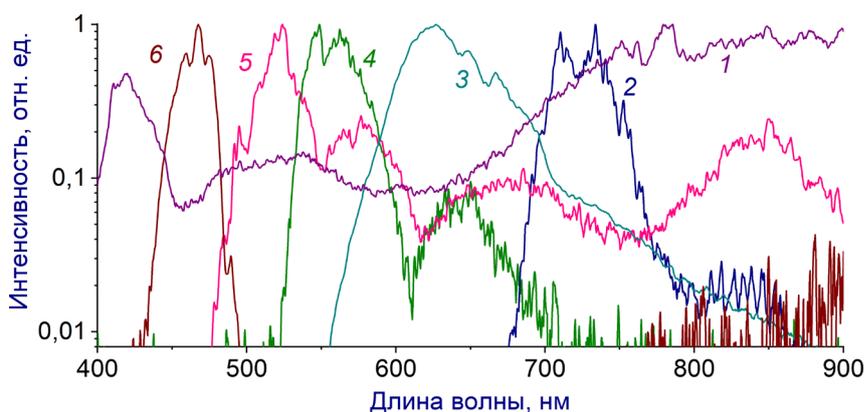


Рис.3.3.8. Спектры интенсивности на выходе МС волокна, которые изменяются за счет изменения дисперсионных свойств волокна из стекла ТФ10. Смещение длины волны  $\Delta$  составляет 50 нм (1), 110 нм (2), 150 нм (3), 190 нм (4), 220 нм (5) и 300 нм (6).

Фазовое согласование между солитоном, создаваемым входным лазерным импульсом, и дисперсионной волной, которое определяет частоту доминирующих пиков в выходных спектрах МС волокна, контролируется дисперсией волокна. Профили ДГС волноводных мод были модифицированы путем масштабирования геометрических размеров волокна без изменения типа структуры, показанной на рис. 3.3.6в. Диаметр сердцевин МС волокон, изготовленных для этих экспериментов, варьировался от 0.9 до 3.8 мкм. На рисунке 3.3.8 показаны спектры смещенного в синюю сторону излучения, скорректированные путем изменения волокна для изменения смещения  $\Delta = \lambda_0 - \lambda_z$  между центральной длиной волны входного лазерного поля  $\lambda_0$  и длиной волны нулевой ДГС  $\lambda_z$ . При неизменной длине МС волокна (10 см) большие синие сдвиги достигаются за счет увеличения смещения  $\Delta$  (ср. кривые 1 - 6 на рис. 3.3.8). Мощность входного лазерного поля должна быть увеличена для большего  $\Delta$  в этих экспериментах, чтобы сохранить амплитуду сигнала с синим сдвигом постоянной. Экспериментально было показано, что благодаря возможности управления дисперсией МС волокна из мягкого стекла ТФ10 могут служить в качестве эффективных генераторов излучения в видимой области спектра в случае накачки фемтосекундными импульсами от Cr: форстеритового генератора, обеспечивая перестраиваемое излучение в диапазоне длин волн от 400 до 900 нм.

Как мы видели, управление дисперсией МС волноводов открывает широкие возможности управления нелинейно-оптическими процессами при распространении импульсов накачки. В заключении данного раздела приведено краткое обсуждение совместных экспериментов с международным лазерным центром Братиславы (МЛЦБ) по исследованию преобразования излучения в МС световодах с достаточно необычной структурой [195]. В этой работе было исследовано формирование суперконтинуума с управляемой поляризацией в изготовленном из многокомпонентного стекла двухсердцевинном МС волокне с квадратной решеткой (рис.3.3.9а). В качестве накачки также использовалась фемтосекундная лазерная система на кристалле хром-форстерита. Импульсы с длительностью порядка 100 фемтосекунд и длиной волны 1250 нм попадали в область аномальной дисперсии МС волокна, что приводило к реализации описанного выше сценария формирования солитонов, солитонного самосдвига частоты и излучения дисперсионных волн. Раздельный спектральный анализ излучения для каждого из двух сердечников и регистрации профиля моды поля, позволил подробно исследовать процессы формирования излучения в видимой области спектра в зависимости от энергии и направления поляризации импульсов накачки. Увеличение входной энергии позволяло контролировать длину волны формируемых спектральных линий в видимой области спектра, а изменение поляризации накачки влияло на спектральную зависимость распределения света между сердечниками.

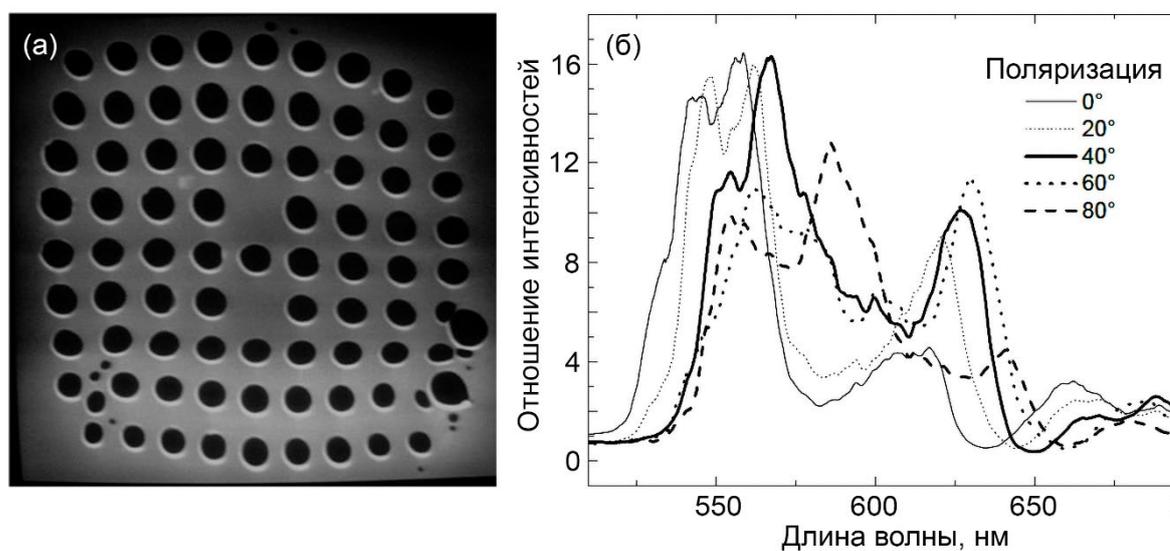


Рис.3.3.9. а) Изображение двухсердцевинного волокна с квадратной решеткой, изготовленного из многокомпонентного стекла [195]; б) зависимости, показывающие влияние направления входной поляризации относительно горизонтальной оси на изображении волокна на форму спектра суперконтинуума на выходе из волокна.

Излучение в видимом диапазоне формируется в процессе генерации солитонами дисперсионной волны с уже отмеченными тенденциями синего смещения, зависящими от энергии возбуждения, что предполагает нелинейный эффект изменения условий фазового согласования. Общая спектральная ширина формируемого излучения приближается к двум

октавам при энергии входных импульсов порядка 10 нДж в волокне длиной 6 см. Использованное нами волокно показало значительную эффективную оптическую связь между сердцевинами. В экспериментах была обеспечена раздельная регистрация спектральных особенностей видимого излучения из каждой из двух сердцевинок волокна, показавшая существенные различия между спектрами. Дополнительная возможность контроля характера нелинейно-оптического взаимодействия была связана с возможностью контроля спектрального распределения интенсивности между двумя сердечниками путем поворота направления поляризации возбуждения, что обеспечивает различные коэффициенты связи между сердцевинами (рис.3.3.9б), и нашло свое подтверждение при теоретическом анализе подобного коэффициента связи [195]. Регистрация профиля поля на выходе из волокна показала возможность перераспределения почти 50% излучения в видимой области. Более того, эффекты нелинейно-оптического преобразования в двухсердцевинном волокне усиливают эффект связи, что обеспечивает потенциал применения для направленного разветвителя с контролем поляризации, сопровождаемого нелинейным преобразованием частоты.

Таким образом, было показано, что использование высоконелинейных материалов, активное формирование частотного профиля дисперсии и пространственного профиля поля в собственных модах МС световодов с помощью наноструктурирования открывает уникальные возможности для достижения высокоточного баланса дисперсии в широком спектральном диапазоне, обеспечивающие высокоэффективное преобразование частоты фемтосекундных лазерных импульсов в видимую область спектра в процессе генерации суперконтинуума, излучения дисперсионных волн и генерации третьей оптической гармоники.

### **§ 3.4. Управление спектральным и временным профилем импульсов в процессе солитонного самосдвига частоты.**

Анализ особенностей солитонной динамики сверхкоротких световых импульсов в микроструктурированных световодах с высокой нелинейностью позволяет указать пути формирования импульсов электромагнитного излучения с длительностью, близкой к периоду светового поля. Возможность генерации контрастных ультракоротких световых импульсов определяется не только шириной спектра, но также гладким профилем спектральной фазы электромагнитного поля - условие, которое далеко не всегда реализуется при генерации суперконтинуума. Нами была представлена другая методика управления и формирования профиля сверхкоротких импульсов и синтеза импульсов длительностью в несколько циклов поля с помощью когерентного сложения сдвинутых по частоте солитонов, сгенерированных в высоконелинейном волокне [196]. Сдвинутые по частоте солитоны при изменении параметров экспериментов (длины волокна или пиковой мощности вводимых импульсов) могут пересекаться по спектру и формировать устойчивую интерференционную картину с варьируемой частотой биений (рис.3.4.1аб). При этом видность интерференционной картины связана с постоянством спектрального профиля

отдельных солитонов  $\varphi_m$ , где  $m$  - номер солитона, что дает принципиальные возможности когерентного сложения и формирования импульсов с длительностью короче длительности отдельного солитона, что, по существу, отражает принцип синхронизации мод при формировании сверхкоротких волновых форм. При использовании модулятора света, ступенчатым образом, меняющим групповую задержку (рис. 3.4.1а) для трех солитонов, что и определяет их полную спектральную ширину и возможность формирования импульса с длительностью порядка 24 фемтосекунд.

Для проверки этой методики формирования импульсов с длительностью в несколько циклов поля было проведено численное моделирование нелинейно-оптических эффектов, возникающих при распространении импульсов накачки в волокнах [196] на основе решения обобщенного нелинейного уравнения Шредингера (НУШ) [1]. В расчетах рассматривались сценарии использования Ti:Sapphire и хром-форстеритового генератора. В случае последнего использовались следующие параметры - длина волны 1250 нм и длительность импульса 100 фс. Характеристики световода соответствовали используемым в экспериментах микроструктурированным волокнам с увеличенной сердцевиной и  $A_{eff} = 20$  мкм<sup>2</sup> и нулем дисперсии групповых скоростей  $\lambda_0 \approx 1000$  нм. При проведении расчета выбирались дисперсионные коэффициенты высшего порядка  $\beta_m = (\partial^m \beta / \partial \omega^m)|_{\lambda_0}$ :  $\beta_3 = 7.6 \cdot 10^{-5}$  пс<sup>3</sup>/м,  $\beta_4 = -9.4 \cdot 10^{-8}$  пс<sup>4</sup>/м,  $\beta_5 = 2.5 \cdot 10^{-10}$  пс<sup>5</sup>/м,  $\beta_6 = -1.2 \cdot 10^{-12}$  пс<sup>6</sup>/м, что позволило наблюдать описанный параграфе 3.1 сценарий генерации и длинноволнового смещения в процессе ССЧ нескольких солитонов.

В условиях численных экспериментов можно задать более высокую относительно экспериментальных реализаций энергию импульсов накачки 30 нДж. При их распространении в отрезке волокна длиной 5 см волокна, можно наблюдать в спектре четкие интерференционные полосы, которые формируются пятью сдвигающимися солитонами (значения энергий, длительностей и временная задержка между ними подробно представлена в [196]).

Пятиступенчатый профиль дисперсии групповой задержки рис.3.4.1б позволяет в результате когерентного сложения сформировать световой импульс (рис.3.4.1в) с энергией 11,7 нДж и длительностью порядка  $\approx 10$  фс по полувысоте. Таким образом, мы показали, что сдвинутые по частоте солитоны, генерируемые в высоконелинейном волокне, при подходящей групповой задержке могут когерентно складываться и синтезировать импульсы в несколько циклов светового поля. Предложенный метод синтеза коротких импульсов может быть масштабирован до больших энергий светового поля с помощью использования солитонного самосдвига частоты в полых ФК волокнах [73,197]. В этом контексте особенно интересно исследовать солитонную динамику сверхкоротких импульсов высокой пиковой мощности в полых ФК волокнах с решеткой типа кагоме, обеспечивающих широкополосное распространение излучения в видимом и инфракрасном спектральном диапазонах.

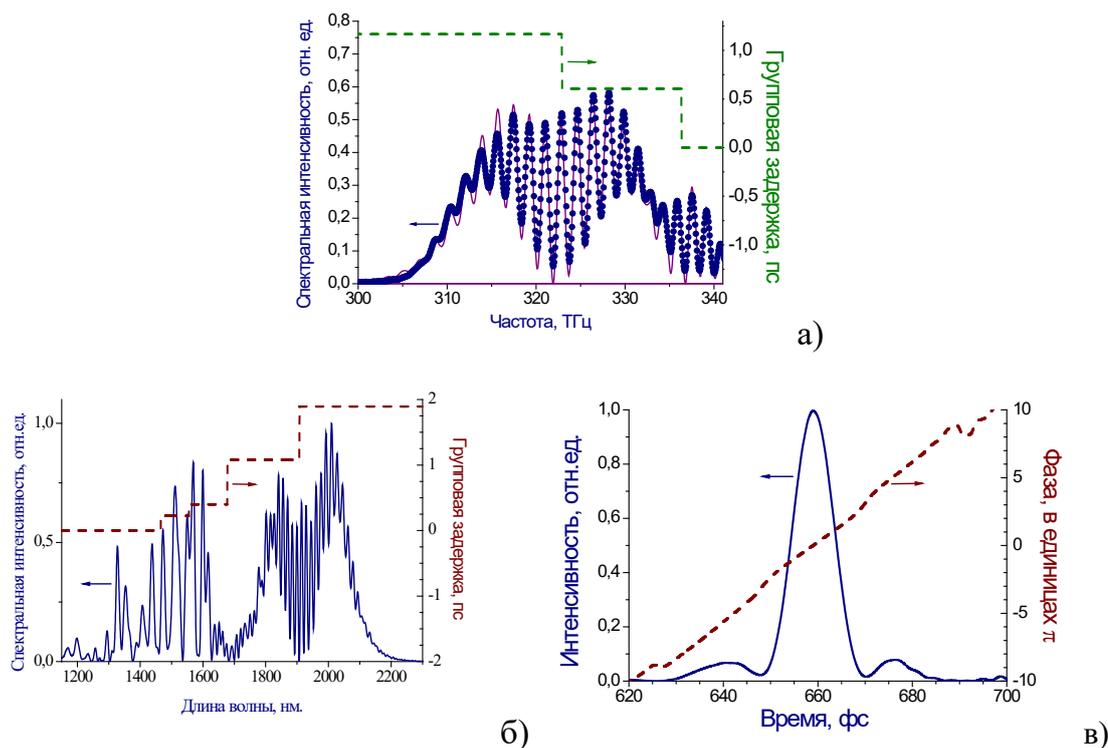


Рис.3.4.1. (а) Экспериментальное наблюдение интерференционной картины и результаты теоретического моделирования при условии формирования трех солитонов на выходе МС волокна при накачке импульсами на длине волны 1250 нм. (б) Результаты численного моделирования для импульсов накачки с длительностью импульса 100 фс и энергией 30 нДж прошедших 5 см МС волокна; здесь же пунктиром представлен профиль групповой задержки, подходящей для сжатия пяти солитонов. (в) временная огибающая и фаза импульса, получившегося после такой компенсации групповой задержки.

С другой стороны, для многих биомедицинских, спектроскопических и технологических приложений параметры лазерного излучения должны быть точно согласованы по центральной длине волны и ширине спектра с параметрами исследуемого объекта. Такие задачи, как уменьшение нерезонансного фона в спектроскопии комбинационного рассеяния света [198–200], реализация оптимальных условий усиления излучения источников перестраиваемых лазерных импульсов, включая волоконные лазеры [201], или неискажающее передача оптической информации через телекоммуникационные волоконные сети [202], часто требуют спектрального сужения световых импульсов одновременно с возможностью перестройки их центральной частоты. Как было показано в работах [203–205] спектральное сужение сверхкоротких лазерных импульсов может быть реализовано в оптических волокнах с использованием фазовой самомодуляции отрицательно chirпированных входных импульсов накачки. Этот метод спектральной компрессии был осуществлен как в микроструктурированных волокнах с твердотельной сердцевиной [206,207], так и в полых фотонно-кристаллических волокнах [208].

Солитон поддерживает свою форму за счет баланса между нелинейностью и дисперсией. Действие нелинейности контролируется пиковой мощностью солитона  $P$  и коэффициентом нелинейности волокна  $\gamma$ . Дисперсией можно управлять с помощью

параметров длительности импульса  $\tau$  и дисперсионным коэффициентом волокна  $\beta_2$  второго порядка на центральной частоте солитона. Для точной компенсации нелинейности и дисперсии в идеальном фундаментальном солитоне выполняется баланс между этими параметрами  $\gamma P = |\beta_2| \tau_0^{-2}$ . Однако в случае солитонного самосдвига частоты эти параметры не постоянны, а адиабатически изменяются по мере распространения солитона по волноводу. Центральная частота солитона становится локальным параметром  $\nu_s = \nu_s(z)$  и, в свою очередь, нелинейность и волконная дисперсия тоже становятся локальными в каждой точке  $z$  распространения импульса. Инвариантом движения является число фотонов солитона

$$C = W_s / \nu_s = 2P\tau_0 / \nu_s = \frac{|\beta_2(\nu_s)|}{\tau_0 \gamma(\nu_s) \nu_s}, \quad (3.7)$$

т.к. при рамановском рассеянии оно остается постоянным, а не энергия импульса  $W_s$  [164]. При солитонном сдвиге частоты его длительность увеличивается  $\tau_0 \propto [\gamma(\nu_s)\nu_s]^{-1} |\beta_2(\nu_s)|$ , и, вследствие отсутствия частотной модуляции (чирпа) фундаментального солитона, его ширина спектра сужается. Такой эффект наблюдался ранее с телекоммуникационными волокнами [209]. Однако стандартные волокна не позволяют в широких пределах контролировать ширину спектра сдвинутого по частоте солитона. Возможность контролировать дисперсионный профиль есть в микроструктурированных световодах. В настоящей работе показано, что за счет солитонного сдвига частоты и управления дисперсионным профилем и нелинейностью световода можно управлять не только центральной частотой, но и спектральной шириной смещенного по частоте солитона, что открывает возможность развития практических и технологичных волоконных источников [210].

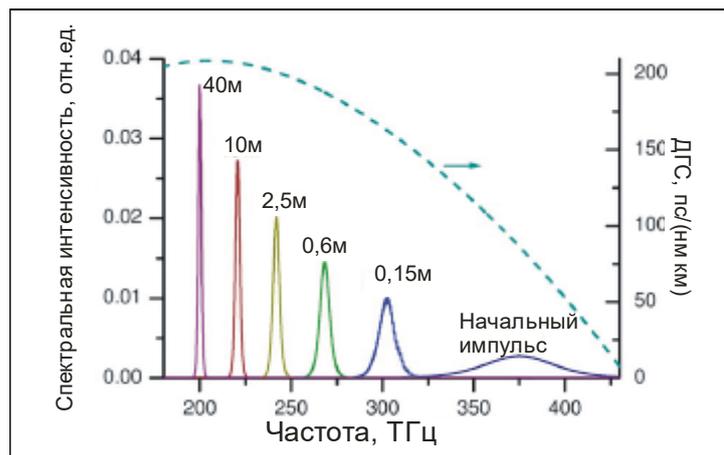


Рис.3.4.2 Результаты моделирования сужения спектра солитона в МС волокне. Штриховой линией показан спектральный профиль дисперсии волокна. Начальный импульс имеет энергию 150 пДж, длительность 8 фс, центральную длину волны 800 нм. Спектр солитонов показан в разных точках распространения ( $z = 0.15, 0.6, 2.5, 10$  и  $40$  м).

На рис. 3.4.2. показано моделирование (на основе численного решения ОНУШ) сужения спектра солитона в режиме адиабатического ССЧ в высоконелинейном МС

волокне [211]. Для лазерного импульса с начальной длительностью 8 фс и центральной длиной волны 800 нм, распространяющегося по кварцевому волокну с профилем дисперсии групповых скоростей (ДГС), показанным пунктирной кривой на рис.3.4.2. Энергия начального импульса на входе в волокно составляла 150 пДж, а коэффициент нелинейности волокна на начальной длине волны импульса 800 нм составлял  $\gamma \approx 160 \text{Вт}^{-1} \text{км}^{-1}$ . Возможность формирования сдвигающихся по частоте солитонов в выбранном волокне определяется аномальной дисперсией волокна на центральной частоте входного импульса. Одновременное уменьшение частоты, уменьшение коэффициента нелинейности и увеличение дисперсии сдвигающегося в «красную» область солитона вызывают его спектральное сужение, которое и показано на рис.3.4.2. При длине волокна 40 м коэффициент сужения спектра солитона  $\eta$ , определяемый как отношение спектральной ширины начального импульса к спектральной ширине конечного солитона, составил  $\eta = 26$ .

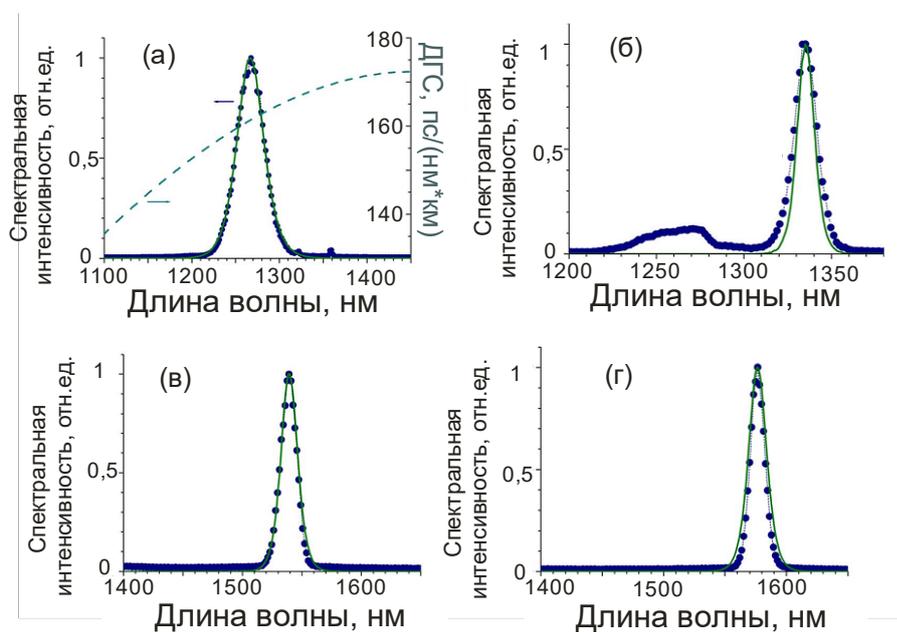


Рис. 3.4.3 Экспериментальные и рассчитанные спектры лазерного импульса на входе (а) и выходе (б) – (г) выходе МС волокна. Энергия солитона на выходе волокна составляла (б) 45 пДж (в) 75 пДж и (г) 85 пДж. Профиль дисперсии групповых скоростей МС волокна показан пунктирной кривой на панели (а).

Эксперименты были проведены на фемтосекундной лазерной системе на основе кристалла  $\text{Cr}^{4+}:\text{forsterite}$  [211]. Импульсы с длительностью 35 фс и энергией до 4 нДж заводились с эффективностью 20% в кварцевое высоконелинейное МС волокно (эффективная площадью моды  $1.9 \text{ мкм}^2$ ) длиной 150 см и обладающее и профилем дисперсии групповых скоростей (ДГС), показанным пунктирной кривой на рис 3.4.3а. Как видно на рис. 3.4.3б, в выходном спектре из МС волокна наблюдается смещенный до длины волны 1335 нм солитон, имеющий энергию около 45 пДж и длительностью 140 фс. Результаты численного решения ОНУШ (сплошная кривая на рис. 3.4.3) отлично согласуются с экспериментальными выходными спектрами солитонов, показанными сплошными кружками, и подтверждают, что наблюдаемое в экспериментах сужение

спектра солитона вызвано изменениями в локальных параметрах центральной частоты, нелинейности и дисперсии смещающегося в длинноволновую область солитона. Максимальный коэффициент спектрального сужения составил  $\eta = 6.5$  для солитона на выходе волокна с центральной длиной волны около 1580 нм и с энергией 85 пДж (при энергии на входе в волокно 430 пДж).

Традиционно для сужения спектра используется метод спектральной фильтрации. В отличие от неё сужение спектра за счет ССЧ позволяет одновременно управлять смещением центральной частоты солитона и сужением его спектра. К тому же, несмотря на имеющиеся энергетические потери в обоих методах, потери при пассивной фильтрации при уменьшении спектральной ширины излучения  $\Delta\nu_1$  с энергией  $W_1$  до спектральной ширины  $\Delta\nu_2$  с энергией  $W_2$ , составляют  $\eta_F = W_1/W_2 \approx (\Delta\nu_1/\Delta\nu_2)_F$ . Расчитаем теперь аналогичный параметр для спектрального сужения, вызванного ССЧ  $\eta_{ССЧ} = W'_1/W'_2$ , где  $W'_1$  - энергия входящего в волокно импульса, а  $W'_2$  - энергия сжатого по спектру и смещенного по центральной частоте излучения на выходе волокна.

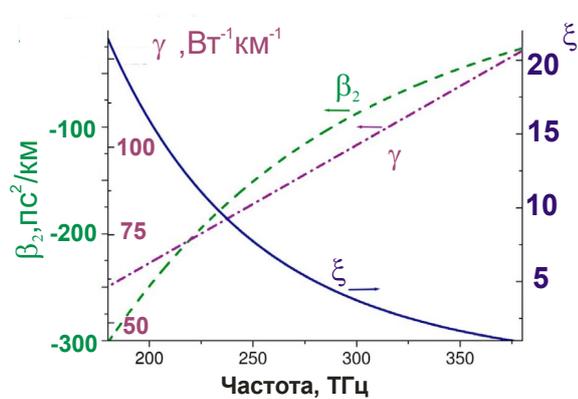


Рис. 3.4.4 Спектральные профили коэффициента дисперсии второго порядка  $\beta_2$  (пунктирная кривая), коэффициента нелинейности  $\gamma$  (штрихпунктирная кривая) и коэффициент вызванной ССЧ спектральной компрессии (сплошная кривая) для высоконелинейного МС волокна. Центральная длина волны лазерного импульса 800 нм.

Отношение  $\theta_{ССЧ} = (\Delta\nu_1/\Delta\nu_2)_{ССЧ}$  можно вычислить, используя инвариант (3.7) сдвига частоты солитона для начального и выходного импульса  $\theta_{ССЧ} \approx \xi \eta_{ССЧ}$ , где  $\xi \equiv \xi(\nu_1, \nu_2) \approx [\gamma(\nu_1)/\gamma(\nu_2)][\beta(\nu_2)/\beta(\nu_1)]$ . Если коэффициент сужения спектра и начальная энергия импульса одинаковые, то энергия после сужения спектра методом ССЧ будет в  $\xi$  раз больше энергии импульса, полученного методом пассивной спектральной фильтрации. На рис. 3.4.4 приведен коэффициент  $\xi$  как функция частоты в выбранном высоконелинейном МС волкне. Максимальное значение  $\xi$  может достигать 20 при смещении центральной длины волны импульса от 800 до 1500 нм, что говорит о двадцатикратном энергетическом преимуществе метода сужения спектра солитонов при помощи ССЧ.

Таким образом, мы показали, что сдвинутые по частоте солитоны, генерируемые в высоконелинейном МС волкне могут с одной стороны, синтезировать импульсы в несколько циклов светового поля, а с другой стороны возможна спектральная компрессия

ультракоротких лазерных импульсов. Такое разнообразие применений делает микроструктурированные световоды удобной платформой для целей нелинейной спектроскопии, оптических информационных технологий и создания волоконных элементов мощных лазерных систем.

### **§3.5. Спектрально-временные преобразования мощных фемтосекундных импульсов в диапазоне 1.1-1.4 мкм в микроструктурированных волокнах с большой площадью сердцевины.**

В этом разделе рассмотрим возможность получения перестраиваемых фемтосекундных импульсов в ближнем инфракрасном диапазоне с мегаваттной мощностью с использованием микроструктурированных волноводов со сплошной сердцевиной и большой площадью сердцевины. Методика заключается в осуществлении генерации суперконтинуума в многосолитонном режиме с последующей компрессией в короткий импульс. В отличие от классических световодов с большой площадью моды и ступенчатым профилем показателя преломления, МС световоды с большой площадью моды позволяют поддерживать одномодовое распространение излучения, что в свою очередь, позволяет передавать, усиливать и преобразовывать высокоэнергетические лазерные импульсы без ухудшения их пространственного профиля. Благодаря этим свойствам, МС-световоды с большой площадью моды широко применяются в мощных волоконных лазерных системах, а также для спектрального уширения и преобразования лазерных импульсов.

В экспериментах было использовано несколько образцов МС световодов с различными диаметрами воздушных отверстий  $d$  и расстояниями между ними  $L$ . Несмотря на то, что для каждого из образцов эти параметры не обеспечивают строгого одномодового режима распространения, значительная расстройка постоянных распространения делает моды в таких световодах более устойчивыми и уменьшает вероятность обмена энергией между ними. Дисперсия групповой скорости в МС волноводах с большой площадью моды оказывается значительно слабее по сравнению с дисперсией материала. Следовательно, нуль дисперсии групповых скоростей (ДГС) этих волноводов достаточно близок к нулю ДГС кварцевого стекла, из которого изготовлены световоды, что создает принципиальные сложности для генерации широкополосного излучения при накачке излучением Ti:Sapphire лазеров с центральной длиной волны 800 нм, в то же время сохраняются благоприятные условия использования Cr:forsterite источников.

Начальные эксперименты проводились с лазерной системой на кристалле Cr:forsterite и МС световодом с сердцевиной, окруженной четырьмя рядами отверстий диаметром около 4 мкм и расстоянием между ними около 10 мкм [212]. Диаметр сердцевины составил 22 мкм, что соответствует эффективной площади моды в 380 мкм<sup>2</sup> (рис.3.5.1.), а нелинейный коэффициент составлял  $\gamma \approx 0.7 \text{ Вт}^{-1}\text{км}^{-1}$ . Для снижения влияния самофокусировки в оптическом волокне, лазерные импульсы были предварительно растянуты до 250 фс за счет расстройки временного компрессора в регенеративном

Cr:forsterite усилителе. При ограничении энергии заводимых в волокно импульсов до 3.2 мкДж, поток энергии не превышал 0,8 Дж/см<sup>2</sup>, что было ниже порога пробоя стекла. Энергия основной моды оценивалась на уровне 1,3 мкДж, что соответствовало пиковой мощности около 4 МВт, что было несколько ниже порога самофокусировки для кварца.

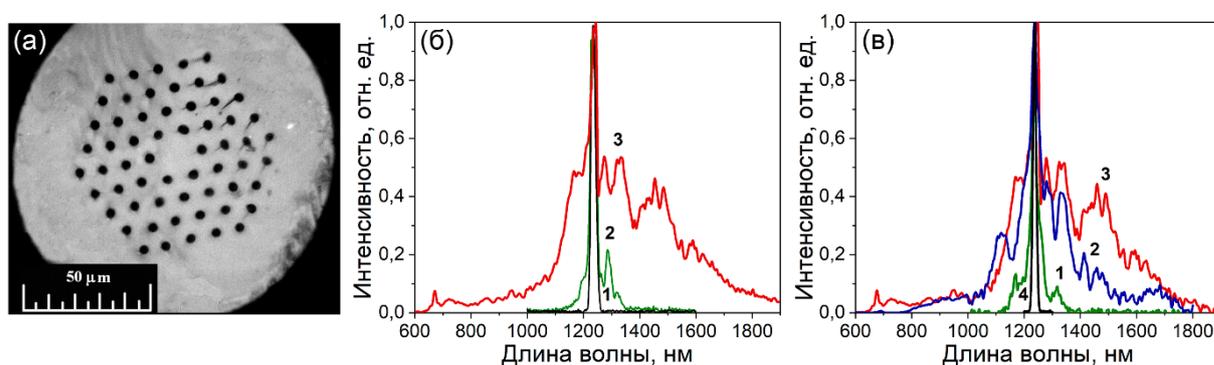


Рис 3.5.1 (а) Фотография поперечного среза МС волокна с большой площадью моды. Диаметр центрального канала 22 мкм, период структуры 14 мкм. (б) Спектры широкополосного излучения на выходе из волокна длиной 20 см в зависимости от энергии: (1) 0.4 мкДж; (2) 1.1 мкДж; (3) 1.3 мкДж; спектр входного импульса (4). (в) Спектр излучения лазера на кристалле хром-форстерита (1); спектр импульсов с энергией 8 мкДж, после прохождения кварцевой пластины толщиной 2 см (2); трансформация спектра импульсов с энергией 1.3 мкДж в МС волокне.

Спектры импульсов, прошедших через отрезок волокна длиной 20 сантиметров представлены на рис. 3.5.1б для разных уровней энергии накачки. Здесь можно наблюдать появление стоксовых и антистоксовых компонент, которые располагаются в областях аномальной и нормальной дисперсии, соответственно. Предположительно эти компоненты формировались вследствие модуляционной неустойчивости импульсов накачки, чему способствовало близость их спектра к нулю дисперсии групповой скорости (ДГС) кварцевого стекла. По мере увеличения энергии входного излучения происходит уширение изолированных спектральных компонент, которые начинают сливаться, образуя сверхширокополосное излучение. Длинноволновая часть спектра простирается до 1900 нм (кривая 3), что является проявлением солитонного самосдвига частоты. В то же время в коротковолновой части спектра суперконтинуум простирается вплоть до длины волны около 650 нм.

Максимальная энергия суперконтинуума на выходе из МС волокна длиной 20 см составила порядка 1 мкДж, из которых в видимой части спектра содержалось порядка 15%. Для сравнения эффективности преобразования излучения в суперконтинуум в волокне и в объеме материала были проведены эксперименты по генерации суперконтинуума в объеме плоскопараллельной кварцевой пластины толщиной 2 см. Спектр импульсов с энергией 8 мкДж после прохождения такой пластины представлен на рис. 3.5.1в (кривая 2). Для сравнения на том же графике показан спектр излучения, прошедшего через МС волокно при максимальной энергии на входе 1.3 мкДж (кривая 3). Спектр на выходе из волокна оказывается значительно шире, что является ожидаемым результатом.

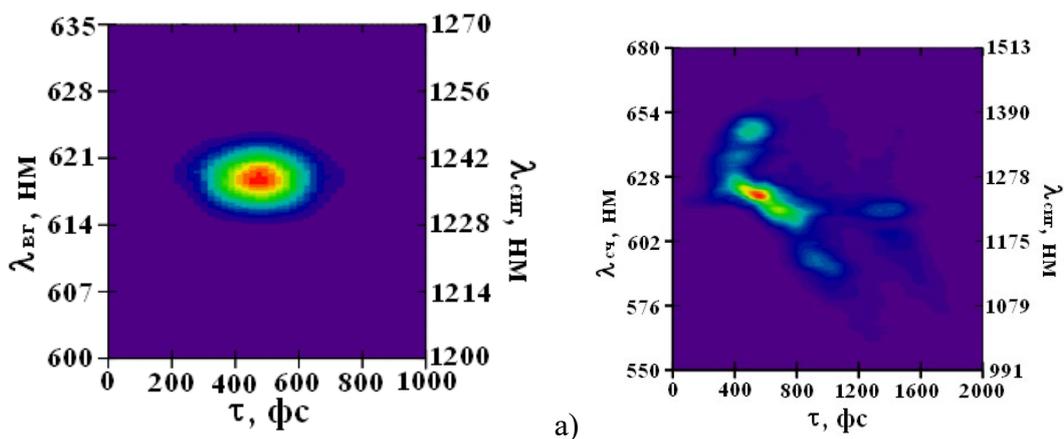


Рис 3.5.2 (а) Карта FROG входного импульса. (б) Экспериментальная спектрограмма импульса прошедшего через фотонно-кристаллическое волокно. По левой оси отложены длины волн сигнала суммарной частоты, по правой оси – соответствующие длины волн (опорный импульс в схеме XFROG имел центральную длину волны 1235 нм).

Для более глубокого анализа особенностей спектрально-временных преобразований мы использовали методику XFROG (рис. 3.5.2б). На спектрохронограмме отчетливо видны два солитона с центральными длинами волн 1300 нм и 1350 нм с временной задержкой между ними около 50 фс, что хорошо согласуется с оценкой их группового разбегания определяемого дисперсионными характеристики кварца. XFROG карты позволили оценить энергии и длительности этих солитонов, которые составили 100 нДж/70 фс для первого и 150 нДж/46 фс для второго. В целом наши результаты демонстрируют, что кварцевое МС волокно с большим диаметром сердцевины может служить эффективным преобразователем высокоэнергетического излучения хром-форстеритового лазера в широкополосное излучение, охватывающее длины волн от 650 нм до 1900 нм. При этом общая энергия суперконтинуума на выходе из волокна достигает микроджоулевого уровня, что значительно превышает показатели, достигаемые при использовании волокон с сердцевиной микронного масштаба.

Для исследования особенностей процессов преобразования излучения в подобных волокнах с накачкой отстроенной от нуля дисперсии кварцевого стекла (1.25), мы использовали Ti:sapphire фемтосекундную лазерную систему с параметрическим усилителем, позволяющим получить перестраиваемые по частоте импульсы в диапазоне от 1100 до 1500 нм, длительностью 70 – 190 фс и энергией до 50 мкДж. В представленных ниже экспериментах в МС световоде с площадью сердцевины около  $710 \text{ мкм}^2$  осуществлено преобразование микроджоулевых фемтосекундных лазерных импульсов с центральной длиной волны 1.39 мкм.

Энергия вводимых в МС-световод лазерных импульсов варьировалась в диапазоне от 0.01 до 2.0 мкДж. Распространение импульсов с такими энергиями в режиме аномальной дисперсии сопровождается формированием множественных солитонов, сдвигающихся в низкочастотную область. Образующиеся в результате такой спектрально-временной динамики поля солитоны легко идентифицируются как ярко выраженные пики в спектрах выходного излучения (рис. 3.5.3а).

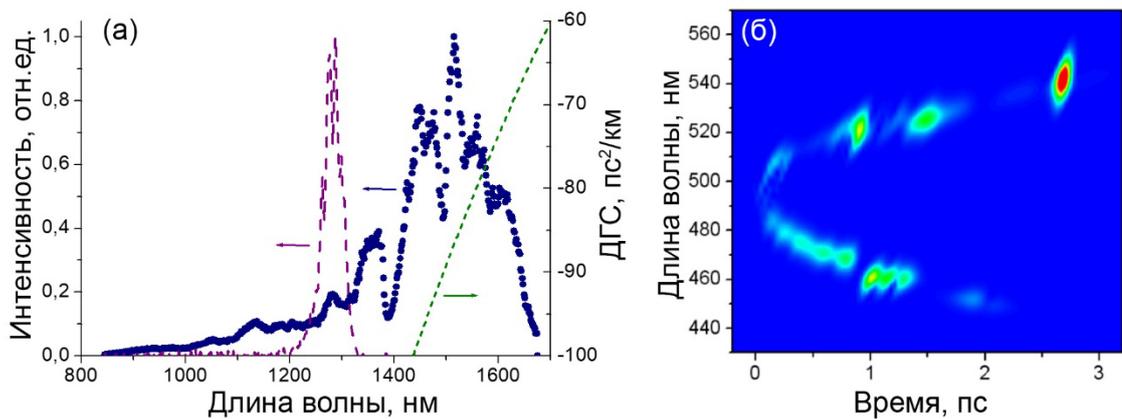


Рис. 3.5.3. Спектр лазерного импульса на входе в МС-световод (штриховая линия), спектр излучения на выходе МС-световода (точки), зависимость дисперсии групповой скорости (ДГС) от длины волны для пластины теллуричного стекла, используемой для компрессии импульсов (пунктирная линия) (а). Спектрохронограмма сигнала, формируемого на выходе МС-световода, начальная энергия импульса на входе в световод 100 нДж (б).

Результаты теоретического анализа, представленные в виде XFROG спектрохронограмм, выходящего из МС световода излучения (рис. 3.5.3б), иллюстрируют возможность преобразования лазерных импульсов с начальной энергией порядка 100 нДж в солитоны с энергией свыше 10 нДж, длительностью около 50 фс и центральной длиной волны около 1670 нм на выходе МС-световода длиной 60 см.

Излучение дисперсионных волн приводит к формированию высокочастотного крыла в спектре выходного сигнала (рис. 3.5.3б, 3.5.4а). По мере увеличения энергии вводимых в световод лазерных импульсов число солитонов растет, а спектры отдельных солитонов сливаются, что приводит к формированию широкого непрерывного спектра излучения в видимой и ИК-области (рис. 3.5.4б). В частности, как следует из результатов экспериментальных измерений, представленных на рис. 3.5.3а и 3.5.4б, нелинейно-оптическая трансформация лазерных импульсов в МС-световоде в этом режиме приводит к генерации интенсивного излучения с широким непрерывным спектром в области длин волн от 800 до 2200 нм.

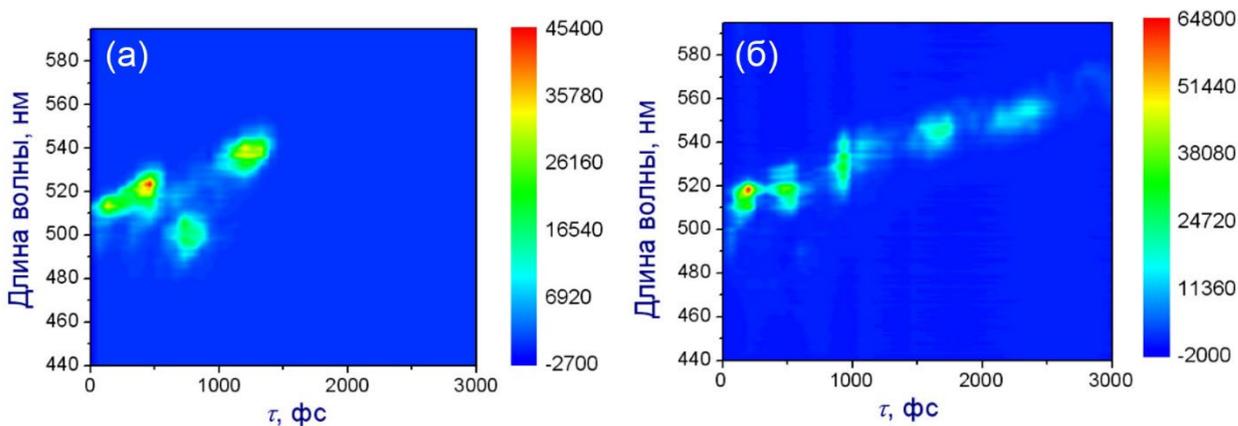


Рис. 3.5.4. Спектрохронограммы поля на выходе МС световода длиной 18 см, полученные с помощью техники XFROG, для входных лазерных импульсов с начальной центральной длиной волны 1390 нм и энергией 0.2 мкДж (а) и 1.0 мкДж (б).

Временная структура поля при этом оказывается достаточно сложной и не позволяет предложить простую схему временной компрессии, которая позволила бы получить уединенный высококонтрастный сверхкороткий световой импульс высокой пиковой мощности. Однако оказывается возможным осуществить эффективную временную компрессию для определенной части светового поля, позволяющую сформировать импульсы достаточно высокой пиковой мощности. В наших экспериментах для этой цели использовалась пластина теллуричного стекла толщиной 8 см, обеспечивающая частичную компенсацию chirpa поля, формируемого в МС-световоде длиной 60 см. Вносимая стеклянной пластиной дисперсия групповой задержки показана пунктирной линией на рис. 3.5.3а. Частичная компенсация chirpa, как следует из представленной на рис. 3.5.5 XFROG-спектрохронограммы, преобразует излучение суперконтинуума в последовательность световых импульсов, наиболее мощный из которых имеет центральную длину волны 1520, длительность 210 фс, пиковую мощность около 1 МВт и содержит 20% полной энергии выходного излучения. В целом реализованная методика демонстрирует возможность управления параметрами последовательности генерируемых изолированных импульсов.

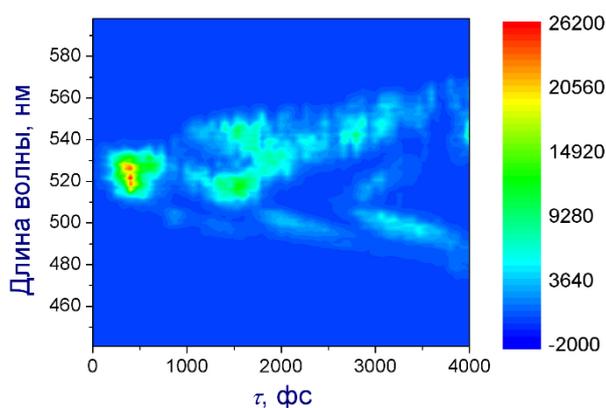


Рис. 3.5.5. Спектрохронограмма светового поля, преобразованного в МС-световоде длиной 60 фс, после компенсации chirpa с помощью пластины теллуричного стекла. Штриховым контуром показан импульс с центральной длиной волны 1520 нм длительностью 210 фс и пиковой мощностью 1 МВт.

Один из наиболее важных факторов, ограничивающих пиковую мощность формируемых в МС световодах лазерных импульсов, связан с пространственным самовоздействием, приводящим к возбуждению высших волноводных мод. Как упоминалось выше, использованный в экспериментах МС-световод является многомодовым. Однако, при низкой пиковой мощности лазерного излучения легко удается возбудить только основную моду этого световода. Обмен энергией между модами световода в режиме низкой пиковой мощности на длинах световода менее 1 м минимален. При повышении пиковой мощности лазерных импульсов  $P$  до уровня, приблизительно определяемого условием  $P \approx |\Delta\beta|/\gamma\tau$ , где  $\Delta\beta$  - расстройка постоянных распространения собственных мод световода,  $\gamma$  - коэффициент нелинейности, возникает сильная параметрическая связь собственных мод световода. Возбуждающиеся при этом высшие

моды характеризуются значительно более высоким уровнем потерь. Условие  $P \approx |\Delta\beta|/\gamma\tau$ , таким образом, дает оценку предельной пиковой мощности лазерных импульсов, которые могут быть эффективно преобразованы с помощью реализованной методики, основанной на использовании МС-световодов с большой площадью моды.

В условиях наших экспериментов появление высших волноводных мод при пиковых мощностях лазерных импульсов около 4-5 МВт и выше легко регистрируется по искажению пространственного профиля выходного излучения, а также по изменению характера XFROG-спектрохронограмм поля, формируемого на выходе МС световода. Так как различным модам МС-световода соответствуют различные профили дисперсии, XFROG-спектрохронограммы многомодового излучения характеризуются наличием нескольких «крюков» вблизи длин волн, соответствующих нулевым значениям ДГС для каждой из мод. Благодаря различию групповых скоростей собственных мод световода использование достаточно протяженного сегмента МС-волокна позволяет разрешить такие «крюки» по времени (см. рис. 3.5.6). При временах задержки  $\tau$  между импульсом излучения из МС световода и опорным импульсом, равных 200, 1300 и 2700 фс, сигнал суммарной частоты, используемый для построения XFROG-спектрохронограмм, имел профиль пучка, характерный для основной (при  $\tau \approx 200$  фс) и высших (при  $\tau \approx 1300$  и  $2700$  фс) мод МС световода. Световоды, позволяющие сформировать мощные сверхкороткие ИК импульсы в высших пространственных модах, могут быть использованы для создания полностью волоконных источников излучения для микроскопии, на основе методик насыщения вынужденного излучения или когерентное комбинационное рассеяние света, в которых повышение пространственного разрешения достигается за счет использования пары световых пучков с оптимальной комбинацией пространственных профилей интенсивности [213–215].

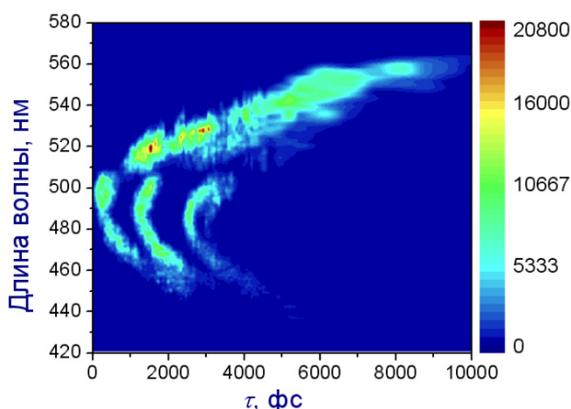


Рис. 3.5.6. Спектрохронограмма светового поля, преобразованного в МС-световоде в многомодовом режиме. Лазерные импульсы на входе в световод имеют центральную длину волны 1290 нм, длительность 160 фс и энергию 1 мкДж.

Таким образом, была продемонстрирована новая методика формирования перестраиваемых по частоте мегаваттных фемтосекундных импульсов ИК-диапазона на основе генерации излучения суперконтинуума в многосолитонном режиме, реализуемом в МС световоде с большой площадью моды, и последующей компрессии импульсов этого

излучения. С помощью МС-световода с площадью сердцевины около  $710 \text{ мкм}^2$  осуществлено преобразование микроджоулевых фемтосекундных лазерных импульсов с центральной длиной волны  $1.39 \text{ мкм}$  в импульсы излучения с центральной длиной волны  $1520 \text{ нм}$ , длительностью  $210 \text{ фс}$  и пиковой мощностью около  $1 \text{ МВт}$ .

С другой стороны, было бы также интересно исследовать нелинейно-оптические преобразования в волокнах с большой площадью сердцевины в режиме нормальной дисперсии, т.е. в более коротковолновой области относительно точки с нулевой дисперсией ДГС. Эти эксперименты [170] были выполнены с другим интересным типом МС – полностью твердотельным микроструктурированным волокном с большой площадью моды, которое предлагает новые интересные возможности для управления нелинейно оптической трансформацией лазерных импульсов с высокой пиковой мощностью [216]. Полностью твердотельное ФК волокно, которое мы использовали в наших экспериментах, было изготовлено в Научном центре волоконной оптики при Институте общей физики им. А.М.Прохорова РАН [217]. Оболочка состояла из периодических рядов стержней, допированных диоксидом германия и идущих вдоль всей оси волокна (рис. 3.5.7а). Волокно поддерживало распространение излучения с низкими потерями в области фундаментальной фотонно-запрещенной зоны оболочки в диапазоне примерно от  $930$  до  $1300 \text{ нм}$ . Диаметр основной волноводной моды оценивался как  $19 \text{ мкм}$  на длине волны  $1 \text{ мкм}$ , а коэффициент нелинейности приблизительно равнялся  $\gamma \approx 0.6 \text{ км}^{-1}\text{Вт}^{-1}$

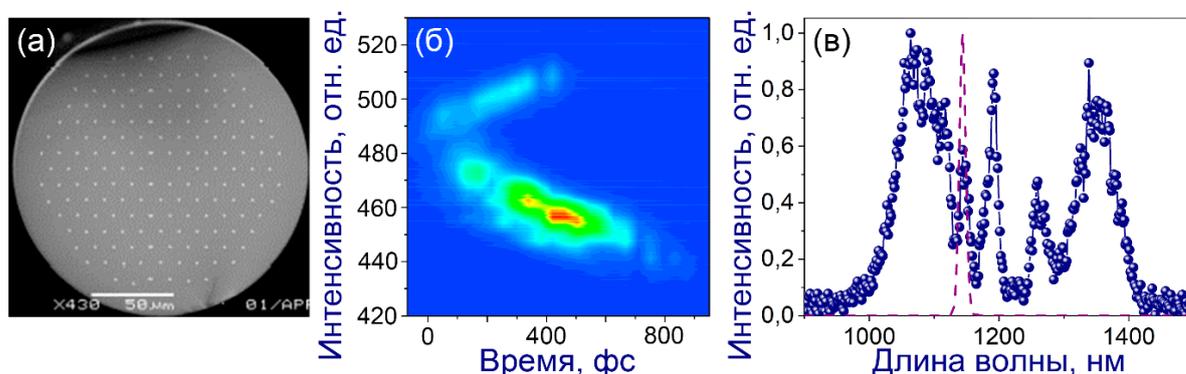


Рис. 3.5.7. (а) Изображение поперечного среза полностью кварцевого волокна с большой площадью моды, полученное с помощью электронного микроскопа. (б) Спектрохронограмма излучения на выходе МС волокна, полученная методом X-FROG для импульса накачки длительностью  $200 \text{ фс}$ , с центральной длиной волны  $1140 \text{ нм}$  и энергией  $0,6 \text{ мкДж}$ . (в) Спектр излучения на входе в волокно (пунктир) и спектр на выходе из МС волокна длиной  $22 \text{ см}$  (закрашенные кружки), параметры импульса накачки указаны в тексте.

Также как в описанных выше экспериментах, заводимые в волокно перестраиваемые фемтосекундные импульсы генерировались в оптическом параметрическом усилителе (ОПУ), накачиваемым фемтосекундным излучением многопроходного Ti:Sapphire усилителя. Спектрально-временное преобразование импульсов накачки на центральной длине волны  $1140 \text{ нм}$ , с длительностью  $200 \text{ фс}$  и энергией  $0.6 \text{ мкДж}$  в МС волокне, измерялись с помощью техники X-FROG (в качестве опорного сигнала выступали импульсы

из Ti:Sapphire лазера с длиной волны 800 нм и длительностью 45 фс). На спектрохронограмме видна характерная точка разворота на длине волны 486 нм, что определяет изменение знака дисперсии групповых скоростей МС волокна в районе  $\lambda_z \approx 1.24$  мкм (рис. 3.5.7б), а на рис. 3.5.7с представлен спектр импульса на входе и выходе МС волокна длиной 20 см. Полная ширина спектра достаточна для последующего сжатия этого излучения до импульсов с длительностью 8.4 фс (рис. 3.5.8а), что соответствует 2.1 циклам поля на центральной длине волны 1175 нм. Анализ возможности сжатия такого спектра с помощью простых инструментов (призмленного компрессора) показывает, что это возможно только для высокочастотной части спектра импульса, испытавшего уширение в режиме нормальной дисперсии волокна ( $\lambda < \lambda_z$ ) (рис. 3.5.8б). Длинноволновая часть спектра ( $\lambda > \lambda_z$ ) распространялась в области аномальной дисперсии волокна, что привело к формированию сложной солитонной картины, с трудом поддающуюся сжатию призмленным компрессором. С другой стороны, при использовании импульсов накачки с длиной волны много меньшей 1140 нм, сильная дисперсия высоких порядков вблизи высокочастотного края полосы пропускания волокна искажает фазу спектрально уширенного излучения, также препятствуя его дальнейшему эффективному сжатию.

Временные и спектрально-фазовые характеристики импульса из МС волокна после его сжатия призмленным компрессором излучения характеризовались техникой XFROG (рис. 3.5.8а,б). Как было упомянуто, коротковолновая часть спектра в режиме нормальной дисперсии может быть эффективно сжата, при использовании пространственного фильтра в призмленном компрессоре, отрезающего длинноволновую ( $\lambda > \lambda_z$ ) солитонную часть спектра на выходе МС волокна. На рис. 3.5.8аб представлена временная огибающая сжатых импульсов для различных начальных энергий и центральных длин волн лазерного импульса накачки на входе в волокно. Импульс с начальной центральной длиной волны 1140 нм и энергией 0.6 мкДж может быть сжат до 20 фс (рис. 3.5.8а). Энергия сжатых импульсов составляет 0.4 мкДж, что соответствует пиковой мощности 20 МВт. Импульсы с центральной длиной волны 1130 нм и энергией 0.8 мкДж уширенные в МС волокне могут быть сжаты до длительности 23 фс (рис. 3.5.8б), что при их энергии 0.5 мкДж соответствует пиковой мощности 22 МВт. В обоих случаях нелинейный набег фаз на выходе МС волокна остается нескомпенсированным (временной профиль фазы показан пунктирной линией на рис. 3.5.8аб), что оставляет возможность повышения эффективности компенсации чирпа и сжатия путем использования более сложных методик временной компрессии импульсов, например, пространственных модуляторов света.

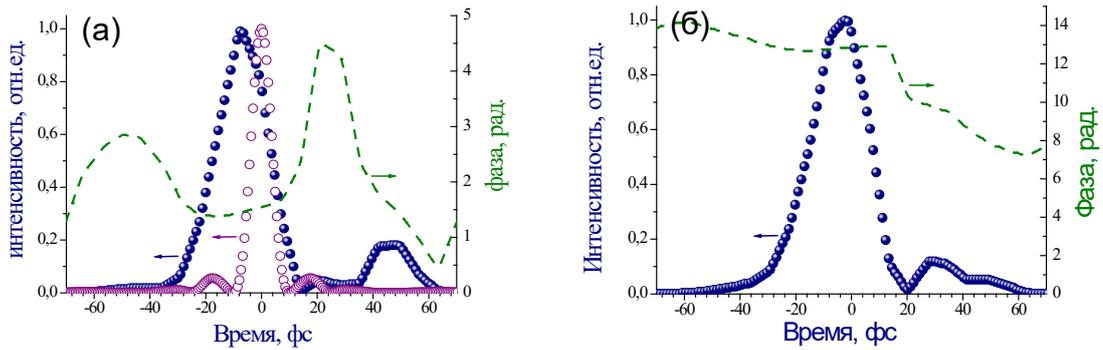


Рис. 3.5.8. Огибающая интенсивности и чирп сжатых импульсов после прохождения МС волокна. Длина волны импульсов накачки 1140 нм (а) и 1130 нм (б), с энергиями 0,6 мкДж (а) и 0,8 мкДж (б), соответственно. Незакрашенные кружки показывают огибающую спектрально ограниченного импульса, посчитанную как Фурье преобразование экспериментального спектра на выходе из МС волокна, показанного на рис. 3.5.7б.

При увеличении энергии импульсов накачки и превышении пиковой мощности величины 5 МВт, прекращается уширение спектра излучения на выходе МС волокна. Анализ пространственного распределения поля на выходе волокна показывает, что значительная часть непреобразованного излучения распространяется вне сердцевины МС волокна. Эти данные демонстрируют влияние пространственного самовоздействия, которое смешивает фундаментальные волноводные моды МС волокна с низким уровнем потерь с модами высоких порядков, обладающих высокими потерями, таким образом приводя к увеличению потерь сердцевины и уменьшению эффективности нелинейно-оптических преобразований. Отметим, что порог самовоздействия составляет величину порядка 5 МВт, в то же время временное сжатие уширенного излучения после МС волокна позволило получить импульсы с пиковой мощностью в несколько раз большими значениями - порядка 20 МВт. Эти результаты могут быть полезны для выбора подходящей методики спектрального преобразования импульсов накачки, которая позволит минимизировать или избежать искажений, вызванных пространственным самовоздействием.

В наших экспериментах было показано, что полностью твердотельное ФК волокно с диаметром сердцевины 19 мкм может эффективно уширять спектр лазерных импульсов с пиковой мощностью около 3 МВт. Импульсы накачки при этом имели длительность 200 фс и центральную длину волны 1140 нм. Путем компенсации чирпа широкополосного излучения на выходе ФК волокна с помощью компрессора, состоящего из пары призм, удалось сжать импульсы в ближнем ИК-диапазоне до длительности 20 фс с пиковой мощностью 20 МВт. Ширина спектра на выходе из ФК волокна оказалась достаточной для сжатия до длительностей, соответствующих двум циклам светового поля.

В заключение настоящей главы отметим, что основные представленные результаты связаны с демонстрацией эффективной платформы на основе фемтосекундных Cr:forsterite лазерных источников (центральная длина волны 1.25 мкм) и микроструктурированных (МС) волокон со сплошной твердотельной для получения перестраиваемых

фемтосекундных импульсов в широком спектральном диапазоне от 0.6 до 1.8 мкм. Наиболее функциональным является использование хром-форстеритовых генераторов с удлиненным резонатором, позволяющим получать импульсы с энергией до 25 нДж, длительностью 40 – 70 фс и частотой повторения порядка 20 МГц. Распространяясь в условиях аномальной дисперсии в сердцевине МС волокна с диаметром сердцевины порядка 5 мкм, они испытывают смещение в длинноволновую область за счет солитонного самосдвига частоты и формируют перестраиваемые импульсы в диапазоне 1.3 – 1.8 мкм с наноджоулевыми уровнями энергии и пиковыми мощностями до 100 кВт. Теоретический анализ показывает, что пиковые мощности могут масштабироваться до субмегаваттных значений. Процесс солитонного самосдвига частоты в микроструктурированных волокнах также обеспечивает возможность спектрально-временного контроля формируемых солитонов. Прежде всего это связано с возможностью спектрального сужения (до 6.5 раз) распространяющихся в МС волокнах фемтосекундных импульсов, что находит применение при реализации различных методик нелинейной спектроскопии, в частности на основе когерентного антистоксова рассеяния света (КАРС). Также показана реализация режима множественной генерации солитонов с гладкой спектральной фазой, что принципиально позволяет осуществить их сложение и формирования импульсов длительностью в несколько циклов поля. В микроструктурированных волокнах ( $\gamma > 100 \text{ Вт}^{-1}\text{км}^{-1}$ ) со сплошной твердотельной сердцевиной, изготовленных из высоконелинейных стекол с элементами наноструктурирования, при оптической накачке от неусиленных импульсов Cr:forsterite лазера обеспечиваются условия для эффективной генерации перестраиваемого излучения в диапазоне от 0.4 до 2 мкм за счет процессов формирования солитонов, спектрального сужения импульсов накачки, фазосогласованного возбуждения дисперсионных волн или генерации третьей гармоники, определяемых дисперсионными свойствами волокна. Генерация импульсов с мультимегаваттными пиковыми мощностями возможна при использовании МС волокон с большой площадью сердцевины ( $> 100 \text{ мкм}^2$ ). Дисперсионные свойства таких волокон близки к материальной дисперсии кварца, но использование излучения накачки с длиной волны в области 1.25 мкм позволяет реализовать режимы распространения с аномальной дисперсией, что приводит к формированию мощных солитонов и генерации суперконтинуума. С использованием внешнего компрессора это излучение можно скомпрессировать до длительностей в несколько циклов поля и пиковыми мощностями до десятков мегаватт.

## **Глава 4. Особенности распространения и нелинейно-оптического преобразования мощных лазерных импульсов в полых фотонно-кристаллических волноводах, обеспечивающие их транспортировку и компрессию до предельно коротких длительностей.**

Повышение энергии и пиковой мощности передаваемых в волоконном формате лазерных импульсов является задачей, обеспечивающей очевидные преимущества для многочисленных научных и технологических применений. Мощность лазерных импульсов, транспортируемых по стандартным оптическим волокнам, ограничена порогом оптического пробоя материала сердцевины и различными нелинейно-оптическими явлениями. Прямым и очевидным способом преодоления этого ограничения является увеличение сердцевины, что в свою очередь создает проблемы, связанные с неоднородностью распределения излучения и существенно многогодовым режимом распространения, что было отмечено в последнем параграфе Главы 3. Для передачи и нелинейно-оптического преобразования спектра и временной формы мощных лазерных импульсов могут использоваться полые волноводы (капилляры). Порог пробоя газа, заполняющего сердцевину такого капилляра, существенно превышает порог пробоя диэлектрического световода. Однако, моды стандартных полых капилляров со сплошной диэлектрической оболочкой, характеризуются неустраиваемыми оптическими потерями [218], величина которых растет с уменьшением радиуса  $a$  полый сердцевины волокна по закону  $\lambda^2/a^3$ , где  $\lambda$  – длина волны излучения.

Для уменьшения потерь можно увеличивать размер сердцевины капилляра, но это приводит к распространению излучения в многомодовом режиме. Полые фотонно-кристаллические (ФК) волноводы [3,6,70] впервые позволили сформировать устойчивые изолированные пространственные направляемые моды мощных сверхкоротких световых импульсов и осуществить эффективные нелинейно-оптические преобразования таких полей в режимах близких к одномодовому [219]. Волноводный режим распространения электромагнитного излучения в полый сердцевине ФК-волокон обеспечивается за счет высокой отражательной способности двумерно-периодической (фотонно-кристаллической) структуры оболочки этих волноводов в области фотонных запрещенных зон [70]. В этих частотных интервалах электромагнитное поле не может существовать в виде волн, распространяющихся внутри периодической структуры ФК-оболочки, и оказывается локализованным в полый сердцевине волокна. Подробно свойства полых фотонно-кристаллических световодов представлены в параграфе 1.5, также частично этому вопросу будет посвящен материал Главы 5. Поскольку для полых световодов существенным является наличие периодической структуры в оболочке для поддержания волноводного распространения, то мы будем более часто употреблять термин фотонно-кристаллические (ФК) волокна, а не микроструктурированные.

В настоящей главе последовательно рассмотрены основные вопросы, касающиеся исследования свойств и возможности применения полых фотонно-кристаллических волокон в актуальных задачах передачи и нелинейно-оптической компрессии мощных

лазерных импульсов видимого, ближнего и среднего инфракрасного диапазона. В первом параграфе будут изложены вопросы транспортировки лазерных импульсов с различными длительностями и энергиями, также представлены методы измерения дисперсии групповых скоростей полых ФК волноводов, возможности реализации линейной компрессии предцирированных фемтосекундных импульсов, а также солитонного режима распространения импульсов мегаваттного уровня пиковой мощности. Во втором параграфе будут представлены эксперименты по генерации и характеристике фазостабильных гигаваттных импульсов длительностью порядка одного и менее периодов поля, формирующихся при распространении фемтосекундных импульсов накачки ближнего и среднего инфракрасного диапазона в заполненной аргоном полый сердцевине фотонно-кристаллического волокна особого типа, обладающей «револьверной» анти-резонансной структурой оболочки, обеспечивающей чрезвычайно широкие спектральные зоны низких волноводных потерь.

#### **§4.1. Транспортировка и нелинейно-оптические преобразования высокоэнергетичных лазерных импульсов в полых фотонно-кристаллических волокнах.**

Полые фотонно-кристаллические волокна открывают широкие возможности для передачи нано-, пико- и фемтосекундных импульсов с высокой пиковой мощностью для научных и практических применений, таких как маркировка, обработка поверхности и сварка, лазерное доплеровское измерение скорости и лазерная хирургия. Практически с самого начала развития этой тематики в нашей группе, мы также активно исследовали свойства полых волноводов – возможности формирования волноводных мод, реализации различных режимов нелинейно-оптического преобразования или эффективных режимов четырехволнового смешения.

В задачи настоящего параграфа входит демонстрация нескольких режимов транспортировки высокоэнергетичных импульсов различной длительности (от наносекундных до фемтосекундных) и их последующего применения в биомедицинских задачах, в частности лазерной стоматологии и хирургии [220,221]. В экспериментах, представленных в данном параграфе, использовались фотонно-кристаллические волокна, изготовленные и предоставленные нам коллегами из ГОСС (Саратов). Диаметр полый сердцевинный  $d$  данных волокон варьировался в диапазоне 13 – 15 мкм, а оболочка была выполнена в виде периодической гексагональной фотонно-кристаллической структуры с периодом 5 мкм. Как было представлено в параграфе 1.5, подобное волокно поддерживает волноводное распространение излучения с низкими потерями за счет формирования в периодически структурированной оболочке фотонно-запрещенных зон, которые определяют спектральные области пропускания волокна [3]. Необходимо отметить, что эксперименты проводились в разное время с разными образцами волокон из этой серии, поэтому их конкретные характеристики могли различаться, что находило отражение в небольших изменениях спектров пропускания волноводов, поэтому для разных

экспериментов подбирался волновод, наиболее адекватно способствующий решению поставленных задач.

Структура использованного в описанных ниже экспериментах полого ФК волокна поддерживает область пропускания с центром на длине волны 1064 нм, что позволяет применять его для эффективной доставки импульсов Nd:YAG или иттербиевого лазерных источников (рис. 4.1.1а). Отрезок такого волновода длиной 10 см с диаметром сердцевины порядка ~14 мкм и периодом структуры оболочки ~5 мкм был использован в экспериментах [220,221] с пикосекундными лазерными импульсами. В экспериментах использовалась лазерная система, состоящая из пикосекундного Nd:YAG лазерного генератора в режиме пассивной синхронизацией мод на основе насыщающегося поглотителя и усилителя. На выходе усилителя формируется цуг из 15-20 пикосекундных лазерных импульсов длительностью 30-40 пс, с задержкой между импульсами порядка 8 нс. Суммарная энергия импульсов в цуге достигала 2 мДж. Пропускание ФК-волокна на длине волны 1064 нм составила около 60%, а с учетом потерь, связанных с заведением и коллимацией излучения, энергия отдельных пикосекундных импульсов в цуге на выходе составила около 70 мкДж, что было достаточно для реализации практических задач, связанных с фоторазрушением биологических объектов. Для демонстрации этой возможности, излучение фокусировалось на поражённую кариесом поверхность удаленного зуб в пятно диаметром порядка 15 мкм, что позволило реализовать эффективный процесс фоторазрушения (на рисунке рис.4.1.1г представлено фотография кратера, образовавшегося при разрушении зубной эмали при сканировании фокуса по поверхности).

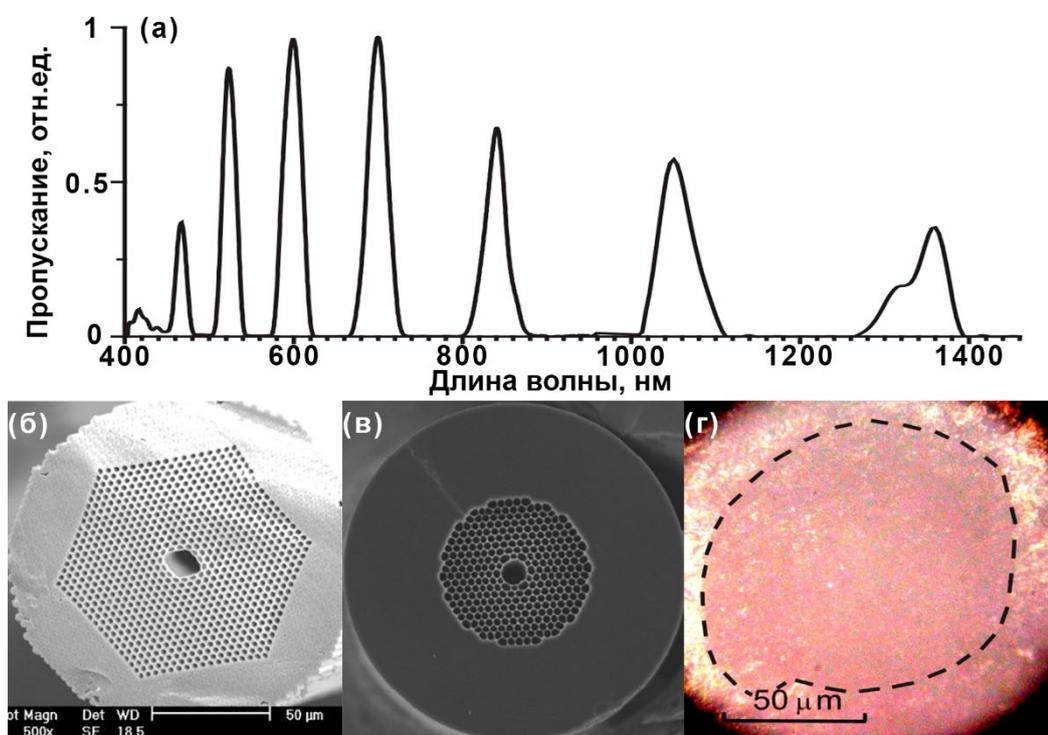


Рис. 4.1.1. Характерный спектр пропускания (а) и фотография (б) полого фотонно-кристаллического волокна, изготовленного в ТООС (Саратов). Изображение сечения полого фотонно-кристаллических волновода, предоставленного группой Ф. Рассела (в). Фотография фотоповреждения зубной ткани, вызванного воздействием пикосекундных импульсов (г).

Аналогичные исследования с использованием наносекундных лазерных импульсов были проведены в полых фотонно-кристаллических волокнах с диаметром внутренней сердцевины порядка 14 мкм, окруженной семью рядами полых отверстий (см. рис. 4.1.1в), которые были предоставлены группой Ф. Рассела. Потери в волокне на длине волны 1064 нм составляли 10 дБ/км, что позволяет доставлять импульсы на расстояние 300 м с потерями не более чем в два раза. Принципиальным явлением, ограничивающим энергию импульсов, распространяющихся по полым фотонно-кристаллическим волокнам, является пробой оболочки. Чтобы определить этот предел для конкретного волокна, фокус лазерного пучка смещался из центра волокна и направлялся в фотонно-кристаллическую оболочку объективом с десятикратным увеличением. Диаметр фокального пятна при этом составлял порядка 16 мкм. Несмотря на то, что на практике значительная часть энергии импульса распространяется по центральному воздушному каналу, данный метод даёт неплохую оценку порога пробоя оболочки в целом. Для импульсов длительностью ~10 нс пробой происходил при достижении уровня энергии 250 мкДж, что соответствует потоку 124 Дж/см<sup>2</sup>. Данная величина хорошо соотносится с приведенным в [222] значением порога пробоя для кварца (100-120 Дж/см<sup>2</sup>).

Для демонстрации возможности доставки мощных наносекундных лазерных импульсов через полое ФК-волокно было использовано излучение основной длины волны Nd:YAG лазера с  $M^2=2.4$ . Эффективное возбуждение фундаментальной моды волновода обеспечивалось фокусировкой излучения объективом с увеличением  $\times 20$ . В ходе экспериментов было обнаружено значительное влияние на эффективность заведения излучения не только пространственного перекрытия, но и соосности лазерного пучка и сердцевины ФК волновода. Максимальная энергия, которую удалось передать по ФК-волокну, составляла 535 мкДж, что превышало аналогичные значения, полученные в работе [223], выполненной приблизительно в одно и то же время с нашими исследованиями. Кроме того, в экспериментах [224], изучено также влияние давления газа, заполняющего полую сердцевину, на порог пробоя волокна: даже при незначительном понижении давления, порог существенно возрастал. Так при давлении 450 мБар удалось передать по волноводу импульсы с энергией 880 мкДж. Таким образом, в наших экспериментах была экспериментально продемонстрирована возможность распространения в одномодовом режиме пико- и наносекундных лазерных импульсов с высокой энергией в полых фотонно-кристаллических волокнах с потоком энергии более 500 Дж/см<sup>2</sup>.

Передача мощных фемтосекундных импульсов для эндоскопических применений также представляет собой привлекательную задачу, для которой возможно использование фотонно-кристаллических световодов со сплошной [225] и полый [226] сердцевиной. Однако, режим доставки импульсов с высокой пиковой мощностью через волокна со сплошной диэлектрической сердцевиной, как правило, затрудняется разрушением материала волновода, очень сильными искажениями импульсов, вызываемыми нелинейно-оптическими явлениями или присутствием многомодового режима, в то время как транспортировка фемтосекундных импульсов в полых фотонно-кристаллических волокнах имеет существенные преимущества, связанные с гораздо более высоким порогом пробоя и заметным уменьшением дисперсионного расплывания импульсов, имеющим место в

оптических волокнах со сплошной сердцевиной. В работе [227] мы экспериментально продемонстрировали, что полое ФК волокно позволяет в волноводном формате передавать фемтосекундные высокоинтенсивные лазерные импульсы с минимальными искажениями и потерями. В экспериментах использовалось волокно с низкими потерями ( $\sim 0.05$  дБ/м) в области длин волн около 1060 нм, вызывающее минимальные спектральные искажения излучения фемтосекундного иттербиевого генератора (рис.4.1.2а). Однако, волноводная дисперсия в полых ФК волноводах может вызывать сильное удлинение фемтосекундных лазерных импульсов для достаточно протяженных отрезков волокон.

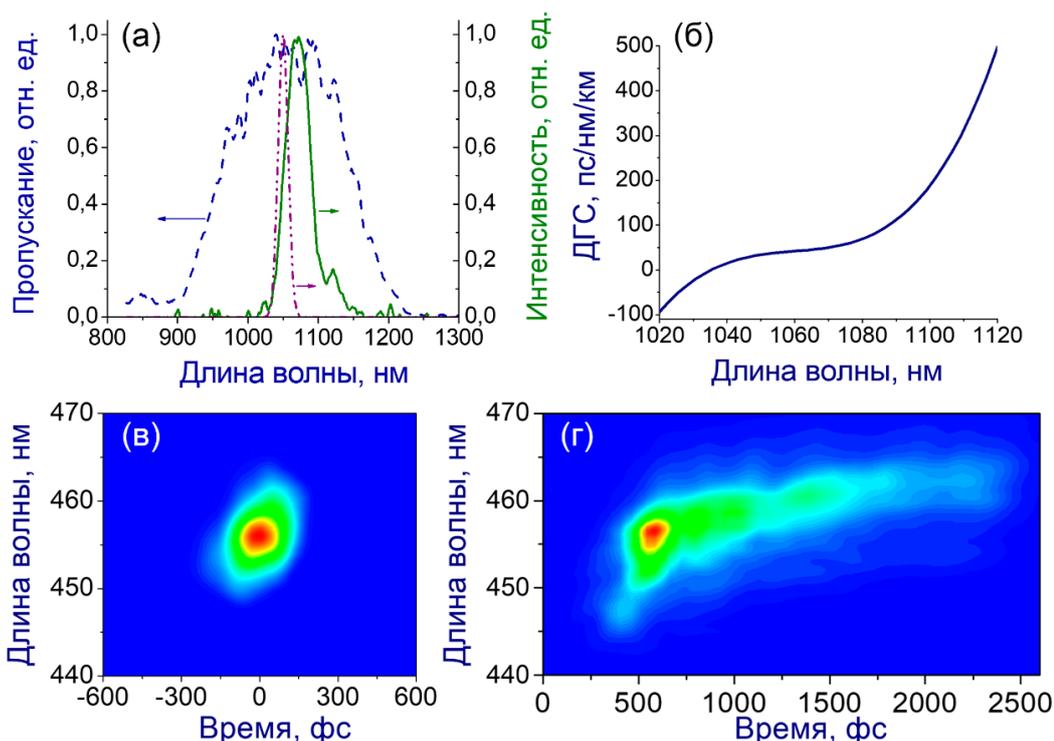


Рис. 4.1.2. (а) Спектр импульса на выходе ОПУ (сплошная кривая), спектр пропускания полого ФК волокна (пунктирная кривая), спектр импульса иттербиевого лазера (штрихпунктирная кривая). (б) Восстановленная по XFROG-картам ДГС волокна в области прозрачности вблизи длины волн 1060 нм. (в,г) Экспериментальные XFROG-спектрохронограммы зондирующего импульса, измеренные на входе (в) и на выходе (г) полого ФК-волокна длиной 20 см.

Для детального исследования влияния спектрального профиля волноводной дисперсии на временные характеристики распространяющегося сверхкороткого лазерного импульса мы использовали излучение из оптического параметрического усилителя (ОПУ), накачиваемого усиленными импульсами Ti:Sapphire лазера, подробно описанного в параграфе 2.1. Импульсы на входе (длительность 100 фс, длина волн 1070 нм) и выходе из волокна характеризовались с помощью методики XFROG (4.1.2в и 4.1.2г, соответственно), в которой исследуемое излучение смешивалось в воздухе с опорными импульсами, в качестве которых использовались импульсы из Ti:Sapphire лазера с центральной длиной волны 795 нм и длительностью 50 фс. Результаты проведенных измерений показали, что волоконная дисперсия растягивает импульс от начальной длительности 100 фс до значения 490 фс на выходе из волокна. Восстановленная по X-FROG картам волоконная дисперсия

имеет аномальный характер на длинах волн более 1060 нм (рис. 4.1.2б), что соответствует общему свойству ДГС волноводных мод полых ФК волокон: дисперсия групповых скоростей стремится к нулю в середине зоны пропускания и становится аномальной при увеличении длины волны. Это свойство полых ФК-волноводов открывает возможность для реализации простых схем компенсации исходного чирпа и формирования коротких импульсов на выходе волокна.

Для демонстрации возможности подобной компенсации фазовой модуляции с помощью волоконной дисперсии в исходные лазерные импульсы контролируемо вносился чирп при помощи набора плоскопараллельных кварцевых пластинок. Исходный 100 фемтосекундный импульс на центральной длине волны 1070 нм на выходе из ОПУ был растянут таким способом до длительности 510 фс. Измеренная XFROG-спектрохронограмма полученного импульса, показанная на рис. 4.1.3.а, позволила восстановить его временную огибающую, определить линейный чирп ( $\sim 6540$  фс<sup>2</sup>) (рис 4.1.3б), а также параболический профиль его спектральной фазы (рис. 4.1.3.в).

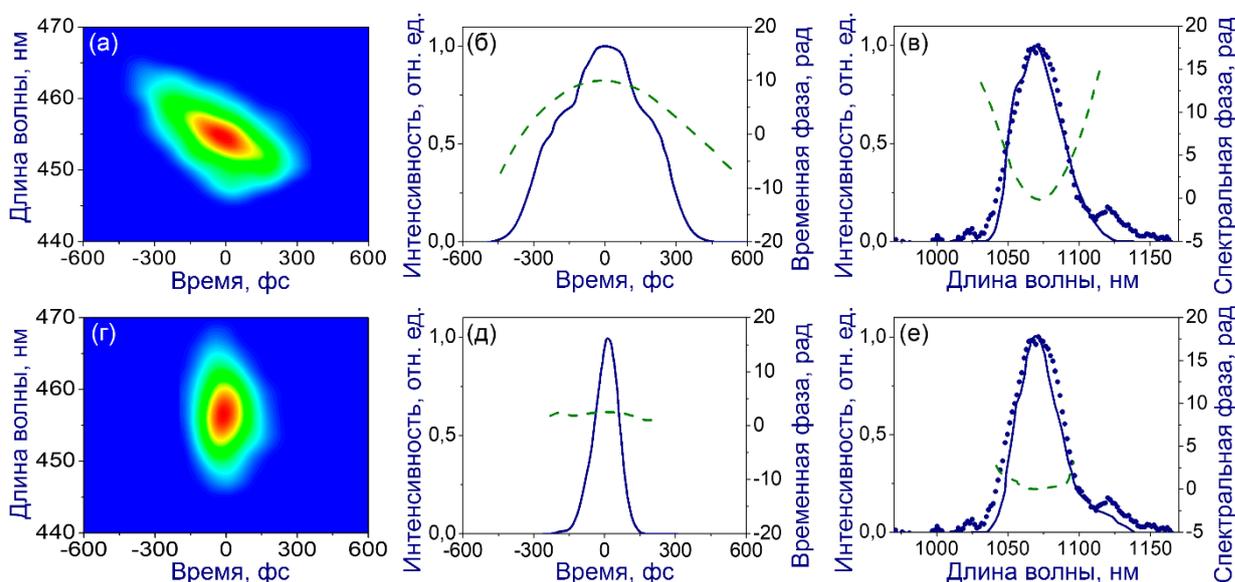


Рис.4.1.3 Характеризация лазерных импульсов на входе (а-в) и на выходе (г-е) полого ФК волновода: (а) и (г) – карты XFROG для (а) входящего и (г) выходящего из волокна импульса; (б) и (д) – временные огибающие (сплошные линии) и фаза (пунктирные линии) для (б) входящего и (д) выходящего из волокна импульса; (в) и (е) – измеренные спектры (закрашенные кружки), спектры, восстановленные из карт XFROG (сплошные линии), и спектральная фаза (пунктир) для (в) входящего и (е) выходящего из волокна импульса.

Растянутые импульсы с энергией около 0.8 мкДж заводились с помощью объектива в отрезок полого ФК волновода длиной 20 см. Оценка В-интеграла для условий эксперимента показывает пренебрежимо малое влияние нелинейного набега фазы. Анализ XFROG спектрохронограммы импульса на выходе из волокна (рис. 4.1.3г) показывает, что большая часть линейной части входного чирпа была скомпенсирована дисперсией волокна, что восстановило длительность импульса до значения 110 фс (рис. 4.1.3д) и обеспечило пиковую мощность порядка 5 МВт при энергии выходного импульса 0.55 мкДж. Спектр и спектральная фаза (рис. 4.1.3.е) подтверждают, что влияние нелинейных эффектов было

несущественным, а нескомпенсированная остаточная часть набега фазы обусловлена дисперсией высших порядков полого ФК волокна.

Сжатый во времени импульс на выходе из ФК волокна коллимировался, а затем излучение фокусировалось парой асферических линз с числовой апертурой 0.55 (рис. 4.1.4). Фокусировка такого пучка в пятно с диаметром 3-5 мкм дает оценки интенсивности 30-70 ТВт/см<sup>2</sup> и потока энергии 3-7 кДж/см<sup>2</sup> (эти значения более чем на два порядка превосходят порог пробоя прозрачного широкозонного диэлектрика, такого как плавленый кварц [228]). Поля с интенсивностями такого уровня достаточны для широкого круга биомедицинских приложений, включая мультифотонную микроскопию [229–234].

В качестве примера использования этих импульсов для лазерной хирургии были выбраны ткани мозолистого тела головного мозга мыши, схема эксперимента представлена на рис.4.1.4, а результаты фоторазрушения показаны на вставке к нему. Помимо локального повреждения биоткани, прошедшие через волокно лазерные импульсы с центральной длиной волны 1070 нм приводили к эффективной генерации третьей оптической гармоники в режиме жесткой фокусировки, что принципиально позволяет реализовать нелинейно-оптическую микроскопию тканей головного мозга. Сигнал третьей гармоники собирался оболочкой того же волокна и доставлялся в систему регистрации, состоящую из набора спектральных фильтров и фотоэлектронного умножителя (рис. 4.1.4). В таком режиме распространения излучения потери при распространении на центральной длине волны третьей гармоники составляли 0.2 дБ/м. Высокая чувствительность сигнала третьей гармоники к индуцированной сверхкоротким импульсом накачки генерации свободных носителей предлагает многообещающий метод для локальной регистрации фотоповреждений в биотканях, связываемой с ионизацией молекул и генерацией электронов.

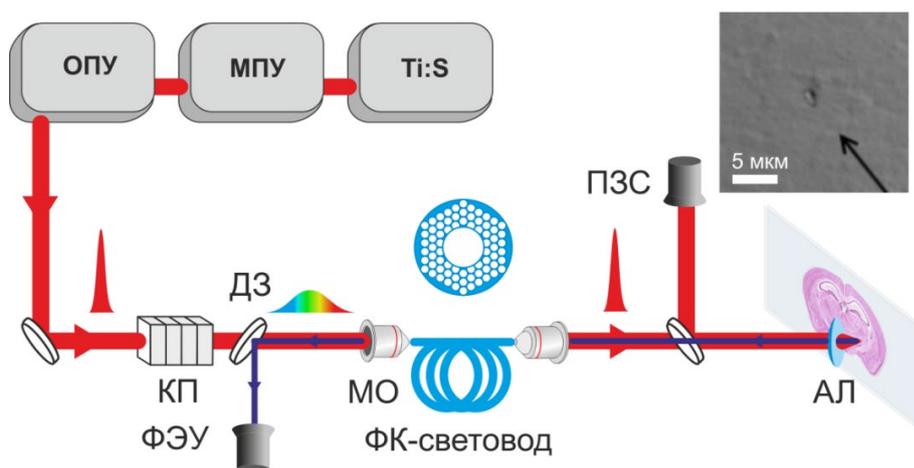


Рис.4.1.4 Схема эксперимента по фоторазрушению тканей головного мозга при помощи доставленных по полую ФК волокну лазерных импульсов [227]. На вставке фотография области вызванного сверхкороткими лазерными импульсами фоторазрушения в мозолистом теле на срезе головного мозга мыши.

Таким образом, мы продемонстрировали, что полое ФК волокно с диаметром сердцевины около 15 мкм обладает достаточно широкой областью прозрачности с

аномальной дисперсией групповых скоростей для временной компрессии предварительно chirпированных оптическими элементами фемтосекундных лазерных импульсов микроджоулевого уровня энергии с центральной длиной волны 1070 нм от начальных 510 фс до 110 фс, соответствующих близкому к спектрально ограниченному импульсу. Пиковая мощность порядка 5 МВт на выходе из волокна позволяет осуществить локальное фоторазрушение тканей головного мозга, а также нелинейно-оптическую диагностику процесса фотоионизации.

В ходе наших дальнейших исследований был также продемонстрирован принципиально иной режим передачи сверхкоротких импульсов через полое ФК-волокно. Было показано, что использование солитонных режимов передачи фемтосекундных импульсов через полые ФК-волокна позволяет существенно повысить пиковую мощность передаваемых сверхкоротких лазерных импульсов. В качестве источника излучения в представленных ниже экспериментах использовался фемтосекундный лазер на хром-форстерите с усилением и удвоением частоты. Так как оптическая нелинейность вещества в газовой фазе (например, атмосферного воздуха) при нормальных условиях ниже на три порядка нелинейности плавленого кварца, а порог оптического пробоя значительно выше порога пробоя прозрачного диэлектрика, заполненные газовой средой полые ФК-волноводы позволяют реализовать солитонные режимы распространения для фемтосекундных импульсов мегаваттного уровня пиковой мощности [73]. Солитонное сжатие мощных сверхкоротких импульсов в полых ФК-волокна было осуществлено в работах [74,75]. Подобные солитоны являются новым интересным объектом оптической физики, открывающим возможности для практического использования устройств волоконной оптики для передачи мощных сверхкоротких лазерных импульсов без существенных искажений временной формы и значительных потерь энергии.

Профиль поперечного сечения полых ФК-волокон, используемых в наших экспериментах для передачи мощных сверхкоротких лазерных импульсов [235,236] показан на рис. 4.1.1б. Диаметр полый сердцевины волокна составлял 14 мкм. Моделирование свойств собственных мод полых ФК-волноводов производилось на основе численного решения волнового уравнения для поперечных компонент электрического поля методом разложения по системе ортогональных базисных функций, сводящим решение волнового уравнения с соответствующими граничными условиями к задаче на собственные функции и собственные значения матричного уравнения [100,237]. Для анализа спектрально-временной динамики лазерных импульсов, передаваемых через волокно, использовалось численное решение обобщенного нелинейного уравнения Шредингера [1,238], учитывающего вклад дисперсии высоких порядков, образование ударных волн и влияние запаздывающей нелинейности газа в полый сердцевине волновода [238]. Численное моделирование, выполненное для используемого типа ФК-волокон, указывает на существование солитонных режимов распространения фемтосекундных импульсов второй гармоники хром-форстеритового лазера с начальной длиной волны 615 нм. В случае полых ФК-волокон, заполненных комбинационно-активным газом (в наших экспериментах – атмосферный воздух), существенное влияние на спектрально-временную динамику передаваемого сверхкороткого импульса оказывает запаздывающая часть

оптической нелинейности, и связанный с ней низкочастотный сдвиг спектра солитонов (режимы солитонного самосдвига частоты (ССЧ) подробно изложены в Главе 3).

Сплошной линией на рис. 4.1.5а представлена спектральная интенсивность импульса с начальной длительностью 90 фс, энергией 400 нДж и центральной длиной волны 615 нм на выходе ФК-волокна длиной 20 см (в экспериментах использовалась лазерная система с на кристалле  $\text{Cr}^{4+}$ :форстерита с усилителем, а удвоение частоты излучения лазера на хром-форстерите производилось с помощью кристалла LBO). Смещенная по частоте солитонная компонента имеет максимум на длине волны 622 нм. Во временном представлении совместное действие запаздывающей нелинейности и эффектов дисперсии высших порядков приводит к делению светового импульса в процессе его распространения в ФК-волокне и образованию двух изолированных во времени и по спектру импульсов. Сплошной линией на рис. 4.1.5б представлена временная огибающая интенсивности, соответствующая смещенной по частоте солитонной компоненте импульса на выходе ФК-волокна. Спектральная отстройка и временная задержка между двумя частями светового поля увеличиваются по мере распространения излучения в волокне. Этому способствуют как дисперсия высших порядков, приводящая к различию групповых скоростей солитонов с различными локальными параметрами, так и обусловленный запаздывающей нелинейностью эффект ССЧ, скорость которого зависит от локальной длительности солитона.

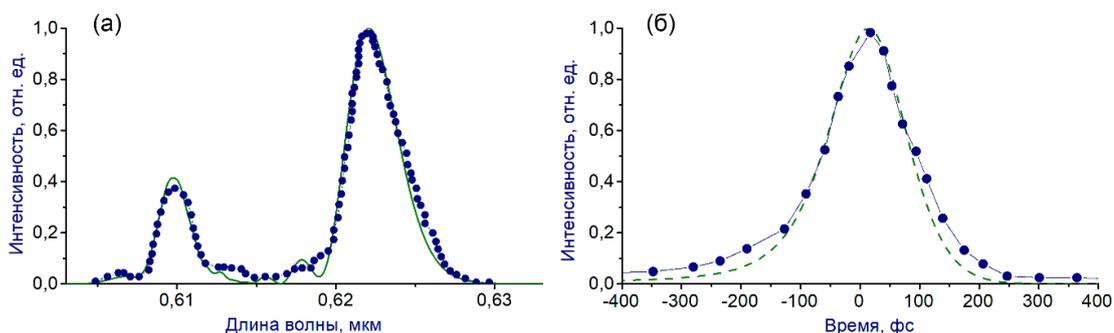


Рис. 4.1.5. (а) Спектр интенсивности светового импульса с начальной длительностью 90 фс, энергией 400 нДж и центральной длиной волны 615 нм на выходе ФК-волокна рассматриваемого типа длиной 20 см: (сплошная линия) численный расчет, (точки) экспериментальные данные. (б) Временная огибающая интенсивности, соответствующая смещенной по частоте солитонной компоненте импульса на выходе ФК-волокна: (сплошная линия) численный расчет, (точки) экспериментальные данные.

Для измерения спектра и временной огибающей светового импульса на выходе полого ФК-волокна использовалась техника кросс-корреляционного оптического стробирования с разрешением по частоте (XFROG). В качестве опорных импульсов в наших экспериментах использовались импульсы основного излучения хром-форстеритового лазера длительностью 80 фс. Полученный с помощью описанной выше процедуры спектр интенсивности импульса на выходе ФК-волокна (точки на рис. 4.1.5а) с хорошей точностью согласуется с результатами численных расчетов (сплошная линия на рис. 4.1.5а). Большая часть энергии излучения на выходе волокна сосредоточена в области

спектрального пика, соответствующего смещенному по частоте солитону. Во временном представлении солитонная часть поля излучения на выходе ФК-волокна имеет вид короткого импульса, кросскорреляционная функция которого, измеренная с помощью опорного импульса основной частоты хром-форстеритового лазера, представлена точками на рис. 4.1.5б. Для входных импульсов с начальной длительностью 90 фс, энергией 400 нДж и центральной длиной волны 615 нм ширина экспериментально измеренной кросскорреляционной функции для импульса на выходе ФК-волокна длиной 20 см составляет 150 фс. С учетом длительности опорного импульса (80 фс) получаем, длительность импульса на выходе волокна приблизительно равна 130 фс.

При увеличении начальной энергии импульса длительность солитона, формирующегося в волокне, уменьшается, что приводит к увеличению скорости сдвига частоты [163]. В экспериментально измеряемых спектрах излучения на выходе ФК-волокна этот эффект проявляется как увеличение центральной длины волны выходного импульса при увеличении энергии входного импульса. Этот результат согласуется с основными свойствами идеальных солитонов, являющихся решением нелинейного уравнения Шредингера, для которых, как указано выше, пиковая мощность связана с длительностью соотношением  $P_s = |\beta_2| \gamma^{-1} \tau_0^{-2}$ . Таким образом, имеется возможность плавной перестройки центральной длины волны солитона на выходе полого ФК-волокна путем изменения энергии входного импульса.

Полученные экспериментальные и теоретические результаты показывают возможность реализации солитонного режима передачи импульсов второй гармоники хром-форстеритового лазера с центральной длиной волны 615 нм, характерной длительностью около 100 фс и энергией 0.2 – 1 мкДж в полых фотонно-кристаллических волокнах. Мощность солитонов, формируемых в условиях описываемых экспериментов, на четыре порядка превышает мощность солитонов в обычных кварцевых световодах. Фотонно-кристаллические волокна рассмотренного в настоящем параграфе класса, обеспечивающие передачу мегаваттных фемтосекундных импульсов без существенных искажений временной формы и значительных потерь энергии, открывают новые возможности в области лазерной биомедицины и оптических технологий. Высокая мощность передаваемых без существенных искажений формы фемтосекундных импульсов существенно расширяет функциональные возможности волоконно-оптических устройств в системах лазерной эндоскопии, а также в получающих широкое распространение системах терапии и хирургии, основанных на использовании сверхкоротких лазерных импульсов. Минимальная длительность импульсов на выходе полых ФК волокон ограничена относительно маленькой спектральной шириной окна пропускания волновода, составляющей десятки нм для волокон, представленных в описанных выше экспериментах. В задачах, где требуется доставка в волоконном формате многооктавного суперконтинуума с высокой пиковой мощностью и предельно коротких импульсов длительностью порядка одного периода поля, находят применение полые фотонно-кристаллические волокна особого типа, с антирезонансной оболочкой в виде кольца тонкостенных капилляров, обеспечивающей наличие широких спектральных областей низких потерь.

## **§4.2. Нелинейно-оптические преобразования импульсов ближнего и среднего инфракрасного диапазона в полых антирезонансных фотонно-кристаллических волноводах револьверного типа для формирования мультиоктавного суперконтинуума и предельно коротких гигаваттных импульсов**

Одной из разновидностей фотонно-кристаллических (микроструктурированных) волнопроводов с поллой сердцевиной является антирезонансный световод револьверного типа [239], структура которого представляет собой кольцо из нескольких тонкостенных капилляров (рис.4.2.1b), окружающих полую сердцевину. Благодаря эффекту антирезонанса на стенках капилляров субмикронной толщины и отрицательной кривизне их поверхности (направления радиуса кривизны поверхности капилляров, образующих границу поллой сердцевины, и радиус-вектора противоположны) достигаются низкие волноводные потери на уровне до 10 дБ/км в нескольких спектральных полосах, шириной более октавы [93,94]. Структура волновода такого типа с одной стороны достаточна проста в производстве по сравнению с другими антирезонансными волокнами, например волокнами с решеткой типа кагоме, но с другой стороны изменение параметров капилляров, толщины их стенок, количества и размера, позволяет очень точно управлять дисперсионными свойствами и положением окон пропускания. Уменьшение толщины стенки капилляра до значения порядка 500 нм позволяет приблизить положение первого резонанса к границе видимого и инфракрасного спектральных диапазонов, формируя таким образом окно пропускания с низкими волноводными потерями в ближнем и среднем инфракрасном диапазоне шириной более двух октав. В то же время изменение давления газа, заполняющего полую сердцевину волокна, позволяет в пределах полосы пропускания управлять положением точки нуля дисперсии групповых скоростей фундаментальной моды [240].

Последовательные эксперименты, выполненные в нашей лаборатории на протяжении нескольких лет, позволили установить, что точный подбор параметров структуры полого антирезонансного фотонно-кристаллического волновода, давления газа, а также начальной энергии фемтосекундных импульсов ближнего и среднего инфракрасного диапазона вплоть до уровня 100 мкДж позволяют реализовать специфичный режим их нелинейно-оптического преобразования, приводящий к генерации мультиоктавного суперконтинуума, а также солитонной самокомпрессии импульсов с их сжатием до длительностей менее одного периода поля на центральной длине волны.

Экспериментальная работа с полым антирезонансным фотонно-кристаллическим волноводом в нашей лаборатории началась с использованием фемтосекундной иттербиевой лазерной системы, находящейся в распоряжении научной группы в Российском Квантовом Центре (ООО «МЦКТ»). Эта лазерная система отличается высокой стабильностью излучения и возможностью генерации фемтосекундных импульсов среднего инфракрасного диапазона с энергиями до 100 мкДж с частотой повторения 1 кГц. Учитывая, что в процессе нелинейно-оптического преобразования фемтосекундного

импульса наибольшее уширение спектра как правило происходит в сторону коротких длин волн, смещение начального спектра импульса в длинноволновую область обеспечивает возможность сформировать наиболее широкий спектр суперконтинуума, заполнив большую часть первого спектрального окна пропускания волновода. Экспериментальная схема состоит из согласующего числовую апертуру излучения телескопа, аттенюатора и фокусирующей линзы, обеспечивающей максимальную эффективность заведения импульса на центральной длине волны 3.2 мкм в полую сердцевину фотонно-кристаллического волокна (рис. 4.2.1а). Волокно было помещено в прозрачный стеклянный капилляр, герметично закрепленный с двух торцов в газовых ячейках, заполненных аргоном под давлением 1-16 атмосфер. Использование стеклянного капилляра позволяло визуально контролировать процесс спектрального уширения и генерации суперконтинуума по вытекающему по длине волновода видимому свечению, а также делало установку более гибкой: стеклянный капилляр легко скалывался до нужной длины, что позволяло проводить эксперименты в широком диапазоне значений длины волокна от единиц сантиметров до метра и при различных давлениях вплоть до 16 атмосфер. Верхняя граница давления в экспериментах определялась прочностью 2 мм выходного окна газовой ячейки, выполненного из фторида кальция, относительно хрупкого материала по сравнению с сапфировым входным окном, но обладающего меньшей дисперсией групповых скоростей.

Для характеристики спектрального состава излучения на выходе из волновода полученный суперконтинуум фокусировался отражательной оптикой на входные щели трёх спектрометров, позволяющих регистрировать спектры в диапазоне нескольких октав от ультрафиолетового до среднего ИК диапазона. Временная огибающая и спектральная фаза импульса накачки на длине волны 3.2 мкм определялись при помощи метода оптического стробирования с разрешением по частоте (FROG) на основе генерации второй гармоники (SHG) в кристалле AGS толщиной 0.5 мм. Для характеристики поперечного профиля пучка в среднем ИК диапазоне нами использовалась пироэлектрическая камера, устанавливаемая после кремниевой пластинки, отсекающей излучение на длинах волн короче 1.1 мкм.

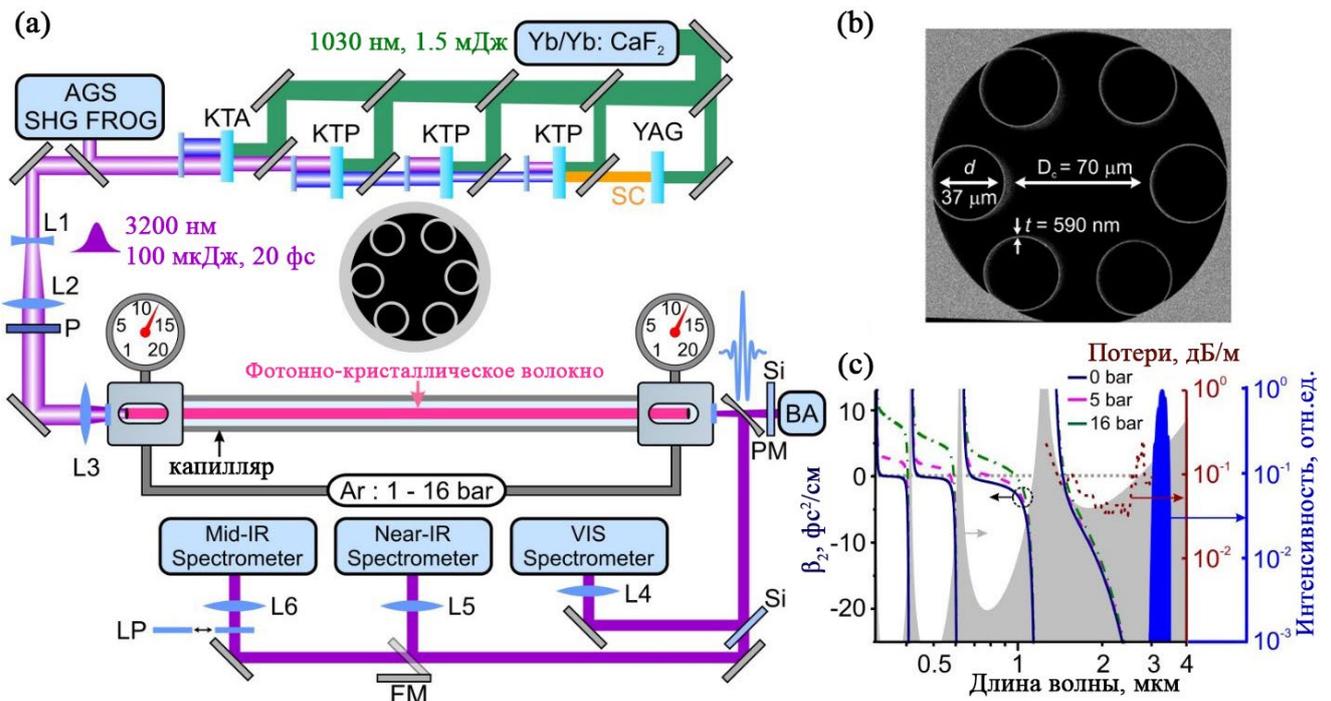


Рис. 4.2.1. (а) Схема экспериментальной установки:  $\text{Yb/Yb:CaF}_2$  – задающий фемтосекундный иттербиевый генератор с регенеративным усилителем chirпированных импульсов на основе кристалла  $\text{Yb:CaF}_2$ ; SC – излучение суперконтинуума; L1-6 – линзы; P – ретищечный поляризатор; PCF – полое фотонно-кристаллическое (ФК) волокно; PM – внеосевое параболическое зеркало; FM – откидывающееся зеркало; LP – длинноволновый фильтр, пропускающий излучение на длине волны более 3.6 мкм; ВА – анализатор профиля пучка. (б) Изображение поперечного сечения ФК волновода, полученное при помощи сканирующего электронного микроскопа. (в) Зависимость дисперсии групповых скоростей волновода, заполненного аргоном под давлением 0 (сплошная синяя кривая), 5 (пунктирная розовая кривая) и 16 (зелёная штрихпунктирная кривая) атмосфер. Также на графике показаны спектр потерь в волокне (коричневая пунктирная линия – эксперимент, серая заливка – расчёт) и спектр исходного импульса накачки (синяя заливка).

Для формирования предельно короткого импульса со спектром шириной более октавы, в процессе нелинейно-оптического преобразования, требуется волновод, обладающий специальными свойствами: высокой прозрачностью и аномальной дисперсией групповых скоростей в широком спектральном диапазоне вокруг центральной длины волны импульса накачки. Выполнение данных свойств возможно при использовании полого волновода с поперечной структурой оболочки в виде кольца тонкостенных капилляров (рис. 4.2.1б) [94,239]. Требуемая комбинация прозрачности и дисперсионных свойств волновода в нужном спектральном диапазоне определяется структурой используемого в наших экспериментах фотонно-кристаллического волновода: полая сердцевина диаметром  $D_c \approx 70$  мкм окружена массивом из шести идентичных тонкостенных кварцевых капилляров диаметром  $d \approx 35$  мкм и толщиной стенки  $t \approx 0.59$  мкм. Выбор данного значения толщины стенки капилляра является критически важным для осуществления компрессии импульса до предельно коротких длительностей. Спектр волноводных потерь и профиль дисперсии групповых скоростей, измеренные экспериментально (коричневая сплошная линия) и рассчитанные при помощи модели, предложенной Цейсбергом и Шмидтом (серая заливка)

[241], представлены на рис. 4.2.1с. Дисперсия волокна, заполненного аргоном в соответствии с моделью задаётся выражением:

$$\begin{aligned} \operatorname{Re}(n_{eff}) &= n - \frac{2.405^2}{2k_0^2 n a^2} - \frac{2.405^2}{k_0^3 n^2 a^3} \frac{\cot \varphi}{\sqrt{\varepsilon - 1}} \frac{\varepsilon + 1}{2}, \\ \operatorname{Im}(n_{eff}) &= \mu \frac{1 + \cot \varphi}{\varepsilon - 1} \frac{2.405^3}{k_0 n a^4} \frac{\varepsilon^2 + 1}{2}, \varphi = k_0 t \sqrt{n_g^2 - n^2}, \varepsilon = \frac{n_g^2}{n^2}, \end{aligned} \quad (4.1)$$

где  $n$  – показатель преломления аргона, задаваемый формулой Селлмейера [242],  $k_0 = \omega/c$  – волновое число в вакууме,  $a = 35$  мкм – радиус сердцевинки волокна,  $t = 590$  нм – толщина его капилляров,  $n_g = 1.45$  – показатель преломления капилляров и оболочки волокна (кварц),  $\mu = 0.04$  – множитель, нормирующий волноводные потери по Шмидту на известное значение для используемого волокна 0.1 дБ/м на длине волны 2 мкм.

Используемый образец волокна демонстрирует высокую прозрачность и аномальную дисперсию групповых скоростей в пределах всего спектра импульса накачки, получаемого на выходе оптического параметрического усилителя (синяя заливка на рис. 4.2.1с), что позволяет осуществить эффективную солитонную самокомпрессию 200-фс импульса на центральной длине волны 3.2 мкм. На большем масштабе спектра пропускание волновода является кусочно-непрерывным, состоящим из нескольких полос пропускания с широкой областью аномальной дисперсии групповых скоростей в каждой из этих полос.

Плавное повышение энергии импульса накачки на входе в волновод или увеличение давление газа внутри волокна приводит к постепенному уширению спектра распространяющегося импульса вплоть до генерации мультиоктавного суперконтинуума, простирающегося от 300 нм до 4 мкм. Для выявления физических механизмов данного явления и определения условий, при которых возможна генерация предельно коротких импульсов были проведены несколько серий измерений спектра излучения в широком диапазоне длин волн на выходе полого антирезонансного фотонно-кристаллического волновода при различных начальных энергиях  $W_0$  импульса накачки среднего ИК диапазона и фиксированном давлении аргона  $p \approx 5$  атмосфер, а также наоборот, при фиксированной достаточно высокой энергии входного импульса  $W_0 \approx 47$  мкДж и переменном давлении газа. Обе серии измерений показывают схожую динамику спектрально-временной эволюции фемтосекундного импульса при низких значениях энергии и давления спектр импульса накачки демонстрирует практически симметричное уширение, что указывает на определяющую роль явления фазовой самомодуляции (ФСМ), возникающей в процессе распространения его вдоль волокна. При увеличении энергии  $W_0 > 27$  мкДж в спектре излучения становятся различимы третья и пятая оптические гармоники, которые при дальнейшем увеличении энергии сливаются с высокочастотным крылом спектра импульса накачки, формируя непрерывный мультиоктавный суперконтинуум. Типичный спектр суперконтинуума на выходе из волокна, измеренный при  $W_0 \approx 45$  мкДж и давлении аргона около 5 атмосфер, простирается примерно от 300 нм до 4.2 мкм. При таких уровнях входной энергии спектр излучения демонстрирует

существенное смещение в синюю область, указывая на влияние эффектов самоукручения и ионизации.

Важно отметить, что при высоком давлении аргона  $p$  и большой входной энергии импульса накачки  $W_0$ , начальная стадия медленного, постепенного спектрального уширения (в пределах первых 15 - 20 см волновода на рис. 4.2.2а и рис. 4.2.4d) сменяется чрезвычайно быстрым, буквально взрывным увеличением спектральной ширины более чем на одну октаву за несколько сантиметров (20 - 25 см на рис. 4.2.2а). В эксперименте местоположение точки взрывного уширения спектра визуально наблюдается как чёткая граница возникновения видимого сквозь оболочку волокна излучения. Благодаря тому, что волокно помещено в стеклянный капилляр, данная точка может быть обнаружена и использована для повышения достоверности численной модели. На рис. 4.2.2а данная область отмечена вертикальной пунктирной линией, показывая хорошее соответствие экспериментальным результатам.

Для идентификации процессов, приводящих к таким спектрально-временным преобразованиям импульса накачки среднего ИК-диапазона при распространении в полом антирезонансном фотонно-кристаллическом волноводе, в нашей научной группе было выполнено компьютерное моделирование, основанное на численном решении обобщённого нелинейного уравнения Шредингера, модифицированного для учёта влияния на эволюцию поля сверхбыстрой ионизации и явления генерации оптических гармоник:

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial \zeta} A(\omega, \zeta) = & i\tilde{D}(\omega)A(\omega, \zeta) - \alpha(\omega)A(\omega, \zeta) \\ + i\frac{\omega}{c}\tilde{F} \left\{ \left[ n_2 I(\eta, \zeta) + \frac{\chi^{(3)}}{4n_0^2 c \varepsilon_0} A^2(\eta, \zeta) \right] A(\eta, \zeta) \right\} - & \tilde{F} \left\{ \frac{U_i W [\rho_0 - \rho(\eta, \zeta)]}{2I} A(\eta, \zeta) \right\} \\ - \left[ \frac{i\omega_0^2 \omega}{2cn_0 \rho_c (\omega^2 + \tau_c^{-2})} + \frac{\sigma(\omega)}{2} \right] & \tilde{F} [\rho(\eta, \zeta) A(\eta, \zeta)], \end{aligned} \quad (4.2)$$

где  $A(\eta, \zeta) = (2n_0)(c\mu_0)^{-1} \int_0^\infty E(\omega, \zeta) e^{-\omega\eta} d\omega$ ,  $E(\eta, \zeta)$  – физическое электрическое поле, принимающее действительные значения,  $A(\omega, \zeta)$  – его Фурье-преобразование,  $\eta$  – время в бегущей системе координат,  $\omega$  – частота,  $\zeta$  – координата вдоль направления распространения импульса,  $I(\eta, \zeta) = |A(\eta, \zeta)|^2$  – интенсивность поля,  $\tilde{D} = \beta(\omega) - \omega/v_g$  – дисперсионный оператор,  $v_g = (\partial\beta/\partial\omega|_{\omega_0})^{-1}$ ,  $\beta(\omega)$  – волновое число,  $\omega_0$  – центральная частота входного лазерного поля,  $\chi^{(3)}$  – нелинейная оптическая восприимчивость третьего порядка,  $\alpha(\omega)$  – линейные потери, связанные с вытеканием основной моды,  $\tilde{F}$  – оператор преобразования Фурье,  $c$  – скорость света в вакууме,  $n_0$  – коэффициент преломления на частоте  $\omega_0$ ,  $\rho$  – электронная плотность,  $W(I)$  – скорость фотоионизации,  $U_i = U_0 + U_{osc}$ ,  $U_0$  – потенциал ионизации,  $\rho_c = \omega_0^2 m_e \varepsilon_0 / e^2$  – критическая плотность плазмы,  $m_e$  и  $e$  – масса и заряд электрона, соответственно,  $\rho_0$  – начальная плотность нейтральных молекул,  $\sigma$  – обратное поперечное сечение тормозного излучения.

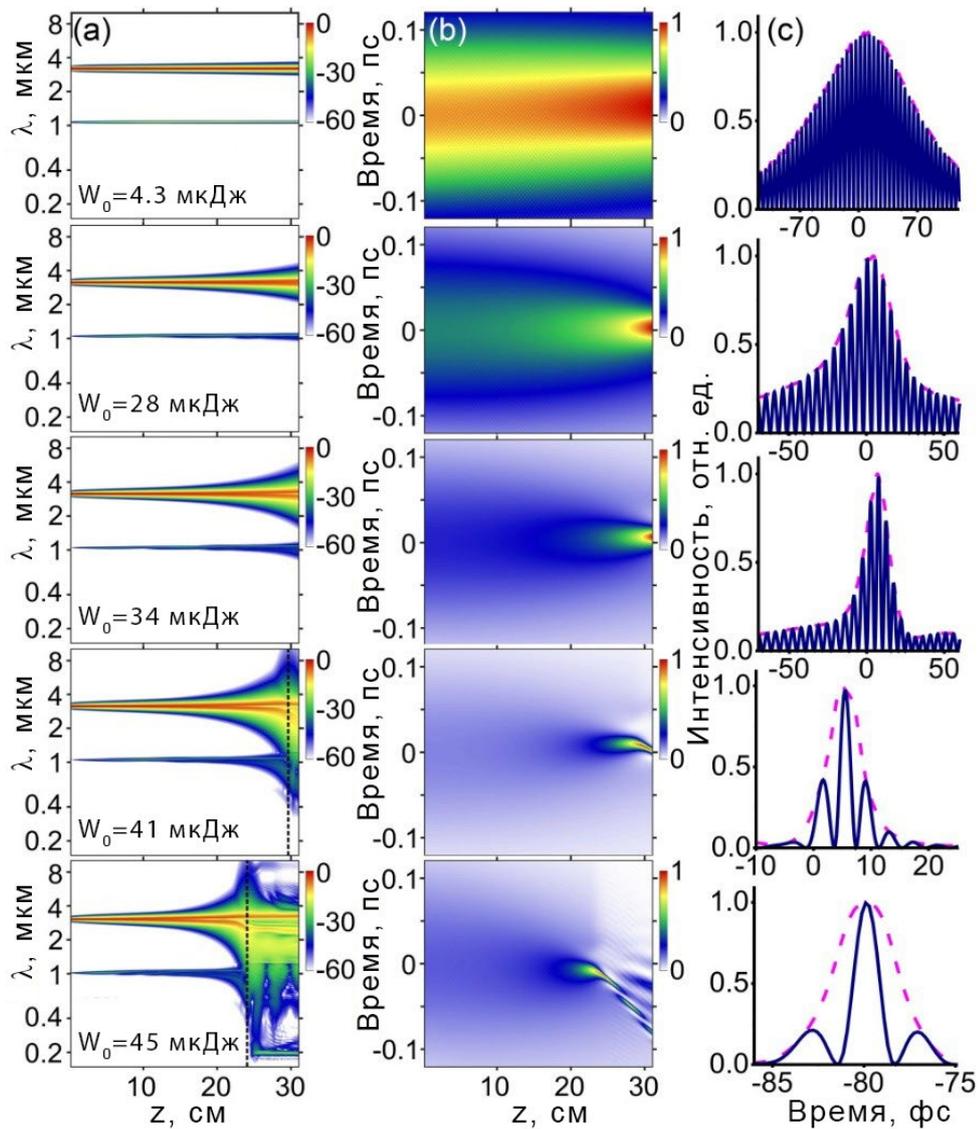


Рис. 4.2.2. Рассчитанные теоретически двумерные карты (а) спектральной и (b) временной эволюции сверхкороткого импульса среднего ИК диапазона в полном антирезонансном фотонно-кристаллическом волноводе при различных значениях входной энергии и давлении аргона  $p \approx 4.9$  атм. Вертикальная пунктирная линия отмечает границу видимого излучения, вытекающего из волновода сквозь оболочку, наблюдаемую в эксперименте. (с) Моделирование сжатых импульсов на выходе волновода. Огибающие импульсов изображены пунктирной линией.

Данное обобщение нелинейного уравнения Шредингера включает в рассмотрение все ключевые эффекты, играющие существенную роль при волноводном распространении сверхкороткого импульса среднего ИК-диапазона: дисперсию, линейные волноводные потери, керровскую нелинейность, явление генерации оптических гармоник, самоукручение фронта импульса, ионизационные потери, а также ионизационные дисперсию и нелинейность. Уравнение эволюции поля решалось совместно с уравнением для эволюции плотности плазмы:

$$\frac{\partial \rho}{\partial \eta} = W(I) + \sigma(\omega_0) U_i^{-1} \rho I, \quad (4.3)$$

которое учитывает фото- и столкновительную ионизацию. Скорость фотоионизации  $W(I)$  рассчитывалась при помощи модификации Попова, Переломова и Терентьева формализма Келдыша, а обратное сечение рассеяния тормозного излучения  $\sigma$  включена посредством формулы в модели Друде:

$$\sigma(\omega) = e^2 \tau_c [m_e \varepsilon_0 n_0 c (1 + \omega^2 \tau_c^2)]^{-1}, \quad (4.4)$$

где  $\tau_c$  – время столкновений.

Начальное лазерное поле определено в нашей модели в соответствии с временной огибающей и спектром импульса накачки на центральной длине волны 3.2 мкм, использовавшегося в наших экспериментах. Нелинейный Керровский показатель преломления  $n_2$  для полого фотонно-кристаллического волновода, заполненного аргоном, был задан выражением  $n_2 \approx 1.1 \times 10^{-19} (p/p_0) \text{ см}^2/\text{Вт}$ , где  $p_0$  – атмосферное давление, и нелинейная оптическая восприимчивость третьего порядка для процесса генерации третьей гармоники  $\chi^{(3)} \approx 7.5 \times 10^{-22} (p/p_0) \text{ см}^2/\text{В}^2$ . Потенциал ионизации аргона  $U_0 \approx 15.76 \text{ эВ}$ , и время столкновений в модели Друде  $\tau_c \approx 190 (p/p_0) \text{ фс}$ .

Принимая во внимание спектральную ширину суперконтинуума, формирующегося на выходе волновода и простирающуюся на несколько октав, использование при описании Керровской нелинейности коэффициента  $n_2$ , не зависящего от частоты и интенсивности поля, безусловно, является упрощением. И дисперсионная зависимость, и зависимость от интенсивности поля для коэффициента  $n_2$  должны быть включены в рассмотрение [243–245] для более строгого анализа процесса формирования столь протяжённого суперконтинуума в широком диапазоне интенсивностей поля накачки и давлений газа. Однако, замкнутые численные модели, позволяющие интегрировать уравнение эволюции поля совместно с уравнениями для нелинейного отклика, с учётом его зависимости от частоты и интенсивности, на данный момент ещё не разработаны.

Двумерные карты на рис. 4.2.2а иллюстрируют спектральное преобразование импульса накачки среднего ИК диапазона в полом фотонно-резонансном волноводе, рассчитанное для различных значений входной энергии импульса  $W_0$ . Данные карты демонстрируют смещение спектра в область высоких частот, вызванное самоукручением фронта импульса и ионизационными изменениями показателя преломления, по мере распространения импульса по волокну. Спектры излучения на выходе из волокна ( $z = 31 \text{ см}$  на рис. 4.2.4а) хорошо согласуются с экспериментальными данными.

Проанализировав и подтвердив предсказательные возможности нашей численной модели, мы провели анализ спектрально-временных двумерных карт с точки зрения временного преобразования сверхкоротких импульсов среднего ИК диапазона (рис. 4.2.2б). Существенная самокомпрессия является наиболее важной особенностью, наблюдаемой в наших расчётах эволюции импульсов. Однако процесс самокомпрессии, и что наиболее важно – минимальная длительность импульса, достигаемая на длине наилучшей самокомпрессии, сильно зависит от значения начальной энергии импульса  $W_0$  и давления газа  $p$ . При небольшой энергии импульса и низком давлении длительность среднего ИК диапазона  $\tau_p$  монотонно убывает по мере распространения излучения вдоль волновода. Для

больших значений  $W_0$  и  $p$ , с другой стороны, зависимость  $\tau_p(\zeta)$  демонстрирует хорошо различимые колебания (рис. 4.2.2b и рис. 4.2.4e), типичные для дышащей солитонной динамики [55,90].

На рис. 4.2.3 представлены для сравнения временные и спектральные карты, отражающие динамику идеального солитона (рис. 4.2.3a,e), определяемую как решение нелинейного уравнения Шредингера, и эволюцию импульса среднего ИК диапазона, рассчитанную при помощи нашей численной модели с учётом всех её составляющих (рис. 4.2.3d,h), а также при «выключении» слагаемых, отвечающих за ионизацию и/или самоукручение фронта импульса (рис. 4.2.3b,c,f,g). Динамика идеального солитона определяется значением солитонного числа  $N = (l_d/l_{nl})^{1/2}$ , где  $l_d = \tau^2/|\beta_2|$ ,  $l_d$  – дифракционная длина,  $l_{nl} = \lambda(2\pi n_2 l)^{-1}$  – нелинейная длина,  $\tau$  – длительность импульса,  $\beta_2$  – коэффициент дисперсии групповых скоростей,  $\lambda$  – длина волны.

Идеальный солитон, в соответствии с решением нелинейного уравнения Шредингера, демонстрирует хорошо известную «дышащую» динамику, состоящую из повторяющихся циклов самокомпрессии и растяжения импульса (рис. 4.2.3a,e) [90]. Дисперсия высокого порядка модифицирует такую динамику, приводя к расщеплению солитона [246] и уменьшению длины самокомпрессии (рис. 4.2.3b,f). При приближении длительности импульса в процессе самокомпрессии к периоду оптического поля эффекты, связанные с образованием ударной волны огибающей, начинают играть заметную роль в спектрально-временной динамике, приводя к укрупнению заднего фронта импульса (рис. 4.2.3h) и усилению смещения спектра в область высоких частот (рис. 4.2.3d).

При больших значениях энергии импульса  $W_0$  и давления газа  $p$  самокомпрессия развивается на меньших длинах распространения и приводит к формированию более коротких и интенсивных импульсов, при большем влиянии эффекта самоукручения фронта и соответствующего ему смещения спектра в область высоких частот. В то же время, при достижении значений  $W_0$  и  $p$ , необходимых для осуществления солитонной самокомпрессии до длительностей менее одного периода оптического поля, существенное влияние на спектрально-временную эволюцию излучения начинают играть эффекты, связанные с ионизацией (рис. 4.2.3c,g). Сверхбыстрая ионизация сама по себе приводит к сильному смещению спектра в синюю область, приводя к возникновению важных эффектов, влияющих на распространение предельно коротких лазерных импульсов в заполненном газом полем ФК волноводе [235,247–249]. Однако при рассмотрении физического сценария, в котором солитонная самокомпрессия действует совместно с самоукручением фронта импульса, приводя к формированию субпериодных волновых всплесков, сверхбыстрая ионизация выступает в роли ограничивающего механизма, приводя к существенным энергетическим потерям. При высоких значениях  $W_0$  и  $p$  коэффициент пропускания волновода уменьшается с 73% (полученных при низких давлении и энергии импульса, определяющихся в основном эффективностью заведения излучения в волокно) до примерно 30% при  $W_0 \approx 45$  мкДж и  $p \approx 4.7$  атм. Потери энергии, связанные с ионизацией, приводят к уменьшению пиковой мощности солитонов, в конечном итоге не повышая, а снижая эффективность смещения спектра в синюю область,

и ограничивая минимальное достижимое значение длительности импульса в точке наилучшей самокомпрессии.

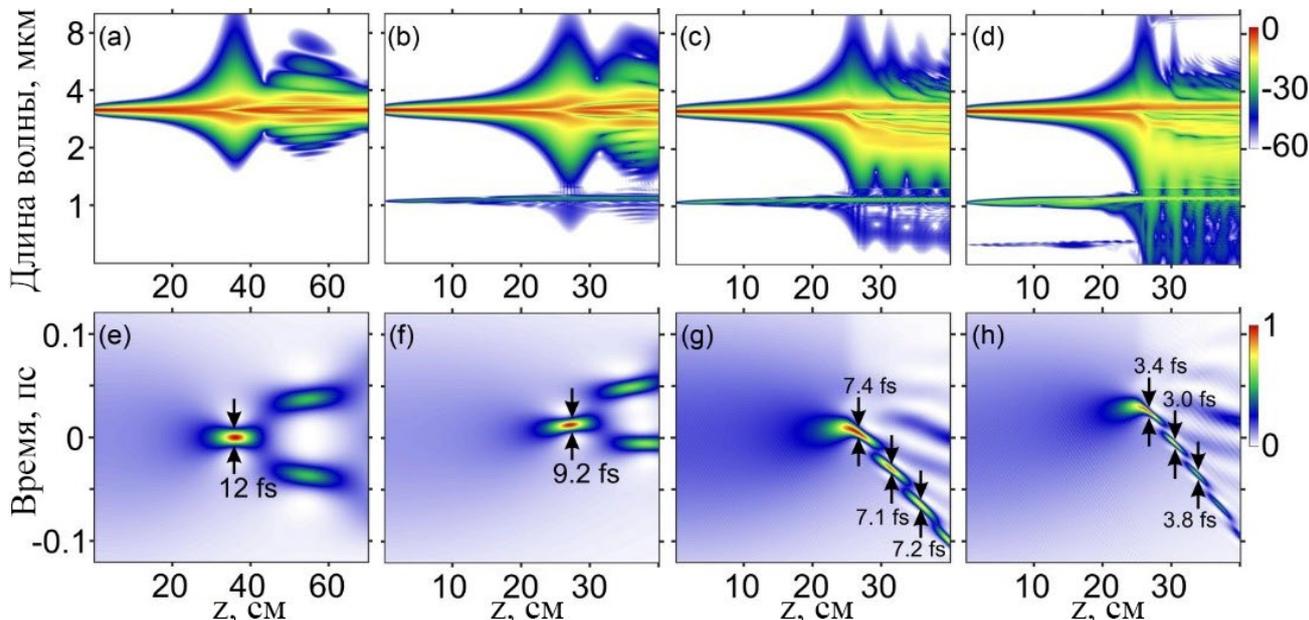


Рис. 4.2.3. (a)-(d) Карты спектральной и (e)-(h) временной эволюции импульса среднего ИК диапазона с начальной энергией  $W_0 = 42$  мкДж в полом фотонно-кристаллическом волокне с оболочкой в виде одного кольца тонкостенных капилляров заполненном аргоном под давлением  $p \approx 4.9$  атм., полученные в результате численного решения (a), (e) нелинейного уравнения Шредингера, (b), (f) обобщённого нелинейного уравнения Шредингера (ОНУШ) без учёта слагаемых, отвечающих за ионизацию и самоукручение фронта импульса, (c), (g) ОНУШ без учёта самоукручения фронта импульса, и (d), (h) в результате применения полной модели ОНУШ.

Среди других эффектов, приводящих к потерям энергии при распространении импульса с высокой энергией при высоком давлении газа, можно выделить возбуждение волноводных мод сердцевинны высокого порядка, вытекание излучения сквозь оболочку, возбуждение излучающих мод [250]. Одним из примеров такого процесса, приводящего к энергетическим потерям, является четырёхволновое смешение между модами сердцевинны ФК волновода и модами стенок капилляров, составляющих его оболочку, поддержанное фазовым синхронизмом [251], и приводящее к образованию в спектре суперконтинуума, измеренного при давлении более 4.2 атм., хорошо различимого пика на длине волны около 1.25 мкм. Суммарная энергия этого пика, однако, не превышает 3% от полной энергии суперконтинуума на выходе из волновода, что является пренебрежимо малой величиной по сравнению с ~70% коэффициентом потерь, наблюдаемым в режиме высоких значений  $W_0$  и  $p$ . Данный результат хорошо согласуется с численным моделированием, выполненным при «выключении» из рассмотрения всех источников волноводных потерь, в предположении, что потери энергии на вытекание излучения из основной моды ФК волокна не превышает значения 2-3% во всех реализуемых режимах распространения импульса в наших экспериментах.

Представленные на рис. 4.2.3 результаты моделирования показывают, что пропускание и дисперсионный профиль полого ФК волновода, использованного в наших

экспериментах, хорошо подходит для формирования предельно коротких лазерных импульсов длительностью менее одного периода поля, формирующихся в результате солитонной самокомпрессии. При достаточно высоких значениях энергии импульса  $W_0$  и давления газа  $p$  солитоны при распространении претерпевают несколько циклов самокомпрессии (рис. 4.2.3h), формируя в результате такой осциллирующей динамики волновые всплески длительностью менее одного периода поля. В спектральном представлении таким предельно коротким импульсам соответствует мультиоктавный суперконтинуум, регистрируемый на выходе из волновода (рис. 4.2.3d).

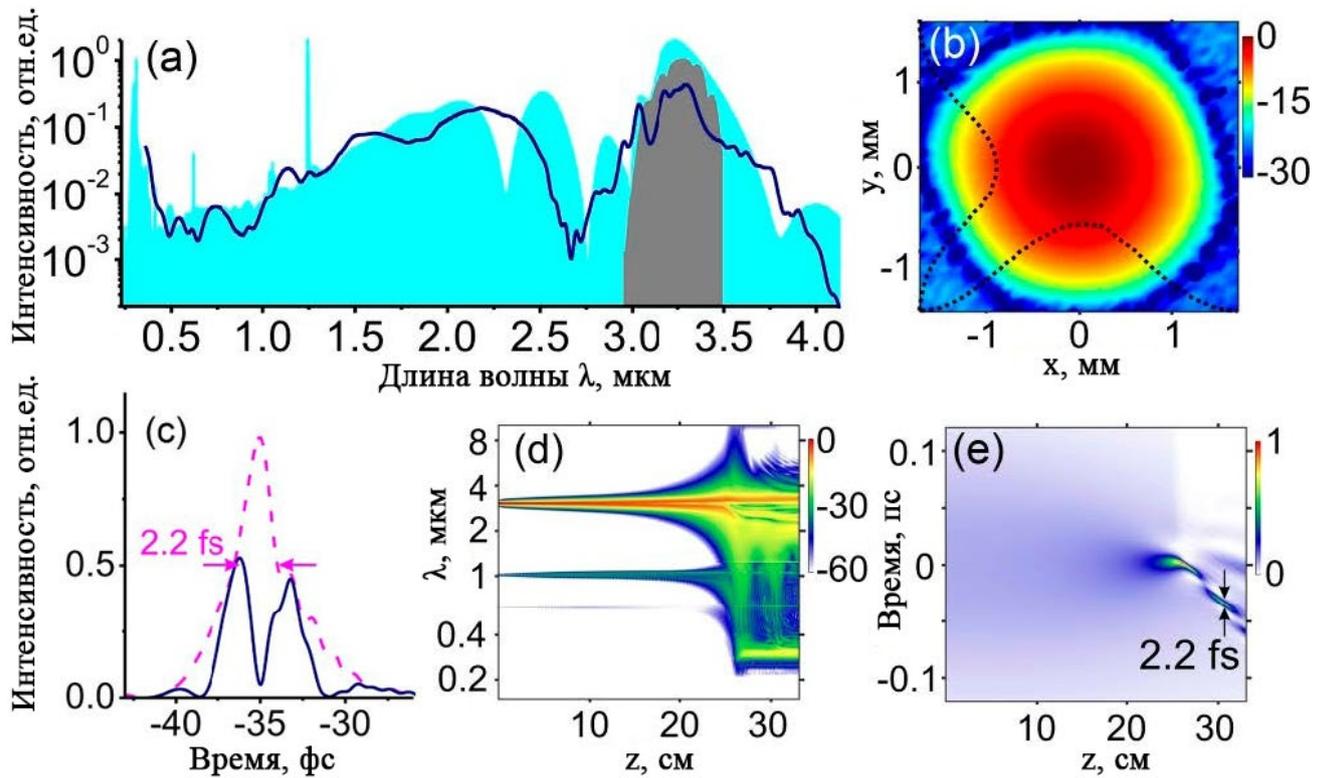


Рис. 4.2.4. (a) Спектр излучения на выходе ( $z = 31$  см) фотонно-кристаллического волокна, заполненного аргоном под давлением  $p \approx 16$  атм. для начальной энергии импульса накачки  $W_0 \approx 35$  мкДж: (сплошная линия) эксперимент, (голубая заливка) моделирование. Исходный спектр импульса накачки показан серой заливкой. (b) Профиль пучка на выходе волновода, измеренный в дальней зоне, одномерные сечения профиля вдоль двух координат изображены на рисунке пунктирными линиями. (c) Моделирование временного профиля сжатого импульса на выходе из волновода для  $p \approx 16$  атм. и  $W_0 \approx 35$  мкДж. (d, e) Двумерные карты спектрального (d) и временного (e) преобразования импульса среднего ИК диапазона в полном ФК волноводе, заполненном газом.

На рис. 4.2.4a представлен один из вариантов спектра такого суперконтинуума, измеренный на выходе ФК волокна длиной 31 см для начальной энергии импульса  $W_0 \approx 35$  мкДж и  $p \approx 16$  атм. Измеренный поперечный профиль пучка суперконтинуума на выходе волокна (рис. 4.2.4b) демонстрирует гладкое распределение интенсивности. Профиль пучка в дальней зоне не позволяет однозначно определить модовый состав излучения всего суперконтинуума. Тем не менее, учитывая результаты анализа волноводных потерь [252],

показывающих, что потери фундаментальной моды почти на два порядка меньше потерь мод высокого порядка, экспериментальные результаты хорошо согласуются с физическим сценарием, в котором генерация суперконтинуума происходит преимущественно в фундаментальной волноводной моде.

В процессе спектрально-временной эволюции поля, ответственной за генерацию мультиоктавного суперконтинуума (рис. 4.2.4d,e), происходит эффективная самокомпрессия импульса накачки, приводящая к формированию на расстоянии  $z=31$  см от входного торца волокна предельно короткого лазерного импульса, полная ширина на полувысоте (FWHM) которого составляет всего 2.2 фс (рис. 4.2.4c), что соответствует примерно 0.31 периода поля на центральной длине волны  $\lambda_c = 2.1$  мкм. Энергия такого импульса, длительностью 2.2 фс составила около 5 мкДж ( $\approx 30\%$  от полной энергии на выходе волокна длиной 31 см), что соответствует пиковой мощности порядка 1.2 ГВт.

Структура фотонно-кристаллического волокна является основным фактором, определяющим способность волновода поддерживать солитонную самокомпрессию импульса до длительности менее одного периода поля. Для иллюстрации данного утверждения нами было проведено сравнение (рис. 4.2.5) эффективности самокомпрессии импульса при распространении в полом ФК волноводе с параметрами, соответствующими реальному образцу и описанными выше, и волноводе с такой же структурой оболочки в виде одного кольца тонкостенных капилляров, но с изменёнными размером полости и толщиной стенок капилляров (рис. 4.2.1b). Для второго ФК волновода вместо значений  $D_c \approx 70$  мкм и  $t \approx 0.59$  мкм, соответствующих использовавшемуся в наших экспериментах ФК волокну, мы выбрали значения параметров  $D_c \approx 88$  мкм и  $t \approx 1.1$  мкм, что соответствует волокну, использованному ранее в экспериментальных работах других авторов [253]. Длина отрезка волокна  $L = 17$  см, давление заполняющего полую сердцевину аргона  $p = 12$  атм, и исходная энергия импульса накачки  $W_0 = 65$  мкДж, были выбраны в соответствие с реальными значениями в экспериментальной работе [253].

Зависимости на рис. 4.2.5a,b демонстрируют высокую чувствительность дисперсионного профиля волновода к изменению толщины стенок капилляров, окружающих полую сердцевину ФК волокна. Увеличение толщины стенок приводит к смещению длин волн межмодовых резонансов, что приводит к сужению полос прозрачности и областей аномальной дисперсии групповых скоростей. Особенно губительное влияние на спектрально-временную эволюцию импульса оказывает межмодовый резонанс вблизи длины волны 2.4 мкм, наблюдаемый в спектре пропускания и дисперсионном профиле ФК волокна с толщиной стенок капилляров  $t = 1.1$  мкм (рис. 4.2.5b), подавляя спектральное уширение импульса среднего ИК диапазона в область длин волн короче 2.4 мкм (рис. 4.2.5d), ограничивая при этом минимальную достижимую длительность импульса на уровне около 14.5 фс. Данное значение минимальной длительности, рассчитанное при помощи нашей численной модели, очень хорошо соотносится с длительностью импульса, полученной в экспериментах [253]. Полученный в результате моделирования спектр суперконтинуума, формирующегося в волокне с

толщиной стенок капилляров  $t = 1.1$  мкм (рис. 4.2.5d,f), и временная огибающая сжатого импульса на выходе ФК волокна также хорошо соответствуют результатам работы [253].

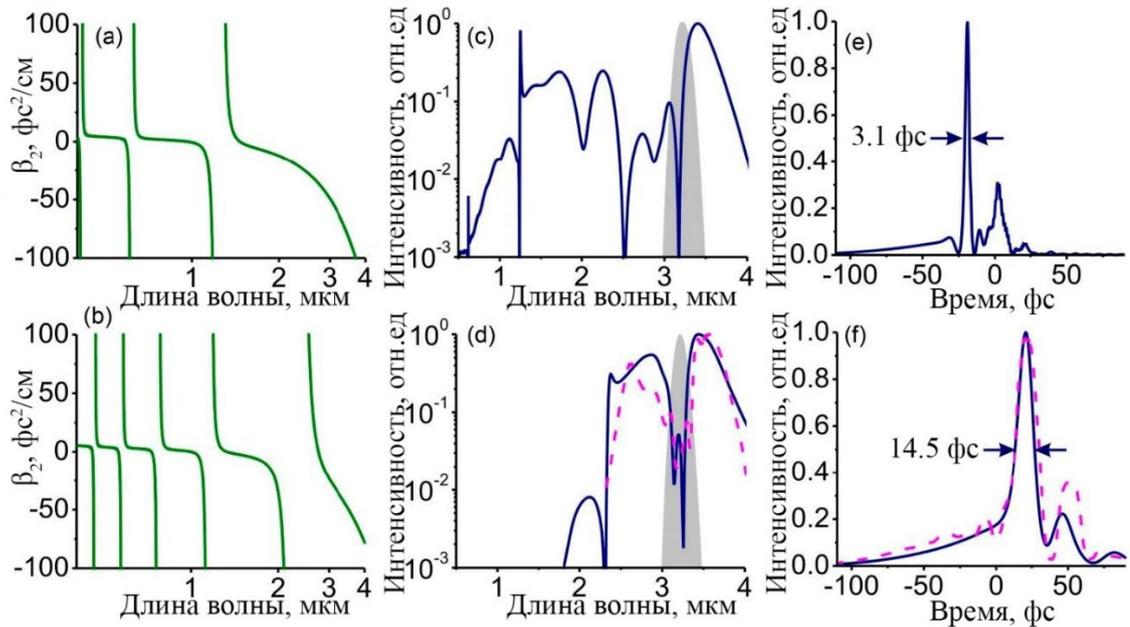


Рис. 4.2.5. (a), (b) Дисперсионный профиль полого ФК волокна с оболочкой в виде одного кольца тонкостенных капилляров, параметры структуры которого соответствуют волокну, (a), (c), (e) использованному в наших экспериментах:  $D_c \approx 70$  мкм и  $t \approx 0.59$  мкм, и (b), (d), (f) использованному в работе [253]:  $D_c \approx 88$  мкм и  $t \approx 1.1$  мкм, рассчитанные при помощи модели, предложенной Цейсбергом и Шмидтом. (c), (d) Спектр и (e), (f) временная огибающая импульса на выходе из волокна: (синяя сплошная линия) моделирование и (пунктирная линия) эксперимент [253]. Исходный спектр импульса накачки изображён серой заливкой. Волокно заполнено аргоном под давлением 12 атм. Энергия импульса накачки (c), (e)  $W_0 \approx 40$  мкДж и (d), (f)  $W_0 \approx 65$  мкДж, начальная длительность – 100 фс. Длина волокна составляет (c), (e) 15 см и (d), (f) 17 см.

Для экспериментальной характеристики временного профиля импульса на выходе фотонно-кристаллического волновода нами был использован метод кросскорреляционного оптического стробирования с разрешением по частоте (XFROG) на основе нелинейного процесса четырёхволнового смешения исследуемого излучения среднего инфракрасного диапазона с опорным сверхкоротким импульсом ближнего ИК диапазона в газовой среде. В качестве среды для четырёхволнового взаимодействия выступал воздух, нелинейные оптические свойства которого позволяют с достаточно высокой эффективностью осуществить  $\omega$ -конверсию спектра исследуемого импульса с энергией в единицы микроджоулей в процессе вида  $\omega_{XFROG} = 2\omega_p - \omega_{MIR}$ , где  $\omega_p$  – частота излучения опорного импульса,  $\omega_{MIR}$  – частота исследуемого излучения,  $\omega_{XFROG}$  – частота результирующего излучения, регистрируемого в процессе измерений. Излучение суперконтинуума на выходе волновода коллимировалось внеосевым параболическим зеркалом, не вносящим искажений в спектральную фазу в связи с отсутствием хроматических aberrаций, и затем фокусировалось в воздух другим параболическим зеркалом со сквозным отверстием. В точке фокуса исследуемое излучение пересекалось с фокусированным пучком опорного импульса, пропущенного через отверстие в параболическом зеркале, взаимодействие с

которым приводило к генерации кросскорреляционного сигнала, зависящего от задержки между импульсами. В качестве опорного излучения нами был выбран доступный в эксперименте импульс накачки на выходе из регенеративного усилителя (его небольшая часть, не используемая в процессе параметрического усиления), длительностью около 200 фс, на центральной длине волны 1030 нм, с энергией вплоть до 100 мкДж. При использовании опорного излучения на длине волны 1030 нм в результате up-конверсии спектр суперконтинуума, простирающийся от 1 до 4.5 мкм эффективно отображается в область видимого и ближнего ИК излучения от 600 до 1000 нм, где может быть детектирован высокоэффективными кремниевыми спектрометрами видимого диапазона. Для характеристики временного профиля импульса на выходе волновода были измерены зависимости спектра излучения, формирующегося в результате четырёхволнового смешения, от задержки между исследуемым и опорным импульсами (рис. 4.2.6).

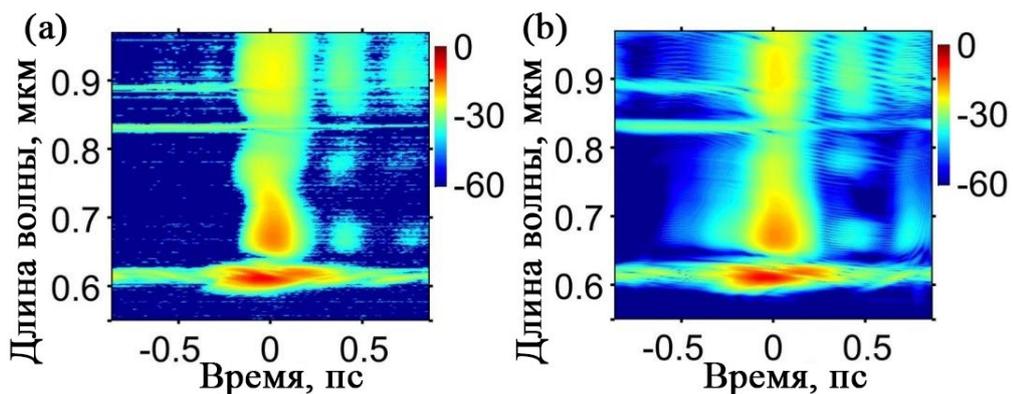


Рис. 4.2.6. (a) XFROG-спектрохронограмма, полученная сканированием задержки между опорным импульсом на длине волны 1030 нм и исследуемым излучением на выходе ФК волновода. Начальная энергия импульса накачки на входе в волокно  $W_0 = 34.5$  мкДж, давление аргона  $p = 16$  атмосфер, длина волокна  $L = 31$  см. (b) Результат подбора теоретической спектрохронограммы, соответствующей измеренной.

Полученная в результате восстановления спектрохронограммы спектральная фаза суперконтинуума соответствует импульсу длительностью 4.5 фс, что составляет немного больше половины периода на центральной длине волны (2.5 мкм). Однако, как выяснилось в результате нескольких последовательных измерений, ошибка алгоритма восстановления спектральной фазы для данной длительности опорного импульса (около 200 фс на длине волны 1030 нм) может приводить к разбросу значений длительности исследуемого импульса вплоть до 10 фс, что не позволяет с уверенностью говорить об успешной регистрации импульса, короче периода поля для данного спектрального диапазона. Для улучшения точности алгоритма восстановления спектральной фазы в данной схеме характеристики полученного мультиоктавного суперконтинуума была проведена дополнительная серия экспериментов по самокомпрессии опорного импульса на центральной длине волны 1030 нм в отрезке того же фотонно-кристаллического волновода, который использовался в основных экспериментах по компрессии импульсов излучения в среднем инфракрасном диапазоне.

В качестве нелинейно-оптической среды, в которой осуществлялась солитонная самокомпрессия опорного импульса, был использован более длинный отрезок того же полого антирезонансного волновода, заполненного для простоты эксперимента воздухом при атмосферном давлении. Длительность импульса на выходе контролировалась методом оптического стробирования с разрешением по частоте SHG FROG. Энергия импульса на входе в волновод плавно повышалась до 20 мкДж, при таких значениях энергии удалось зафиксировать наименьшую длительность импульса на выходе из волокна, которая была оценена в 65 фс. Дальнейшее увеличение входной энергии приводило к «разваливанию» исходного импульса в волноводе. В результате данного эксперимента удалось уменьшить длительность опорного импульса примерно в три раза при помощи чрезвычайно простой и надёжной схемы, формирующей сверхкороткий импульс с энергией 20 мкДж длительностью порядка 65 фс в фундаментальной пространственной моде полого фотонно-кристаллического волновода. Полученный импульс может быть использован в качестве опорного импульса в схеме характеристики мультиоктавного суперконтинуума на основе ЧВВ в воздухе со значительно лучшим временным разрешением по сравнению с исходным, однако его длительность всё ещё слишком велика для уверенной экспериментальной характеристики субпериодных импульсов среднего инфракрасного диапазона.

Таким образом, в полом антирезонансном фотонно-кристаллическом волноводе сгенерирован мультиоктавный суперконтинуум, простирающийся от 300 нм до 4.2 мкм, спектральная ширина которого соответствует импульсу, длительность которого по полувысоте составляет менее 0.5 периода поля на центральной длине волны  $\lambda_c = 2.1$  мкм. Энергия такого импульса около 5 мкДж, что соответствует пиковой мощности порядка 1.2 ГВт. Проведённые экспериментальные измерения методом FWM XFROG с опорным импульсом на центральной длине волны 1030 нм не позволили экспериментально подтвердить столь короткую длительность. Характеризация формирующегося предельно короткого импульса методом на основе четырёхволнового взаимодействия в газе требует для достижения необходимого временного разрешения дополнительного источника сверхкоротких опорных импульсов с длительностью одного порядка с исследуемым излучением. Это существенно усложняет экспериментальную схему и тем самым ограничивает его применимость. Альтернативные методы, основанные на измерении спектральной и пространственной интерференции, позволяют обойти данное ограничение и осуществить полную характеристику предельно коротких импульсов при смещении его в нелинейно-оптической среде с квазимонохроматическим излучением, в качестве которого обычно выступает chirпированный или прошедший фильтрацию узкополосным фильтром импульс накачки. Для экспериментального подтверждения полученных оценок, связанных с формированием в результате солитонной самокомпрессии сверхкоротких импульсов длительностью менее одного периода поля, была реализована одна из разновидностей техники прямого восстановления поля методом спектральной интерферометрии (SPIDER). В представляемой методике информация о фазе поля кодируется с помощью пространственной, а не частотной карты спектральной интерференции (X-SEA-F-SPIDER), позволяя существенно уменьшить ошибки и избежать многих артефактов при восстановлении структуры поля сверхкоротких импульсов [147,148].

В силу ряда технических причин, таких как возможность использования доступных узкополосных оптических фильтров с частотой пропускания вблизи 800 нм и тонкого кристалла ВВО толщиной 20 мкм, а также возможность стабилизации и управления фазой несущей относительно огибающей импульсов холостой волны оптического параметрического усилителя, было решено провести эксперименты с титан-сапфировой лазерной системой, однако данная схема легко модифицируется для работы в более длинноволновом спектральном диапазоне, при установке соответствующих используемой накачке узкополосных фильтров и нелинейно-оптического кристалла. Оптическая накачка полого анти-резонансного фотонно-кристаллического волокна осуществлялась в этих экспериментах импульсами холостой волны из оптического параметрического усилителя титан-сапфировой лазерной системы на центральной длине волны в области 1.8 - 2.1 мкм с энергией до 180 мкДж и длительностью около 55 фс. В экспериментах использовался отрезок того же волновода, что и в экспериментах с импульсом среднего ИК диапазона, поэтому спектр импульса накачки в области длины волны 2 мкм попадал в ту же первую полосу пропускания  $\lambda > 1$  мкм, в которой за счёт положительной дисперсии заполняющего световод аргона при давлении до 16 бар обеспечивается широкий диапазон аномальной дисперсии. Таким образом, доступная для данного импульса накачки полоса пропускания волновода шириной более одной октавы позволяет говорить о возможности формирования в условиях аналогичного эксперимента предельно коротких импульсов длительностью менее одного периода поля.

Для исследования динамики спектрально-временного преобразования сверхкоротких импульсов в полых фотонно-кристаллических световодах импульсы холостой волны, формируемые на выходе оптического параметрического усилителя, ослабляются по интенсивности с помощью оптического аттенюатора, состоящего из полуволновой пластинки и поляризатора, и далее заводятся в световод с помощью собирающей линзы с фокусным расстоянием 50 мм. Эффективность заведения излучения в волновод составляет 75%. На рис. 4.2.7 представлены спектральные и временные огибающие интенсивности излучения, регистрируемые на выходе полого ФК-световода с диаметром сердцевины 70 мкм длиной 210 мм, заполненного аргоном под давлением 4 бар. Спектрально-временное преобразование лазерных импульсов с начальной энергией до 65 мкДж в таком световоде приводит к генерации излучения с непрерывным спектром в полосе длин волн от 1.0 до 2.7 мкм (рис. 4.2.7а).

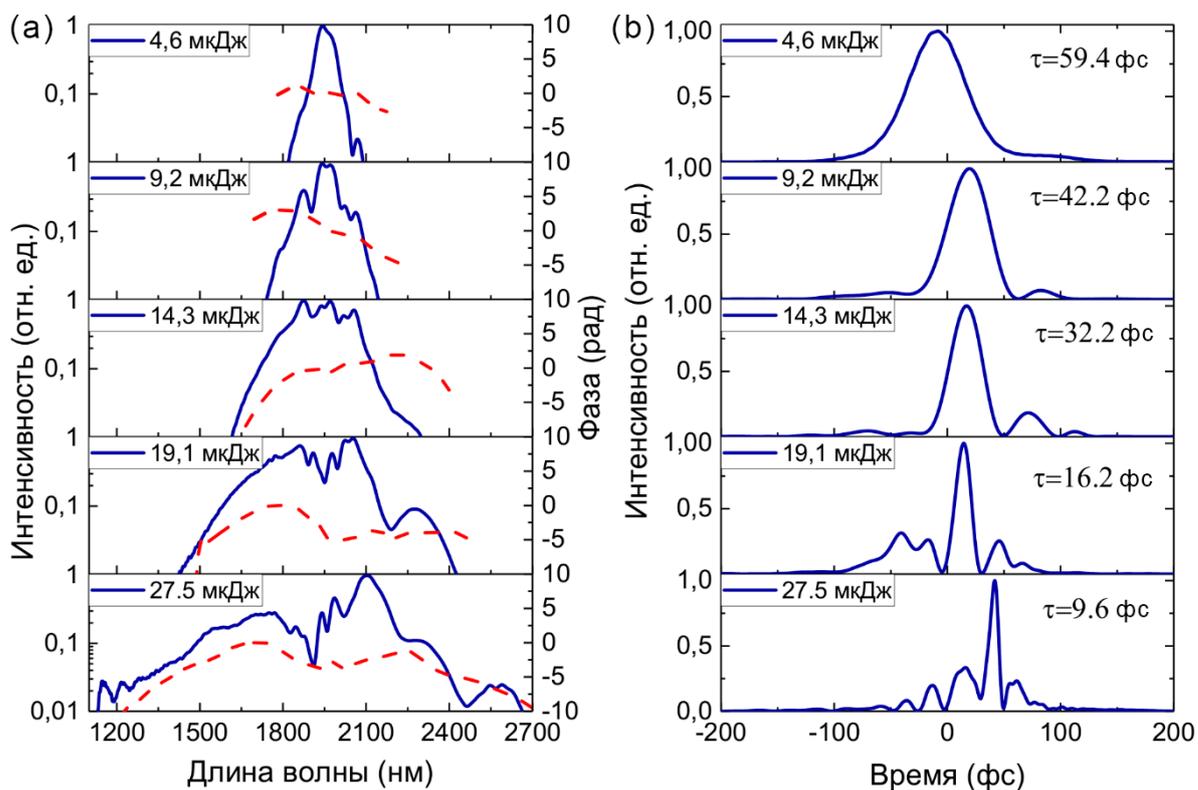


Рис. 4.2.7. Динамика спектрального уширения (а) и временной компрессии (б) излучения на выходе полого ФК-световода с диаметром сердцевины 70 мкм длиной 210 мм, заполненного аргоном под давлением 4 атмосферы в зависимости от энергии лазерного импульса накачки на входе в волновод.

Высокая скорость регистрации и обработки спектральных карт в режиме реального времени, регистрируемых методом X-SEA-F-SPIDER, позволила провести серию измерений спектральной мощности и фазы суперконтинуума в широком диапазоне начальных энергий импульса и давлений газа в волноводе и подобрать оптимальные значения для осуществления наиболее эффективной компрессии импульса. Минимальную длительность выходных импульсов, соответствующей максимальному уширению, удалось наблюдать при энергии импульсов 21 мкДж при давлении аргона 8 атмосфер. Длительность получаемых в этом режиме импульсов составляет 6.6 фс по полувысоте, что соответствует примерно одному колебанию поля. При этом в центральном пике по нашим оценкам содержится около 9.8 мкДж, то есть примерно 35% энергии импульса (рис. 4.2.8), а пиковая мощность достигает 1.5 ГВт [254]. При восстановлении импульса использовалась только низкочастотная часть спектра, полностью лежащая в первой полосе пропускания волновода.

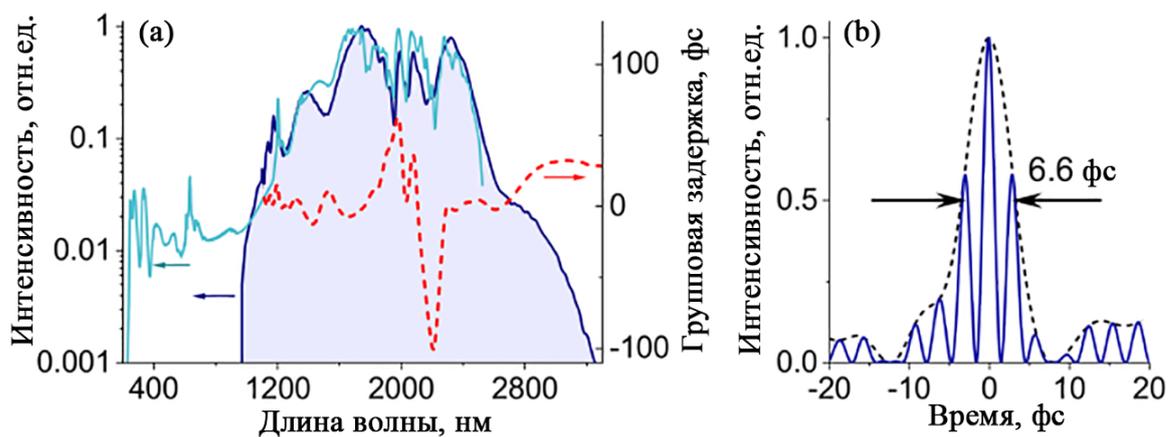


Рис. 4.2.8. Спектр и спектральная фаза наиболее короткого импульса на выходе полого фотонно-кристаллического волновода измеренная методом X-SEA-F-SPIDER (а) и восстановленная по нему огибающая поля (б).

Модовый анализ излучения на выходе волновода в широком спектральном диапазоне от 250 нм до 2 мкм (рис. 4.2.9d) показал, что несмотря на то, что в процессе спектрального уширения спектр суперконтинуума пересекает несколько резонансных полос микроструктурированного волокна, существенная часть излучения, попадающего в спектральные полосы пропускания более высокого порядка (650-1000 нм, 425-625 нм), распространяется в фундаментальной моде, и таким образом, влияет на результирующий импульс на выходе из волновода. Для определения временных характеристик формируемого импульса с учётом высокочастотных компонент поля, лежащих в видимом диапазоне спектра, необходимо определить их фазу, что в условиях протяжённости спектра в трёх октавах (0.4 – 3 мкм, рис. 4.2.9а-с) является нетривиальной задачей. Реализованная экспериментальная схема X-SEA-F-SPIDER позволяет восстановить фазу излучения, попадающего в первую область прозрачности волновода, в спектральном диапазоне 1.1 – 3 мкм, данная область ограничена многими факторами, такими как фазовый синхронизм нелинейного кристалла, дисперсионные свойства дифракционной решётки, раскладывающей излучение на камеру, соотношение размера сенсора и размера пикселя чувствительной камеры, регистрирующей спектральную интерференцию, а также длина волны опорного импульса (800 нм) с которым взаимодействует исследуемое излучение, и который необходимо отфильтровать для получения контрастного изображения слабого сигнала на суммарной частоте.

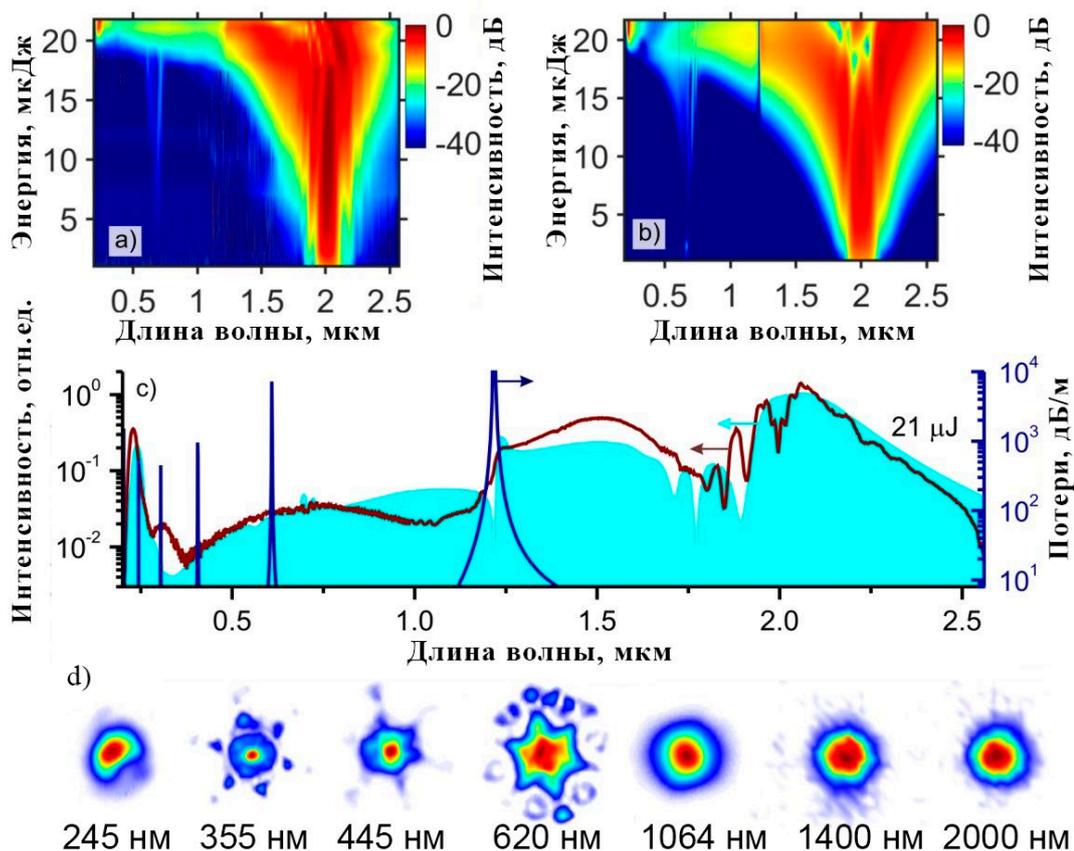


Рис. 4.2.9. (a) Экспериментальные и (b) теоретические зависимости спектра суперконтинуума на выходе из волновода от энергии импульса на входе. (c) Экспериментальный (коричневая кривая) и расчетный (голубая заливка) спектр суперконтинуума при энергии 21 мкДж. Темно-синей линией обозначены рассчитанные потери полого фотонно-кристаллического волокна. (d) Поперечные моды выходного излучения в разных спектральных диапазонах с указанными центральными длинами волн.

Задача определения фазы высокочастотного крыла суперконтинуума в диапазоне длин волн 0.4 – 1 мкм, попадающего во второе и третье окно пропускания волновода, была решена нами оригинальным способом при помощи добавления в лазерный комплекс возможности стабилизации и варьирования фазы несущей относительно огибающей для импульса холостой волны на выходе из оптического параметрического усилителя. Управление фазой несущей относительно огибающей импульса накачки на входе в полое антирезонансное фотонно-кристаллическое волокно позволило пронаблюдать и точно определить зависимость фазы спектральной интерференции суперконтинуума на выходе из волновода с широкополосной третьей гармоникой, генерирующейся от субпериодного фундаментального импульса на последних миллиметрах распространения в волокне. Сфазированные модуляции спектра в широком диапазоне с удвоенной частотой при изменении фазы несущей относительно огибающей (рис. 4.2.10а-с) позволяют говорить о ровном фазовом профиле высокочастотного крыла суперконтинуума. Спектральная фаза широкополосной третьей гармоники в диапазоне длин волн 0.4 – 0.8 мкм может быть вычислена по известной спектральной фазе фундаментальной волны в диапазоне длин волн 1 – 3 мкм, определяемой методом X-SEA-F-SPIDER (рис. 4.2.10е), а затем использована для

решения обратной задачи – определения спектральной фазы высокочастотного крыла спектра фундаментальной волны на выходе волновода.

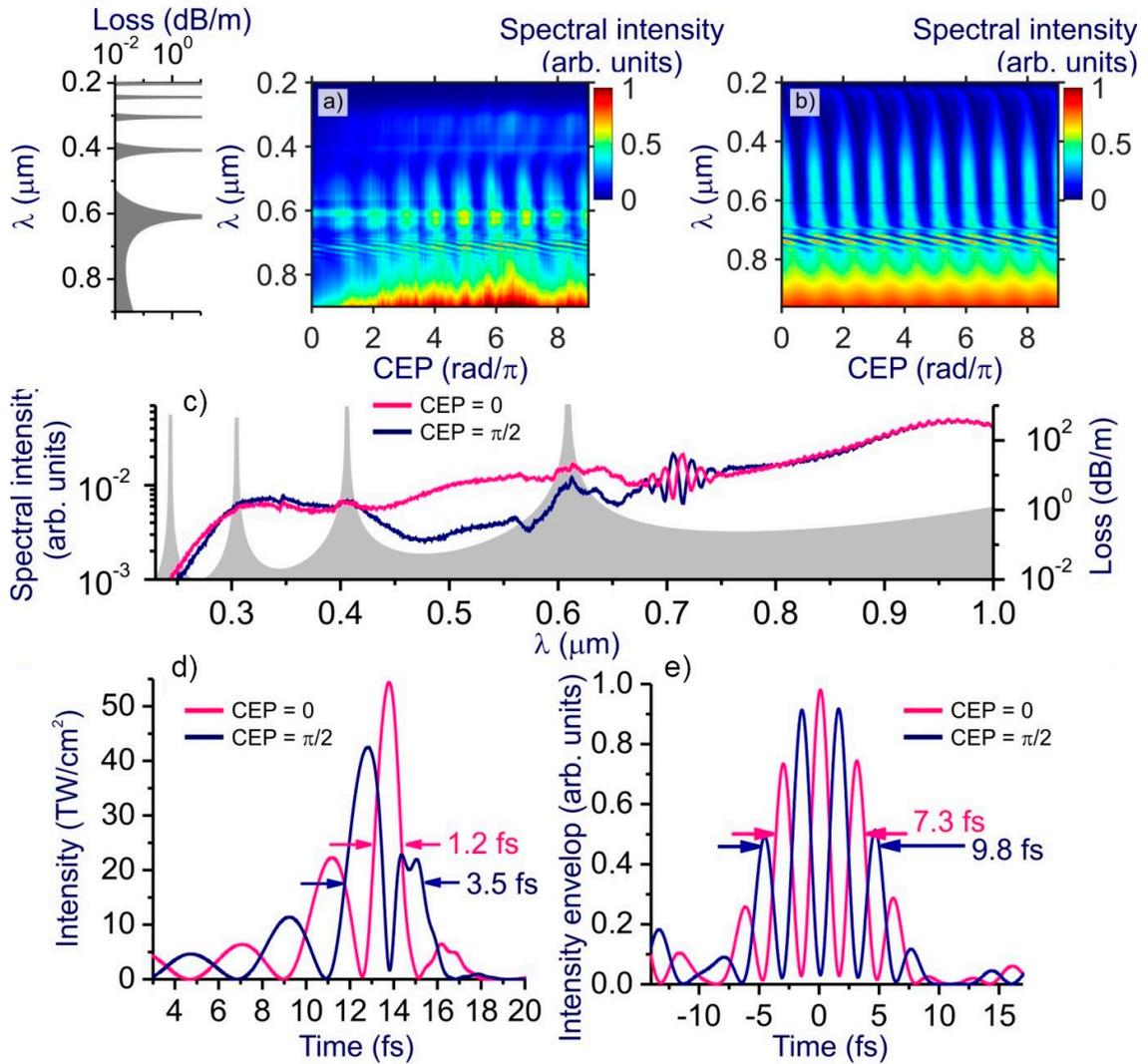


Рис. 4.2.10. Экспериментальная (a) и расчетная (b) спектрально-фазовая диаграмма для импульсов со входной энергией 16.2 мкДж в диапазоне длин волн 200-1100 нм; слева представлены расчетные потери волновода. (c) Экспериментальные спектры видимого и ближнего ИК излучения суперконтинуума для значения фазы 0 и  $\pi/2$  (розовая и синяя кривые, соответственно), серой заливкой показаны потери волновода. (d) Восстановленные временные профили мгновенной интенсивности импульса на выходе волокна с учётом высокочастотной части суперконтинуума. (e) Измеренная методом X-SEA-F-SPIDER временная форма длинноволновой части импульса на выходе из волновода: технические ограничения не позволили зарегистрировать весь спектр импульса, спектр на длинах волн менее 1.0 мкм был обрезан.

Действительно, картина спектральной интерференции при варьировании фазы несущей относительно огибающей может быть описана формулой:

$$S(\omega, \varphi_{CEP}) = \left| \tilde{A}_{sol}(\omega) e^{i(\varphi_{sol}(\omega) + \varphi_{CEP})} + \tilde{A}_{THG}(\omega) e^{i(\varphi_{THG}(\omega) + 3\varphi_{CEP})} \right|^2 = \quad (4.5)$$

$$= \tilde{I}_{sol}(\omega) + \tilde{I}_{THG}(\omega) + 2[\tilde{I}_{sol}(\omega)\tilde{I}_{THG}(\omega)]^{1/2} \cos(\varphi_{sol}(\omega) - \varphi_{THG}(\omega) - 2\varphi_{CEP})$$

где  $\tilde{A}_{sol}(\omega)$  и  $\tilde{A}_{THG}(\omega)$  – спектральные амплитуды субпериодного солитона на выходе волновода и его широкополосной третьей гармоники,  $\varphi_{sol}(\omega)$  и  $\varphi_{THG}(\omega)$  – их соответствующие спектральные фазы,  $\tilde{I}_{sol}(\omega) = |\tilde{A}_{sol}(\omega)|^2$ ,  $\tilde{I}_{THG}(\omega) = |\tilde{A}_{THG}(\omega)|^2$ ,  $\varphi_{сеп}$  – фаза несущей относительно огибающей. Аппроксимация экспериментальных спектрофазовых диаграмм (рис. 4.2.10а) с помощью данной формулы позволяет определить разность фаз  $\varphi_{diff}(\omega) = \varphi_{sol}(\omega) - \varphi_{THG}(\omega)$ , а измерение методом X-SEA-F-SPIDER спектральной фазы солитона в ближнем инфракрасном диапазоне, позволяет получить фазу  $\varphi_{THG}$  в видимом диапазоне частот, на утроенной частоте. Сложение полученных значений разностной фазы и фазы третьей гармоники  $\varphi_{diff}(\omega) + \varphi_{THG}(\omega)$  даёт интересующее нас значение спектральной фазы высокочастотного крыла спектра солитона на выходе волновода. Результаты реконструкции при помощи описанного алгоритма поля импульса по известному спектру и фазе суперконтинуума в диапазоне длин волн 0.4 – 3 мкм представлены на рис. 4.2.10d для значений фазы несущей относительно огибающей 0 и  $\pi/2$ . Среди серии проведённых измерений наилучший восстановленный импульс имел длительность около 2.5 фс, что составляет около 0.42 периода поля на центральной длине волны 1.8 мкм [255]. Измеренная энергия сжатого импульса на выходе волновода составила 17.5 мкДж, а энергия, сконцентрированная в основном пике длительностью 2.5 фс, по нашей оценке, составляет не менее 10 мкДж, с пиковой мощностью около 2.1 ГВт. [92,256,257]

Таким образом, было показано формирование мультиоктавного суперконтинуума, простирающегося от 300 нм до 4.2 мкм, при распространении лазерного импульса среднего инфракрасного диапазона на центральной длине волны 3.2 мкм и длительностью порядка 200 фс в полном антирезонансном фотонно-кристаллическом волокне с оболочкой в виде одного кольца тонкостенных капилляров, заполненном аргоном с давлением в несколько атмосфер. Анализ спектра излучения на выходе волновода, измеренного в широком спектральном диапазоне в зависимости от энергии импульса накачки и давления газа внутри волокна, показал, что образование столь протяжённого мультиоктавного суперконтинуума происходит при формировании необычайно короткого, полупериодного лазерного импульса, в результате солитонной самокомпрессии, усиленной образованием ударной волны огибающей. Реализованная методика прямого измерения светового поля X-SEA-F-SPIDER позволила экспериментально выяснить особенности временной структуры однопериодных импульсов, формируемых в результате солитонной самокомпрессии импульсов накачки на центральной длине волны 2.1 мкм. Длительность формируемых импульсов составила 6.6 фс по полувысоте, что соответствует одному колебанию поля, а пиковая мощность достигает 1.5 ГВт. Экспериментальная методика определения спектральной фазы высокочастотного крыла суперконтинуума, распространяющегося в фундаментальной моде волновода, на основе регистрации широкополосной f-3f интерференции при варьировании фазы несущей относительно огибающей импульса накачки, позволила наиболее точно восстановить временную форму импульса на выходе из волновода, и зарегистрировать импульс длительностью около 2.5 фс, что составляет около 0.42 периода поля на центральной длине волны 1.8 мкм. Измеренная энергия сжатого

импульса на выходе волновода составила 17.5 мкДж, а энергия, сконцентрированная в основном пике длительностью 2.5 фс, по нашей оценке, составляет не менее 10 мкДж, с пиковой мощностью около 2.1 ГВт.

Представленные в данном параграфе результаты показывают, что полые фотонно-кристаллические волокна с антирезонансной структурой оболочки в виде кольца тонкостенных капилляров являются эффективным инструментом, благодаря своему широкому спектральному окну пропускания и подходящему дисперсионному профилю они позволяют сформировать предельно короткий импульс гигаваттного уровня энергии с длительностью порядка одного периода поля в различных спектральных диапазонах. Такие импульсы остро востребованы в широком классе актуальных задач, связанных с изучением когерентных и фазочувствительных процессов, протекающих в сложных физических, химических и биологических системах на самых маленьких масштабах времени. Среди них можно выделить зондирование и управление сверхбыстрыми когерентными токами носителей зарядов в полупроводниках, ведущие к развитию петагерцовой электроники и созданию логических элементов, работающих на оптических частотах. Большая длина волны и предельно короткая длительность импульса в таких задачах позволяет с одной стороны добиться высокой пондеромоторной энергии электронов, двигающихся когерентно под действием поля, а с другой стороны, локализовать воздействие во времени, существенно меньшем времени потери когерентности волнового пакета. Другой областью, где востребованы предельно короткие импульсы с широким когерентным спектром, является фемтохимия, в которой методы многомерной нелинейной время-разрешённой корреляционной спектроскопии позволяют исследовать связь ядерной и электронной подсистем сложных молекулярных комплексов, выявляя отдельные этапы химических реакций, протекающие на фемтосекундных масштабах времени.

Подводя итоги настоящей главы, можно сказать, что представленные эксперименты демонстрируют широкий спектр применения полых фотонно-кристаллических световодов. Во-первых, это касается возможности применения подобных структур для обеспечения транспортировки мощных лазерных импульсов различной длительности в направляемых волноводных модах, что является востребованным для практических применений, в том числе биомедицинских. Во-вторых, особенности дисперсионных свойств полых антирезонансных волокон револьверного типа обеспечивают уникальные режимы распространения и нелинейно-оптического преобразования излучения накачки, приводящие к формированию предельно коротких лазерных импульсов с длительностью порядка и менее одного цикла поля. Помимо непосредственно увлекательной физики, приводящей к генерации подобных форм электромагнитного поля, такие импульсы представляют несомненный интерес для генерации одиночных аттосекундных импульсов, использования для исследования возможности формирования предельно коротких импульсов тока в диэлектрических и полупроводниковых материалах для реализации оптоэлектронных устройств на петагерцовой шкале и многие другие задачи современной физики.

## Глава 5. Микроструктурированные световоды в задачах нелинейной спектроскопии и микроспектроскопии, биовизуализации и квантовой оптики.

Исследование объектов с помощью оптической спектроскопии и микроскопии является одним из наиболее развитых направлений в области естественных наук, имеющим богатые исторические корни. Применение источников сверхкоротких лазерных импульсов открывает возможность реализации многочисленных нелинейно-оптических методов, которые радикально расширяют возможности неразрушающей характеристики объектов различной природы с недостижимыми для линейной оптики временным и пространственным разрешением, информативностью, селективностью, чувствительностью и другими преимуществами.

Ряд нелинейно-оптических методов, проявивших высокую эффективность и получивших заметную популярность, основан на процессах, описываемых четырехволновым взаимодействием (ЧВВ). Одним из таких нелинейных спектроскопических методов, активно развивавшихся с 60-х годов прошлого века, является когерентное антистоксово рассеяние света (КАРС) [214,258,259]. Под КАРС понимают процесс комбинационного рассеяния света с частотой  $\omega_3$  на волне материального возбуждения  $\Omega$ , которое когерентно возбуждается двумя волнами  $\omega_1$  и  $\omega_2$  при выполнении резонансного условия  $\omega_1 - \omega_2 = \Omega$  (частота колебаний  $\Omega$  содержит информацию о структуре молекул, что используется для их идентификации). В вырожденном случае  $\omega_3$  совпадает с  $\omega_1$ , что приводит к генерации когерентного сигнала на антистоксовой частоте  $\omega_a = 2\omega_1 - \omega_2$ .

Эффективность ЧВВ процессов определяется когерентной длиной взаимодействия, и очевидным решением в этом направлении является использование волноводного режима распространения излучения, участвующего в процессе. В работе [69] впервые было продемонстрировано значительное увеличение эффективности процессов четырехволнового взаимодействия в полном диэлектрическом капилляре в многомодовом режиме. В этой работе полые волноводы были использованы в качестве нелинейной среды, что позволило многократно, сравнительно с режимом жесткой фокусировки, увеличить эффективность процесса и открыло новую технику сенсорики газовых сред. В нашей группе фотоники и нелинейной спектроскопии МГУ имени М.В.Ломоносова, исторически связанной с развитием и применением различных методов ЧВВ спектроскопии, также активно исследовались вопросы распространения и спектрально-временного преобразования импульсов накачки фемто- и пикосекундной длительности в полых капиллярах, в частности, в задачах генерации высших оптических гармоник [260,261]. Была продемонстрирована возможность контроля и значительного повышения эффективности генерации оптических гармоник, что определяется увеличением длины взаимодействия и подстройкой условий фазового согласования за счет использования различных газов (или смесей газов) при различных давлениях.

Полые фотонно-кристаллические волокна обеспечивают новые режимы волноводного распространения, которые характеризуются значительно меньшими потерями и регулируемыми дисперсионными свойствами, что делает их перспективными элементами для сенсорики газовых сред и жидкостей. Возрастание эффективности генерации нелинейно-оптического сигнала происходит благодаря тому, что малая сердцевина полого ФК волновода позволяет достичь высоких уровней интенсивности излучения накачки, характерных для режима жесткой фокусировки, а волноводный режим распространения обеспечивает большую длину взаимодействия пучков в условиях, близких к режиму плоских волн. В параграфах 5.1 и 5.2 будут представлены результаты, демонстрирующие возможности использования полых ФК волокон в качестве таких элементов сенсорики, повышающих эффективности методики наносекундной КАРС-спектроскопии газов. Также будет рассмотрено влияние распространяющегося в оболочке излучения на характер регистрируемых спектров и обсуждена возможность использования полых ФК для диагностики частиц исследуемого вещества, осаждаемого на стенках полых сердцевины полых фотонно-кристаллических световодов.

Наличие перестраиваемого источника является ключевым моментом при реализации КАРС-спектроскопии, поскольку такой источник обеспечивает попадание в резонанс разности частот импульсов стоксовой компоненты и накачки. Большой импульс развитию техники КАРС-спектроскопии дало применение в качестве источников перестраиваемого излучения параметрических генераторов света и лазеров на растворах органических красителей, позволившее говорить о возможности перехода этой спектроскопической методики из чисто научной сферы в область практических приложений. Кроме того, для повышения эффективности нелинейно-оптического преобразования необходимо увеличивать интенсивности взаимодействующих импульсов, в том числе за счет уменьшения их длительности, что коррелирует с использованием для этих целей современных твердотельных фемтосекундных лазерных систем [262] или оптических параметрических усилителей [263]. Однако, проблемы таких источников заключаются в их значительной стоимости и ограничениях в частоте повторения импульсов, поэтому поиск альтернативных экономичных методик получения перестраиваемых импульсов является актуальной задачей. Потенциал микроструктурированных световодов для решения этих задач был многократно продемонстрирован в научных исследованиях [3,6,7,57,197,200,264–266].

В работах нашей группы [237–242] также активно исследовались различные подходы по использованию микроструктурированных волокон в качестве источников перестраиваемого излучения для спектроскопии КАРС, в том числе с использованием полых фотонно-кристаллических волокон или чирпируемых в МС световодах импульсов для спектрального-временного управления процессами ЧВВ. При этом в качестве накачки прежде всего рассматривались импульсы в видимой области спектра. С другой стороны, в главе 3 была представлена техника получения перестраиваемого излучения в МС волноводах при нелинейно-оптическом преобразовании импульсов накачки от  $\text{Cr}^{4+}:\text{forsterite}$  лазеров с центральной длиной волны 1.25 мкм. Этот подход нашел свое практическое воплощение в реализации удобной платформы для КАРС

микроспектроскопии с использованием усилительной системы (параграф 5.3) и генераторов с удлинённым резонатором (параграфы 5.4-5.6).

Как уже упоминалось, широкое распространение в настоящее время получили методы нелинейно-оптической микроскопии биологических объектов, впервые продемонстрированной в 1990 году [230] и активно используемой в различных задачах биовизуализации [272,273]. Наиболее распространёнными нелинейными методами являются флуоресцентная микроскопия двух- и трёхфотонного поглощения [274,275], микроскопия на основе процессов генерации второй и третьей оптических гармоник, вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) [280] и когерентного антистоксова рассеяния света (КАРС) [281]. В условиях наших экспериментов развитие техники КАРС микроспектроскопии продемонстрировано в исследованиях неорганических (параграфы 5.3 – 5.5) и биологических объектов (параграфы 5.6 – 5.7). Так как при работе с биологическими объектами необходимо учитывать вопросы, связанные с влиянием нагрева и фоторазрушения тканей, в наших работах был исследован процесс ионизации и генерации свободных носителей зарядов (электронов), сопровождающий КАРС с использованием сверхкоротких лазерных импульсов биологических тканях, и показано, что этот процесс может быть обнаружен по заметному коротковолновому смещению антистоксова сигнала. Это может быть использовано для количественного описания накладываемых ионизационными процессами ограничений на КАРС-микроскопию (параграф 5.7).

В заключительных параграфах 5.8 и 5.9 диссертационной работы продемонстрирована волоконно-оптический методик генерации управляемых квантовых состояний света на основе процесса спонтанного четырехволнового взаимодействия (СЧВВ) в специальных типах двулучепреломляющих фотонно-кристаллических волокон. Структура оптических волокон оптимизирована для обеспечения высококонтрастной и яркой генерации запутанных пар фотонов. Особенности дисперсионных свойств двулучепреломляющих, высоконелинейных фотонно-кристаллических световодов обеспечивают различные режимы генерации квантовых состояний света в результате векторного спонтанного четырехволнового взаимодействия фемтосекундных лазерных импульсов. Состоянием фотонных пар, генерируемых в процессе такого векторного ЧВВ, можно управлять, изменяя длину волны накачки и геометрию поляризации, создавая при этом как высокочистые низкоразмерные запутанные состояния, так и высокоэнтропийные запутанные состояния в пространстве высокой размерности. С использованием получаемых в фотонно-кристаллическом волокне частотно-коррелированных фотонных пар была продемонстрирована экспериментальная реализация методики линейной квантовой (фантомной) спектроскопии.

## **§5.1. Увеличение эффективности четырехволнового взаимодействия в полых фотонно-кристаллических световодах в задачах нелинейной спектроскопии.**

Четырехволновые взаимодействия (ЧВВ), являющиеся одним из основных типов нелинейно-оптических явлений [1,146,232], лежат в основе множества различных спектроскопических методов. Волноводный режим распространения обеспечивает геометрию взаимодействия, характерную для режима плоских волн, что позволяет значительно повысить эффективность процессов сложения частот. В пионерской работе [69] было продемонстрировано значительное увеличение эффективности ЧВВ высших волноводных мод в газонаполненных полых капиллярах, что открыло широкие перспективы для осуществления эффективной спектроскопии газовых сред. Важные экспериментальные и теоретические аспекты процессов четырехволнового взаимодействия лазерных импульсов в наполненных газом полых волноводах были представлены в работах [260,261,283]. Экспериментальные данные и полученные выражения для амплитуды ЧВВ-сигнала свидетельствуют о том, что возбуждение волноводных мод высших порядков является важным физическим фактором, оказывающим существенное влияние на когерентный характер нелинейно-оптических процессов в полых волноводах. Однако, величина оптических потерь в собственных модах полых волноводов сильно зависит от внутреннего радиуса капилляра (пропорционально  $a^{-3}$ ) [218], что вносит фундаментальные ограничения на эффективность процессов. С другой стороны, полые фотонно-кристаллические (ФК) световоды позволяют значительно снизить уровень потерь по сравнению с полыми капиллярами, что создает предпосылки для новых режимов нелинейно-оптических взаимодействий в волноводных модах с размерами сердцевины от нескольких до десятков микрон. Основные конструктивные решения полых ФК волокон связаны с наличием двумерно-периодической гексагональной (сотовой) фотонно-кристаллической решетки в оболочке [70] или со структурой оболочки в виде решетки кагоме [284] (в этой работе также была показана возможность увеличения эффективности нелинейно-оптических процессов, в частности, продемонстрировано снижение порога вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) в молекулярном водороде до предельно низких значений).

В настоящем параграфе продемонстрировано, что полые фотонно-кристаллические волокна обеспечивают уникальную возможность повышения эффективности сигнала четырехволнового взаимодействия, в частности сигнала КАРС, что может быть использовано для реализации на их основе элементов сенсорики и газового анализа [95,98,100,285].

В наших работах [98,286] были впервые использованы полые ФК волноводы для демонстрации возможности значительного увеличения эффективности четырехволнового взаимодействия типа  $3\omega = 2\omega + 2\omega - \omega$ , где  $\omega$  и  $2\omega$  основная частота и частота второй гармоники пикосекундного импульсного Nd:YAG лазера. В экспериментах использовались полые ФК волноводы, изготовленные в Институте Технологии Обработки Стекланных Структур (ТОСС, Саратов) и имеющие сходные с описанными в параграфе 4.1

параметры. Диаметр сердцевины  $d$  составлял 13-14 мкм, а период фотонно-кристаллической структуры был  $L$  порядка 5 мкм. В спектре подобных волокон наблюдаются ярко выраженные спектральные максимумы пропускания вблизи фотонных запрещенных зон. Перестройка и подгонка спектра пропускания в экспериментах осуществлялась за счет выбора волокон из линейки образцов с несколько отличающимися структурами. В экспериментах [98] были подобраны волокна, обеспечивающие низкие потери на частоте основной гармоники, второй и третьей гармоники Nd:YAG лазера. Коэффициенты оптических потерь, измеренные для этого волокна, составляли  $0.09 \text{ см}^{-1}$  на длине волны 1.06 мкм и  $0.08 \text{ см}^{-1}$  на длине волны 0.532 нм. Длина ФК волокна составляла около 9 см, т.е. была немного меньше длины, обеспечивающей максимальную эффективность ЧВВ процесса  $I_{\text{FWM}} = \ln 3/\alpha$ , где  $\alpha$  - коэффициент оптических потерь, примерно равный для всех частот процесса [3]. Измерения пространственного распределения поля показало, что импульсы накачки распространялись в основной пространственной моде. Проведенные эксперименты продемонстрировали увеличение эффективности генерации сигнала на частоте третьей гармоники в процессе ЧВВ приблизительно в 800 раз относительно режима жесткой фокусировки, что качественно согласуется с результатами численного анализа [219]. Оценки показывают, что при уменьшении потерь фактор увеличения эффективности может достигать четырех порядков, при этом величина этого фактора относительно реализованных процессов в полых капиллярах при приблизительно равных условиях составляет около 50 [283]. Необходимо отметить, что в общем случае излучение на частоте третьей гармоники может возникать и в прямом процессе  $3\omega = \omega + \omega + \omega$ , однако измерения, проведенные без излучения на частоте второй гармоники  $2\omega$ , показали существенно меньшую эффективность в сравнении с двухчастотным процессом.

Когерентное антистоксово рассеяние света (КАРС) является частным случаем четырехволнового взаимодействия, и, как уже отмечалось выше, волноводный режим распространения в полых капиллярах может значительно повысить эффективность газового анализа [56,69,261]. Последовательный анализ и оценки эффективности процессов четырехволнового взаимодействия (ВКР и КАРС) в полых ФК волокнах по сравнению с режимом жёсткой фокусировки были представлены в работе [3].

В наших работах [95,287,288] было экспериментально продемонстрировано повышение эффективности процессов при использовании двухчастотной схемы КАРС  $\omega_{\text{КАРС}} = 2\omega_1 - \omega_2$ , где  $\omega_1, \omega_2$  - частоты волн накачки. На основе когерентного возбуждения Q линии молекулярного азота с центром комбинационного перехода  $2331 \text{ см}^{-1}$  было показано увеличение эффективности когерентного антистоксова рассеяния света более чем в 10 раз по сравнению с режимом жесткой фокусировки. Используемый наносекундный КАРС спектрометр имел широко распространённую в 80-90х годах схему, подробно описанную в работах [95,287–289]. Схема включала в себя задающий Nd:YAG генератор с модуляцией добротности, в котором импульсы излучения с длительностью 10 нс и длиной волны 1.064 мкм усиливались примерно до 40 мДж, после чего частота этих импульсов удваивалась с помощью нелинейных кристаллов KDP. Получившееся излучение

обеспечивало оптическую накачку лазеров на растворах органических красителей. Параметры полого фотонно-кристаллического волокна (рис 5.1.1) обеспечивали одновременную поддержку волноводных мод накачки (вторая гармоника излучения Nd:YAG лазера (532 нм), стоксовой волны (излучение лазера на красителе (607 нм) и излучения сигнала КАРС на длине волны 473 нм.

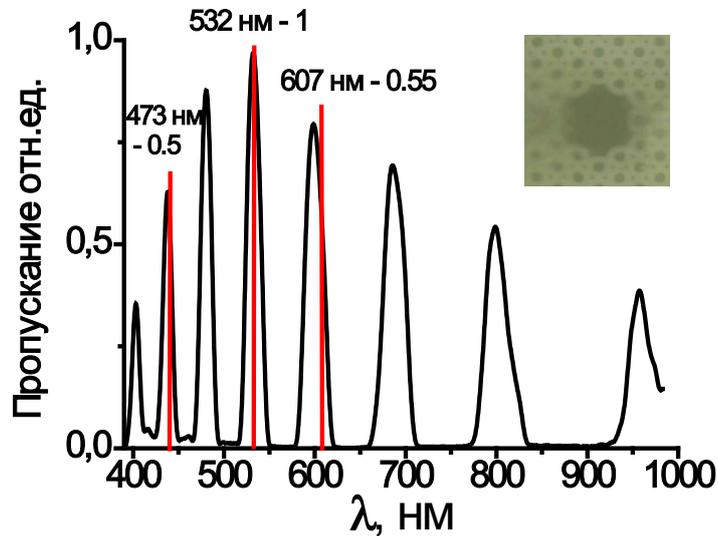


Рис 5.1.1. Спектр пропускания полого ФК волокна, используемого в экспериментах по КАРС-спектроскопии молекулярного азота. Красными вертикальными линиями обозначены длины волн накачек и антистоксова сигнала. На вставке показана структура поперечного среза используемого полого ФК волокна (диаметр полой сердцевины 13 мкм, период структуры 4.5 мкм).

Оценка необходимой для экспериментов протяженности волокна должна учитывать длины оптических потерь и фазового согласования ЧВВ процесса, и минимальная из них будет равняться искомой максимальной длине. Для случая плоских волн длина фазового согласования в азоте для 10 нс импульсов накачки составляет величину порядка 50 см, однако необходимо учитывать влияние структуры волновода. Для оценки влияния условий фазового согласования и потерь на интенсивность ЧВВ сигнала, генерируемого в полом ФК волокне, воспользуемся результатом аппроксимации медленно меняющейся огибающей для мощности антистоксова сигнала [214,258]:  $P_a \propto |\chi_{\text{eff}}^{(3)}|^2 P_1 P_2^2 M$ , где  $P_1$  и  $P_2$  — мощности полей с частотами  $\omega_1$  и  $\omega_2$  соответственно;  $\chi_{\text{eff}}^{(3)}$  — эффективная комбинация компонент тензора кубической нелинейно-оптической восприимчивости; а фактор  $M$  включает оптические потери и эффекты фазового рассогласования:

$$M(\Delta\alpha, \alpha_a, \delta\beta) = \exp[-(\Delta\alpha + \alpha_a)l] [\sinh(\Delta\alpha l/2) + \sin^2(\delta\beta l/2)] \{ \{\Delta\alpha/2\}^2 + \{\delta\beta/2\}^2 \}^{-1} l, \quad (5.1)$$

где  $\Delta\alpha = (2\alpha_1 + \alpha_2 - \alpha_a)/2$ ;  $\alpha_1, \alpha_2$  и  $\alpha_a$  — коэффициенты оптических потерь на частотах  $\omega_1, \omega_2$  и  $\omega_a$  соответственно, а  $\delta\beta$  — рассогласование постоянных распространения волноводных мод, участвующих в процессе ЧВВ. Чтобы обеспечить оценку порядка типичных длин когерентности  $l_c = \pi/(2|\delta\beta|)$  для процессов ЧВВ в полых ФК световодах и выбрать их длины

$l$ , удовлетворяющие требованию фазового согласования  $l \leq lc$  для наших экспериментов, мы заменяем дисперсию мод с фотонно-кристаллической структурой на дисперсию стандартного полого волокна со сплошной оболочкой в этих расчетах. Как показали ранние работы по волноводам с фотонно-запрещенными структурами [290], такое приближение может обеспечить разумную точность для дисперсии мод в центральной части фотонно-запрещенной зоны, но не работает ближе к краям полосы пропускания. В наших условиях «заменяя» полый фотонно-кристаллический волновод на полый капилляр с параметрами:  $a = 13$  мкм и  $b = 100$  мкм, где  $a$  – диаметр внутреннего канала, такой же, как и нашего микроструктурированного волокна, а  $b$  – диаметр оболочки, а также считая, что электромагнитное поле вне волновода отсутствует, а внутри поддерживаются только основные моды  $EH_{11}$  и  $TM_{01}$ , которые соответственно являются основной и модой второго порядка для микроструктурированного волокна. Разность постоянных распространения для длин волн накачки  $\Delta\beta = 2\beta(\lambda_1) - \beta(\lambda_2) - \beta(\lambda_{КАРС})$  определяет эффективную длину взаимодействия, которая имеет разумные величины только для низших  $EH_{11}$  волноводных мод  $\frac{1}{\Delta\beta} = 14.5$  см.

В свою очередь длина оптических потерь определяется [3]:

$$l_{\text{потерь}} = \frac{1}{\Delta\alpha} \left( \frac{\alpha_1 + \alpha_2 + \alpha_3}{\alpha_4} \right), \quad (5.2)$$

где  $\alpha_i$  коэффициенты затухания на длинах волн  $\lambda_i$ , определяемые  $\alpha \approx \left(\frac{u}{2\pi}\right)^2 \lambda^2 a^{-3} (n^2 + 1)(n^2 - 1)^{-1/2}$ , где  $u$  – собственное значение характеристического уравнения для волноводной моды,  $n$  – показатель преломления оболочки,  $a$  – радиус сердцевинки,  $\Delta\alpha = \frac{1}{2}(\alpha_1 + \alpha_2 + \alpha_3 - \alpha_4)$ . В вырожденном процессе КАРС оценка длины оптических потерь составляет приблизительно 6.5 см, что и определяет необходимую длину волокна.

Возрастание эффективность процесса КАРС по сравнению с режимом жесткой фокусировки можно оценить по следующей формуле [3]  $\mu = 1.3 * 10^{-3} \frac{(k' + k'')^2 \lambda^2}{k' k'' a^2 a^4}$ , где  $k' = k_0 + k_1 - k_2$  и  $k'' = k_0 + k_1 + k_2$ , в результате чего мы получаем ожидаемое увеличение порядка 7. Следует отметить, что здесь приводились оценочные выражения для случая полого капилляра, и хотя они в общем случае не применимы для ФК волокон, но дают вполне приемлемые оценки.

В экспериментах были определено максимальное значение энергии импульсов, которые возможно заводить в волновод без риска разрушить оболочку, которое было оценено как 100 мкДж. Излучение на выходе волокна анализировалось с помощью монохроматора, ФЭУ и усреднялось с помощью стробируемой системы накопления импульсов (ВОХСАР). В волокно заводились импульсы с длиной волны  $\lambda = 532$  нм с энергией 70 мкДж и импульсы с  $\lambda = 607$  нм - 30 мкДж. На выходе энергия в них составляла 20 и 4 мкДж, соответственно.

На рис 5.1.2 представлены спектры КАРС сигнала для молекулярного азота, полученные в режиме жесткой фокусировки и при использовании полого фотонно-кристаллического волокна. Спектр сигнала КАРС (рис. 5.1.2а) обладает небольшой асимметрией, что типично

для Q линии молекул азота и показывает влияние нерезонансного вклада в спектр сигнала (более подробно о влиянии нерезонансного фона как оболочки, так и самого исследуемого газа на форму спектра сигнала КАРС будет говориться в следующем параграфе). В эксперименте максимальная эффективность КАРС процесса ожидаемо наблюдалась при коллинеарных векторах поляризации накачек [291]. Квадратичная аппроксимация обеспечивает хорошее согласие с экспериментальной зависимостью интенсивности сигнала КАРС от энергии накачки второй гармоники (рис.5.1.2б), что демонстрирует невозмущенный режим генерации сигнала КАРС [95,287,288].

Энергия сигнала КАРС, полученная в полом ФК волокне сравнивалась с энергией сигнала КАРС, генерируемого в режиме жесткой фокусировки для тех же энергий импульсов накачки. Сравнение показало возрастание эффективности процесса в полом волноводе более чем в 10 раз, что согласуется с результатами теоретического анализа. При снижении величины оптических потерь и более точного согласования участвующих в процессе длин волн с центрами полос пропускания волновода (в условиях наших экспериментов частота излучения лазера на красителе попадает в край фотонно-запрещенной зоны) полые ФК волокна должны обеспечить еще более заметное повышение мощности сигнала волноводного КАРС по сравнению с режимом жесткой фокусировки.

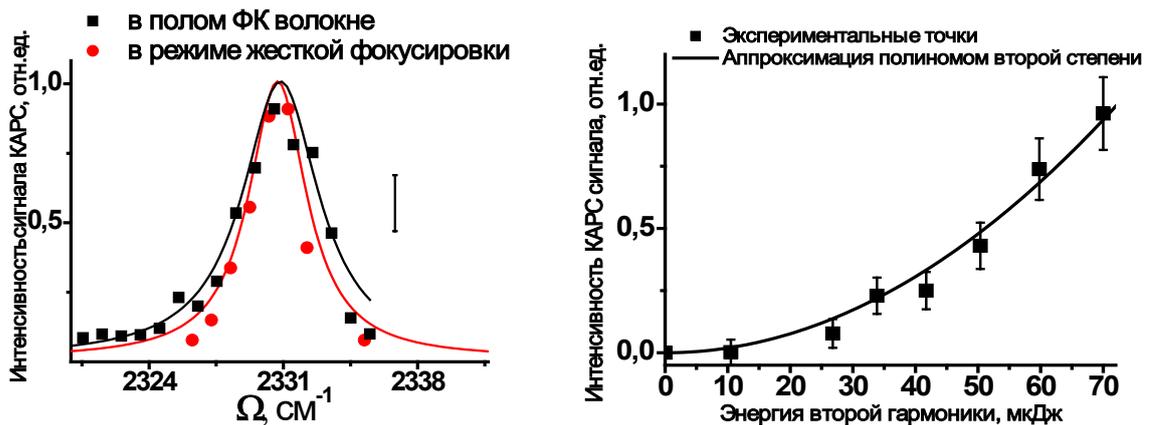


Рис 5.1.2. (а) Сравнение спектров КАРС-сигнала Q-линии молекул азота при атмосферном давлении, снятых в режиме жесткой фокусировки и волноводном распространении в полом фотонно-кристаллическом волноводе (ширина линии  $4 \text{ cm}^{-1}$ ) (б) Зависимость интенсивности сигнала КАРС от энергии излучения второй гармоники Nd:YAG лазера.

Типичный размер сердцевины полых фотонно-кристаллических волокон в большинстве экспериментов изменялся в пределах от 5 до 20 мкм, что было характерно для первых нескольких лет использования подобных волноводов. Однако, как уже было отмечено, было бы интересно и важно для многих приложений расширить архитектуру полых фотонно-кристаллических волокон и использовать большие внутренние диаметры сердцевины. Такие полые ФК волокна позволили бы передавать более высокие пиковые мощности в направляемых модах без необратимого повреждения стенок. Поскольку максимальная пиковая мощность масштабируется как  $\sim a^2$  с радиусом сердцевины волокна  $a$  для заданной длительности импульса и пороговой плотности потока оптического пробоя,

полые ФК с большой сердцевиной являются ценным инструментом для масштабирования пиковой мощности при нелинейном сжатии импульсов, преобразовании их частоты, передачи солитонов и других аспектов оптики сверхкоротких импульсов (см. Главу 4).

Описываемые ниже результаты работ [100,285] показывают, что полые ФК волокна с большим диаметром сердцевины могут также эффективно использоваться в задачах газового анализа. Полые ФК волноводы с большой площадью сердцевины были изготовлены в ТОСС (Саратов) по несколько отличающейся технологии. В отличие от ранее использованных ФК волокон, когда при вытяжке из преформы из сборки исключалось семь капилляров для получения полой сердцевины, в данном случае полая сердцевина имеет отличную структуру в форме правильного шестиугольника, каждая сторона которого соответствовала пяти диаметрам капилляров оболочки. Вставка на рис. 5.1.3а показывает изображение полого ФК волокна с периодом приблизительно 5 мкм и диаметром сердцевины около 50 мкм. Технология производства обеспечила наличие достаточно большой «неподдерживаемой» стороны сердцевины при сохранении однородности и достаточной механической прочности волокна. Спектры пропускания подобных полых ФК волокон демонстрируют хорошо выраженные полосы (рис. 5.1.3а), что указывает на наличие и влияние фотонных запрещённых зон на транспортировку излучения в воздушных модах волокна.

В экспериментах мы использовали описанную ранее наносекундную лазерную систему, но уже с двумя различными лазерами на красителях, которые обеспечивали перестройку стоксова излучения в диапазонах длин волн 540–560 нм и 630–670 нм (в зависимости от используемого типа красителя). Все три длины волны лазерной системы, а именно, основное излучение Nd:YAG лазера, излучение второй гармоники и перестраиваемое по частоте излучение лазера на красителе, использовались в качестве полей накачки в процессе четырехволнового смешения. Энергии этих полей накачки варьировались в экспериментах от 0,5 до 10 мДж на основной длине волны Nd:YAG лазера, от 0,5 до 8 мДж для излучения на длине волны его второй гармоники и от 0,05 до 0,7 мДж для импульсов из лазера на красителе. Чтобы согласовать лазерные поля с основной модой ФК волокна, мы сфокусировали лазерные лучи на входной торец волокна в пятно с диаметром порядка 35 мкм. Лазерно-индуцированный пробой на стенках ФК волокна оценивался по резкому необратимому снижению пропускания и интенсивному боковому рассеянию лазерного излучения, видимому через оболочку волокна. Уровни энергии основного излучения с энергией 10 мДж соответствуют плотности потока лазерной энергии приблизительно 630 Дж/см<sup>2</sup>, и при таких уровнях потока мы не наблюдали необратимых ухудшений характеристик волокна, связанных с оптическим пробоем. В то же время достигнутый уровень входной энергии был достаточен для получения надежно регистрируемого сигнала ЧВВ.

Процессы четырехволнового смешения  $\omega_a = 2\omega_1 - \omega_2$  изучались в наших экспериментах для двух различных комбинаций частот накачки и сигнала. В первом случае КАРС спектр записывался для проверки фазового согласования и оценки влияния потерь волновода. Два фотона с длиной волны  $\lambda_1 = 2\pi c/\omega_1$  в диапазоне от 630 до 665 нм из лазера

на красителе, смешиваются с полем основного излучения Nd:YAG лазера  $\lambda_2=1064$  нм, а генерация антистоксова сигнала происходит в диапазоне длин волн  $\lambda_a$  от 445 до 485 нм. Второй процесс был реализован непосредственно для демонстрации потенциала КАРС спектроскопии с полыми ФК-волоконными с большой площадью сердцевины, и представлял стандартную конфигурацию схему КАРС:  $\lambda_1=532$  нм (излучение накачки и проба) и перестраиваемое  $\lambda_2$  в диапазоне от 645 до 670 нм в качестве стоксовой волны.

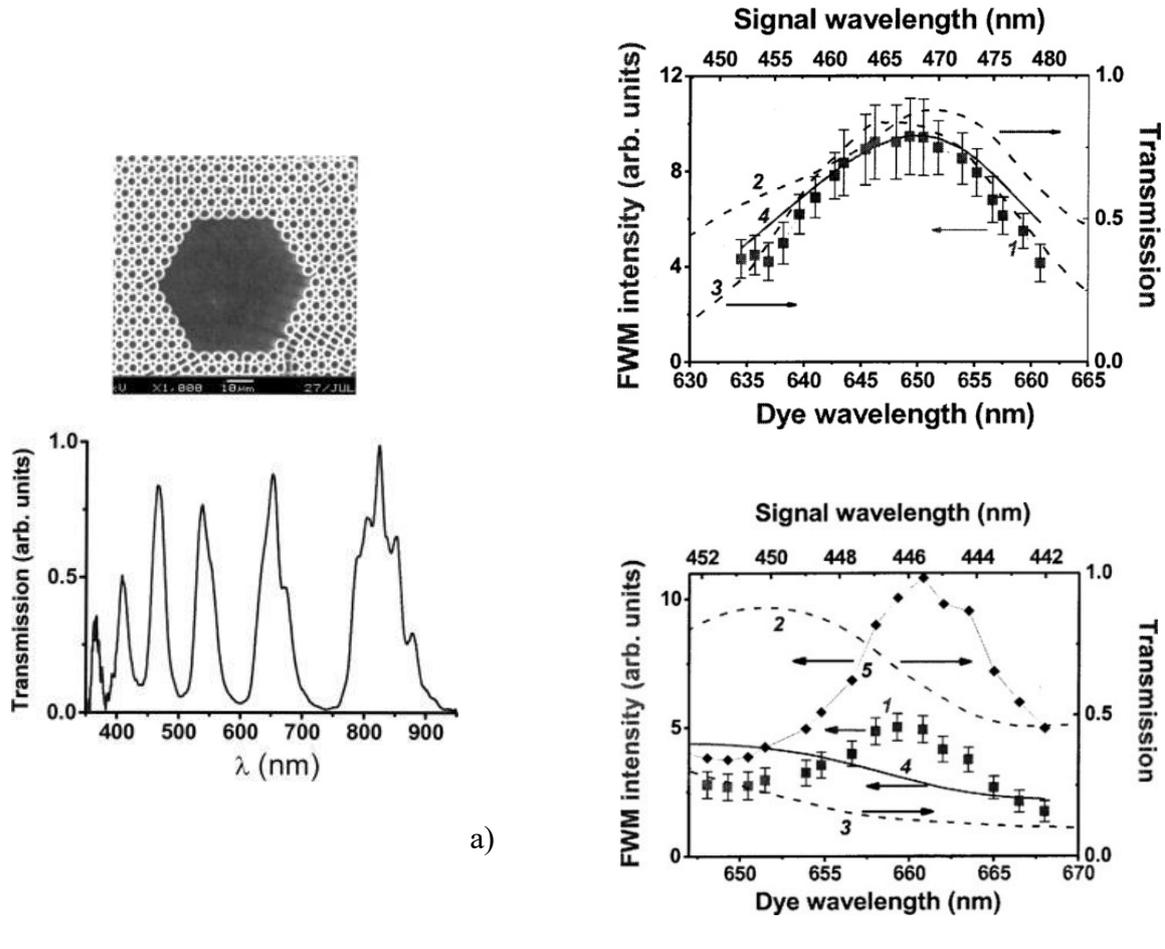


Рис. 5.1.3. (а) Спектр пропускания полого ФК волокна с большим диаметром сердцевины, изготовленном в ТОСС (Саратов); его изображение показано на вставке выше. (б) Интенсивность сигнала четырехволнового смешения  $\omega_a=2\omega_1-\omega_2$  в полом ФК волокне длиной 8 см в зависимости от длины волны излучения лазера на красителе с  $\lambda_1$  в диапазоне от 630 до 665 нм и  $\lambda_2=1064$  нм: 1 — измеренный спектр сигнала ЧВВ; 2 — пропускание волокна для лазера на красителе; 3 — пропускание волокна для сигнала ЧВВ; 4 — спектральный профиль фактора  $M$ . (в) Интенсивность сигнала четырехволнового смешения  $\omega_a=2\omega_1-\omega_2$  в зависимости от длины волны излучения лазера на красителе с  $\lambda_1=532$  нм и  $\lambda_2$  в диапазоне от 645 до 670 нм: 1 — измеренный спектр сигнала ЧВВ; 2 — пропускание волокна для излучения лазера на красителе; 3 — пропускание волокна для сигнала ЧВВ; 4 — спектральный профиль фактора  $M$ ; 5 — спектр сигнала ЧВВ, скорректированный на фактор  $M$  при вычитании спектра сигнала КАРС от нагретого полого ФК волокна.

В первой части экспериментов мы сравнили данные фазового согласованию для процесса КАРС с приведенным выше выражением форм-фактора  $M(\Delta\alpha l, \alpha\alpha l, \delta\beta l)$  с  $\delta\beta L \approx 0$ . Точки с погрешностями (линия 1) на рис. 5.1.3б представляют интенсивность антистоксова

сигнала в полом ФК волокне, измеренную как функцию частоты лазера на красителе. Пунктирные кривые 2 и 3 на этом рисунке показывают пропускание ФК волокна для излучения лазера на красителе и антистоксова сигнала соответственно. Сплошная кривая 4 представляет собой расчетный спектральный профиль фактора  $M(\Delta\alpha L, \alpha\alpha L, 0)$ . Экспериментальные частотные зависимости сигналов ЧВВ, как видно из сравнения линий 1 и 4 на рис. 5.1.3б, полностью контролируются спектральными контурами полос пропускания ФК волокна (линии 2 и 3), и это свидетельствует о том, что эффекты фазового рассогласования для выбранных длин ФКВ намного менее значительны, чем изменения потерь излучения [100,285].

Вторая серия экспериментов была направлена на демонстрацию потенциала волноводного КАРС в полом ФК для сенсорики комбинационно активных частиц. Для этой цели разность частот полей второй гармоники и накачки лазера на красителе сканировалась в области комбинационного резонанса полосы валентных колебаний О—Н молекул воды ( $3200\text{--}3700\text{ см}^{-1}$ ), адсорбированных на внутренних стенках ФК волокна. Для волноводного процесса ЧВВ, включающего основные моды полей накачки с  $\lambda_1=532\text{ нм}$  и  $\lambda_2=660\text{ нм}$ , генерирующих основную моду антистоксова поля, длина когерентности оценивалась  $lc\approx 10\text{ см}$ . На основе этой оценки мы выбрали для экспериментов длину волокна 8 см. При такой длине ФК волокна эффектами, связанными с фазовым рассогласованием, можно пренебречь по сравнению с влиянием потерь на излучение. Частотная зависимость сигнала ЧВВ в ФК волокне существенно отклоняется от спектрального профиля фактора  $M(\Delta\alpha L, \alpha\alpha L, 0)$  (см. линии 1 и 4 на рис. 5.1.3в), что ясно указывает на вклад комбинационно активных частиц в сигнал. Чтобы отделить сигнал КАРС, связанный с адсорбированными на стенках ФК волокна молекулами воды, от вклада О-Н колебаний непосредственно материала волокна, мы измерили спектр сигнала КАРС из нагретого горелкой ФК волокна. Нагрев на 30 К в течение 30 мин уменьшил амплитуду комбинационного резонанса в спектре сигнала КАРС примерно в 7 раз. Высокий уровень сигнала КАРС затем восстанавливался в течение нескольких дней. Этот спектр сигнала КАРС от сухого ФК волокна был вычтен из спектра КАРС, зарегистрированного на выходе полого ФК волокна при “нормальных” условиях.

Примечательно, что контраст экспериментальной зависимости интенсивности ЧВВ от длины волны (квадраты с погрешностями) на рис. 5.1.3б выше, чем контраст аналогичной зависимости для сигнала КАРС на рис. 5.1.3в. Это изменение в соотношении максимальной амплитуды нелинейного сигнала хорошо коррелирует с поведением пропускания для излучения лазера на красителе и нелинейного сигнала, показанного кривыми 2 и 3 на обоих рисунках. При установке длины волны излучения лазера на красителе около 650 нм длины волн как накачки, так и нелинейного сигнала  $\lambda_1$  и  $\lambda_a$  на рис. 5.1.3б близки к соответствующим максимумам пропускания ФК волокна. С другой стороны, сигнал КАРС обнаруживается вдали от максимального пропускания для излучения лазера на красителе и нелинейного сигнала (рис. 5.1.3в). Поэтому важно нормировать измеренный КАРС- спектр к зависимости М-фактора от длины волны, принимая во внимание зависящие от длины волны потери, вносимые ФК волокном. Такая процедура нормализации значительно улучшает контрастность спектра КАРС, как показано кривой 5 на рис. 5.1.3в.

Максимальное отношение сигнал/шум, достигнутое в наших экспериментах в процессе КАРС с использованием световода длиной 8 см (линия 1 на рис. 5.1.3в), оценивалось как  $SN \approx 2,9$ . Интересно сравнить это отношение с типичным значением  $SN$  для спектров КАРС воды в стандартной кювете. Для КАРС-спектров, записанных без когерентного подавления фона [214], отношение сигнал/шум можно описать классическим выражением, в котором за появление шума ответственными являются флуктуационные интенсивности лазера [258]:  $(SN)_{\text{кл}} \approx 2\epsilon^{-1/2}|\chi_r^{(3)}||\chi_{\text{nr}}^{(3)}|$ , где  $\epsilon$  — среднеквадратичное отклонение интенсивности лазера,  $\chi_r^{(3)}$  — пиковое значение резонансной части кубической нелинейно-оптической восприимчивости, а  $\chi_{\text{nr}}^{(3)}$  — нерезонансная составляющая этой восприимчивости. При типичных значениях экспериментальных параметров,  $\epsilon \approx 0,02$  для нашей лазерной системы и  $|\chi_r^{(3)}||\chi_{\text{nr}}^{(3)}| \approx 0,65$  для валентных колебаний О—Н [214] жидкой воды, мы получаем  $(SN)_{\text{кл}} \approx 9,2$ . Таким образом, КАРС молекул воды, адсорбированных на внутренних стенках световода из атмосферного воздуха при нормальных условиях, может обеспечить отношение сигнал/шум на уровне приблизительно 30% от классического предела отношения сигнал/шум, достижимого для жидкой воды со стандартной реализацией спектроскопии КАРС. Этот результат предполагает, что КАРС в полых ФК волокнах может быть использован в качестве удобного метода зондирования для веществ в газообразном или конденсированном состоянии, заполняющих сердцевину ФК волокна или адсорбированных на внутренних стенках волокна. Соотношение сигнал/шум для такого метода зондирования может быть значительно улучшено за счет подавления когерентного фона с использованием задержанных по времени импульсов накачки (нестационарный КАРС) [291] или методов когерентного управления [17].

Суммируя представленные результаты, можно сказать, что волноводное увеличение эффективности нелинейно-оптических взаимодействий в полых фотонно-кристаллических (микроструктурированных) волокнах позволяет значительно повысить чувствительность нелинейно-оптической КАРС-спектроскопии газовых сред. Комбинационные резонансы, связанные с колебаниями молекул воды, обнаружены в спектре сигнала четырехволнового смещения, что предполагает фазово-согласованное когерентное антистоксово комбинационное рассеяние в полых фотонно-кристаллических волокнах как удобный метод обнаружения конденсированных частиц, адсорбированных на внутренних стенках волокна.

## **§5.2. Разделение вкладов оболочки и сердцевины в процесс когерентного антистоксова рассеяния света в полых фотонно-кристаллических световодах.**

В предыдущем параграфе было отмечено, что при использовании полых ФК волноводов в качестве зондов, повышающих эффективность КАРС-спектроскопии, могут возникать условия, требующие учета не только условий распространения и нелинейно-оптического взаимодействия импульсов накачки и генерируемого сигнала, но и сложной составной оптической нелинейности, включающей вклады от заполняющего волновод газа и материала оболочки. Условия распространения излучения в полых фотонно-

кристаллических волокнах разных типов заметно уменьшают влияние эванесцентных волн, тем не менее вклад оболочки в общую нелинейность в определенных условиях может играть заметную роль поскольку нелинейность материала оболочки гораздо больше, чем для газовых сред. Нелинейность среды, во-первых, включает в себя «быструю» электронную (керровскую) составляющую, которая в том числе определяет характер процессов нелинейно-оптического преобразования предельно коротких импульсов [292]. С другой стороны, связанная с молекулярными колебаниями «медленная» комбинационная нелинейность оболочки также оказывает сильное влияние на спектрально-временную динамику распространяющихся по волокну импульсов, например, определяя длинноволновое смещение частоты мегаваттных солитонов в процессе солитонного самосдвига частоты [73]. В представленных ниже результатах будет показано, что сам процесс когерентного антистоксова рассеяния света в полых световодах, а именно интерференционные особенности формирования его спектра, позволяют анализировать и разделять вклад в составную нелинейность мод оболочки и заполненной газом полый сердцевины [293,294].

При выполнении условия фазового согласования мощность четырехволнового взаимодействия, для случая процесса КАРС может быть представлена в виде [258]

$$P_a = \frac{2\pi\omega_a^2}{cn(\omega_a)} |G|^2 |A_1^2 A_2^*|^2 L^2, \quad (5.3)$$

где  $A_1, A_2$  - амплитуды волн накачки,  $n(\omega_a)$  – показатель преломления моды антистоксовой волны,  $L$  – длина световода, а определяющий влияние составной нелинейности сигнала КАРС форм-фактор  $G$  представляется в виде

$$G = \frac{\int \chi_{\text{КАРС}}^{(3)}(r) [f_1(r)]^2 f_2(r) f_a(r) d^2r}{\int [f_1(r)]^2 d^2r \{ \int [f_2(r)]^2 d^2r \int [f_a(r)]^2 d^2r \}^{1/2}}, \quad (5.4)$$

где  $\chi_{\text{КАРС}}^{(3)}(r) = \chi^{(3)}(r; \omega_a; \omega_1, \omega_1, -\omega_2)$  ответственная за процесс КАРС нелинейная оптическая восприимчивость третьего порядка;  $f_1(r), f_2(r)$  и  $f_a(r)$  пространственные функции профиля волноводной моды излучений накачек и сигнала четырехволнового смешения на антистоксовой частоте соответственно; а  $\Psi = \int [f_1(r)]^2 d^2r \{ \int [f_2(r)]^2 d^2r \int [f_a(r)]^2 d^2r \}^{1/2}$ . При условии постоянства кубической восприимчивости по сердцевине ( $\Sigma_{\text{сердц}}$ ) и оболочки ( $\Sigma_{\text{обол}}$ ):

$$\begin{aligned} \chi_{\text{КАРС}}^{(3)}(r) &= \chi_{\text{КАРС}}^{(3)}(\text{сердц}), \quad r \in \Sigma_{\text{сердц}}; \\ \chi_{\text{КАРС}}^{(3)}(r) &= \chi_{\text{КАРС}}^{(3)}(\text{обол}), \quad r \in \Sigma_{\text{обол}} \end{aligned} \quad (5.5)$$

для задачи с цилиндрической симметрии световода уравнение (5.4) редуцируется  $G = G_{\text{сердц}} + G_{\text{обол}}$ , при этом факторы  $G$  представляются как

$$\begin{aligned}
G_{\text{сердц}} &= 2\pi\Psi^{-1}\chi_{\text{КАРС}}^{(3)}(\text{сердц}) \int_0^a [f_1(r)]^2 f_2(r) f_a(r) d^2r; \\
G_{\text{обол}} &= 2\pi\Psi^{-1}\chi_{\text{КАРС}}^{(3)}(\text{обол}) \int_a^\infty [f_1(r)]^2 f_2(r) f_a(r) d^2r.
\end{aligned} \tag{5.6}$$

Эти выражение в явном виде описывают природу КАРС сигнала, связанную с составной нелинейностью.

В работе используется подход и экспериментальная схема на основе наносекундного лазерного комплекса, кратко описанного в предыдущем параграфе, включая полое фотонно-кристаллическое волокно, изготовленное в ТООС (Саратов). Оно имело диаметр сердцевины порядка 13 мкм, период структуры оболочки составлял  $\sim 4,5$  мкм, а его спектр пропускания представлен на вставке к рис. 5.1.1. Как уже отмечалось, структура данных типов волокон определяла достаточно высокие потери [70], что ограничивало используемые длины в пределах 10 см, однако существенно не влияло на анализ составной нелинейности волновода. Также в описываемых экспериментах вместо излучения второй гармоники Nd:YAG лазера использовался второй лазер на красителе для обеспечения плавной перестройки длины волны излучения накачки и возбуждения комбинационного резонанса молекулярного азота  $N_2$ . Ширина линий излучений накачек составляла величину порядка  $0,7 \text{ см}^{-1}$ , энергии заводимых в волокно импульсов не превышали 100 мкДж, что гарантировало отсутствие разрушения оболочки.

Нелинейная восприимчивость заполненной газом сердцевины волокна комплексная, так как содержит сдвинутые по фазе резонансную и нерезонансную составляющую,  $\chi_{\text{КАРС}}^{(3)}(\text{сердц}) = \bar{\chi}_p^{(3)} + \chi_{\text{нр}}^{(3)}$ , в то время как в кубической восприимчивости оболочки основной вклад дает нерезонансная действительная составляющая  $\chi_{\text{КАРС}}^{(3)}(\text{обол}) = \chi_{\text{обол}}^{(3)}$ . Настраиваясь разностной частотой  $\omega_1 - \omega_2$  на колебательный резонанс заполняющего полое ФК волокно комбинационно активного газа мы увеличиваем комбинационную часть его нелинейности. Анализируя форму спектра КАРС, мы можем получить информацию о разных компонентах составной нелинейности. Форма линии комбинационного резонанса в спектре КАРС обусловлена резонансной кубической восприимчивостью  $\bar{\chi}_p^{(3)}$ , связанной с собственными частотами молекул газа в сердцевине, и нерезонансной частью кубической восприимчивости, которая включает в себя нерезонансную восприимчивость газа в сердцевине  $\chi_{\text{нр}}^{(3)}$  и материала оболочки  $\chi_{\text{обол}}^{(3)}$ . Для Лоренцевского профиля резонансной восприимчивости,  $\bar{\chi}_p^{(3)} = -\chi_p^{(3)}/(i + \Delta)$ , где  $\chi_p^{(3)}$  - действительный параметр,  $\Delta = (\omega_1 - \omega_2 - \Omega)/\Gamma$ , где  $\Gamma$  - ширина резонансной линии, уравнение (5.3) упрощается до:

$$P_a \sim (|\frac{G_p \Delta}{\Delta^2 + 1} - G_{\text{нр}} - G_{\text{обол}}| + |\frac{G_p \Delta}{\Delta^2 + 1}|) P_1^2 P_2 L^2, \tag{5.7}$$

где  $P_1$  и  $P_2$  мощности накачек, а

$$G_{p,нр} = 2\pi\Psi^{-1}\chi_{p,нр}^{(3)} \int_0^a [f_1(r)]^2 f_2(r) f_a(r) d^2r, \quad (5.8)$$

При фиксировании частоты излучения первого лазера на красителе и сканировании длины волны второго, что обеспечило перекрытие с комбинационным резонансом их разности частот, сначала был измерен реперный спектр КАРС сигнала молекулярного азота без использования волокна (рис. 5.2.1), который совпадал с результатами предыдущего параграфа и соответствовал нашей ранней работе [288]. Аппроксимация экспериментальных результатов на основе выражений (5.7) и (5.8) дает значения  $G_{обол} = 0$  и  $|G_{нр}|/|G_p| = 0.05$ . Практически симметричная форма профиля спектра сигнала КАРС подчеркивает тот факт, что нерезонансная часть кубической восприимчивости гораздо слабее его резонансная части.

Для демонстрации применения нашего подхода по оценке вклада оболочки полого ФК волокна в суммарную оптическую нелинейность, было использованы длины волн накачек лазеров на красителях со значениями близкими к границе фотонно-запрещенной зоны используемого ФК волокна (см. вставку рис. 5.2.1.). Длина волны одного лазера на красителе устанавливалась на значении 565.4 нм, а длина волны второго лазера сканировалась в области 651-652 нм. Точный резонанс с молекулярными колебаниями азота соответствовал длине волны антистокосва сигнала 499.5 нм, то есть смещался от центра соответствующей полосы пропускания полого ФК волокна 510 нм (см. вставку рис. 5.2.1а). Измеренный на выходе из полого ФК волокна длиной 5 см (см. рис. 5.2.1б) КАРС-спектр характеризуется асимметрией, что говорит о существенном влиянии интерференцию резонансной и нерезонансной части.

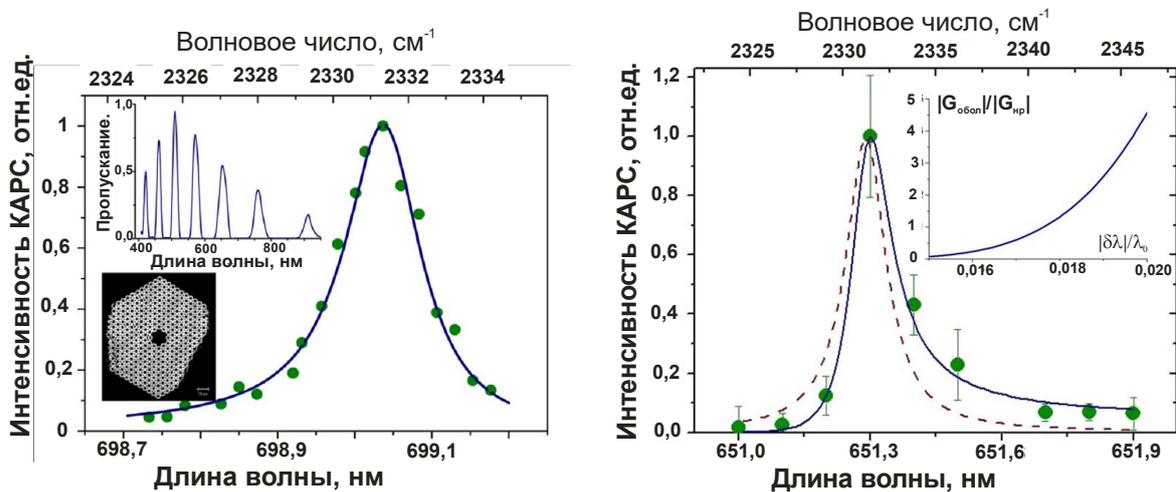


Рис. 5.2.1. (а) Опорный спектр КАРС азота, измеренный при атмосферном давлении без волокна (также пунктир на панели (б)). На вставках изображены спектр пропускания использованного волокна и изображение его поперечного среза. (б) КАРС спектр, измеренный на выходе из полого ФК волокна длиной 5 см (точки) и его аппроксимация (сплошная линия). На вставке представлено отношение  $G_{нр}$  и  $G_{обол}$ , рассчитанное как функция смещения  $|\delta\lambda|/\lambda_0$  где  $\delta\lambda = \lambda_a - \lambda_0$ . (б)

Полученные экспериментальные спектры были аппроксимированы с помощью уравнений (5.6) и (5.7) и получены значения  $|G_{нр}|/|G_p| = 0.05$  и  $|G_{обол}|/|G_{нр}| = 5$ . То есть в

наших условиях вклад нелинейности оболочки волновода превышает её нерезонансную часть, но остаётся значительно меньше резонансной нелинейности сердцевины. Анализ отношения  $G_{\text{нр}}$  и  $G_{\text{обол}}$  в зависимости от относительного смещения  $|\delta\lambda|/\lambda_0$  ( $\delta\lambda = \lambda_a - \lambda_0$ ) показывает, что излучение хорошо локализовано в сердцевине волокна в середине зоны пропускания и нерезонансная нелинейность азота сравнима с нерезонансной нелинейностью оболочки  $|G_{\text{обол}}|/|G_{\text{нр}}| \approx 1$  (вставка к рис. 5.2.1). При смещении к границе зоны пропускания вклад нелинейности оболочки становится значительным. Для  $|\delta\lambda|/\lambda_0 \approx 0.02$  отношение  $|G_{\text{обол}}|/|G_{\text{нр}}| \approx 5$ , что подтверждается экспериментальными результатами. Оценки вклада нерезонансной нелинейности были также проделаны для четырехволнового смещения мощных фемтосекундных импульсов в подобных волокнах и находятся в хорошем согласии с нашими результатами расчета  $G_{\text{нр}}$  и  $G_{\text{обол}}$  [99].

Подводя итог выполненных экспериментов, можно сказать, что данный метод позволяет оценить влияние и вклад оболочки в общую нелинейность мод волокна, которая определяет форму КАРС сигнала, являющейся результатом интерференции вкладов резонансной оптической нелинейности исследуемого газа и нерезонансной составляющей материала оболочки. Спектральная форма резонансного комбинационного сигнала КАРС может значительно искажаться (особенно вблизи границ областей пропускания волокна), что позволяет учесть нерезонансный вклад оболочки, тем самым повысив спектральную точность проводимых измерений.

Ниже отметим несколько других исследованных нами возможностей использования методов на основе четырехволнового взаимодействия с наносекундными импульсами и микроструктурированных световодов. В работе [295] было показано, что ЧВВ позволяет реализовать метод измерения пространственной структуры и нелинейных свойств каналов микронных и субмикронных размеров в МС волокнах, которые в силу своего размера обладают высокой нелинейностью и могут быть использованы для эффективного нелинейно-оптического преобразования, в частности, для генерации суперконтинуума. Спектр сигнала четырехволнового взаимодействия, определяемый профилем дисперсии волноводных мод таких объектов, позволяет определить их поперечные размеры и зарегистрировать наномасштабные изменения пространственной структуры. Вблизи нуля дисперсии групповых скоростей подобных микронных и субмикронных каналов нелинейно-оптические методы позволяют характеризовать их свойства со значительно более высокой точностью, чем линейные методы, что реализуется за счет анализа спектра сигнала четырехволнового взаимодействия при накачке узкополосными нано- или пикосекундными импульсами. В наших работах [296,297] было продемонстрировано, что для таких длинных импульсов (или даже непрерывного излучения), определяющую роль в характере спектрально-временного преобразовании излучения накачки играют именно параметрические четырехволновые процессы и вынужденное комбинационное рассеяние.

Другое интересное направление использования полых фотонно-кристаллических волокон основывается на возможности заполнения их не только газами, но и жидкостями, что сказывается в сильном изменении дисперсионных и волноводных свойств. Во-первых, это приводит к значительному увеличению эффективности нелинейно-оптических

процессов [298], а во-вторых, может обеспечить новые аспекты использования фотонно-кристаллических волокон для инициирования различных типов сложных молекулярных движений [299], определения связи между оптической нелинейностью и молекулярной динамикой с временным разрешением [300,301]. Экспериментально и теоретически были проанализированы возможности заполненных жидкостями фотонно-кристаллических световодов для управления характером эффективных нелинейно-оптических процессов, в частности вынужденного комбинационного рассеяния и генерации суперконтинуума [302–304]. В наших работах [305], также исследовались вопросы, связанные с заполнением полого фотонно-кристаллического световода молекулярными жидкостями, в частности было продемонстрировано возможность поддержания одномодового режима распространения накачки в заполненном толуолом канале с диаметром около 4 мкм. Принципиально эти исследования предоставляли базу для исследования процессов нелинейно-оптического взаимодействия с веществами в жидкой фазе, однако эта тема не получила серьезного продолжения.

Технологичные применения полых микроструктурированных (фотонно-кристаллических) волокон в качестве сенсоров могут быть связаны не только с нелинейно-оптическими явлениями, но и с линейными [108,306]. Подобные сенсорные волноводные устройства, как правило, основаны на использовании одного из двух принципов: (i) оптическом возбуждении аналита эванесцентным полем, т.е. распространяющейся за пределами сердцевины волновода частью волноводной моды, и (ii) регистрации небольшого изменения постоянной распространения волноводной моды, возникающего в результате изменения показателя преломления аналита или иммобилизации молекул на оболочке волновода. Высокая чувствительность системы обеспечивается условиями резонансного возбуждения мод оболочки волновода, идентичных модам интерферометра Фабри-Перо (аналогичных рассмотренным в параграфе 4.2), и сильной связи моды сердцевины с этими модами. Основанные на этом принципе сенсорные системы обеспечивают высокие чувствительности регистрации малых изменений показателей преломления аналита и обнаружения монослоев молекул, иммобилизуемых на поверхности оболочки волновода. Для подобных сенсорных устройств не требуется внешний интерферометр, т.к. интерферометрическая система (типа интерферометра Фабри-Перо) интегрирована непосредственно в волновод. В нашей работе и патенте [307,308] рассматривались сенсорные устройства двух типов. Сенсоры первого типа предназначены для регистрации тонких слоев биомолекул иммобилизуемых на поверхности оболочки. Сенсоры второго типа позволяют зарегистрировать малые изменения показателя преломления аналита, заполняющего воздушные отверстия волноводной структуры. Как было отмечено в наших работах, такие волоконные сенсоры обеспечивают возможность интеграции на платформе единого чипа и позволяют создавать системы для параллельного экспресс-мониторинга нескольких анализируемых веществ. В целом можно сказать, что применение микроструктурированных (фотонно-кристаллических) волокон в качестве элементов сенсорных устройств, является одной из областей, в которых они нашли заметную нишу.

### §5.3. КАРС-микроспектроскопия кристаллических кремниевых структур с использованием перестраиваемого источника на основе микроструктурированных световодов с увеличенной площадью сердцевины

Одной из основных целей диссертационной работы является демонстрация возможностей практических применений нелинейно-оптических преобразований в микроструктурированных волокнах для получения перестраиваемых импульсов с высокой пиковой мощностью и их приложений в области спектроскопии и микроскопии. В параграфе 3.5 было представлено формирование перестраиваемых фемтосекундных импульсов в микроструктурированных волокнах с увеличенной сердцевиной ( $d = 20$  мкм и  $L = 14$  мкм) в ближнем инфракрасном (ИК) диапазоне при накачке излучением фемтосекундной системы на кристалле хром-форстерита. Возможность использования импульсов в инфракрасной области спектра может являться очень важным преимуществом для спектроскопических приложений в геометрии “на просвет”, когда исследуемый материал поглощает зондирующее излучение в видимой области. Объектом для представленных ниже исследований КАРС-микроспектроскопии явился кристаллический кремний [309,310].

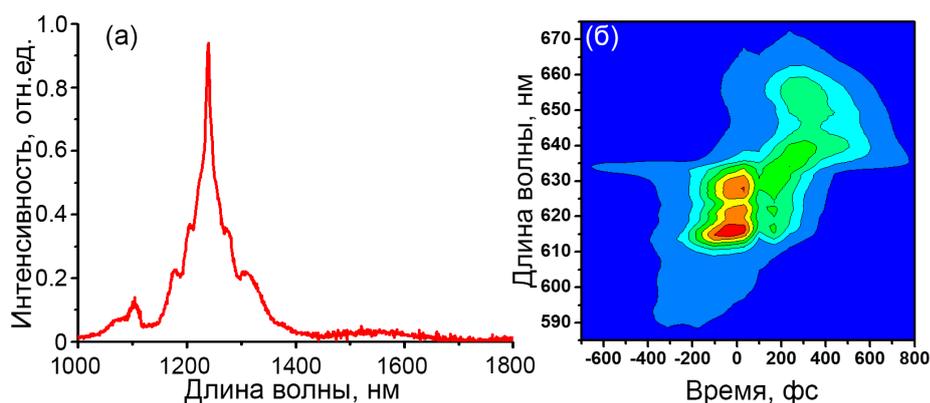


Рис 5.3.1 Спектр (а) и спектрохронограмма (б) импульсов хром-форстеритовой системы, испытавших нелинейно-оптическое преобразование в отрезке микроструктурированного волокна с увеличенной сердцевиной.

Спектр и спектрохронограмма прошедшего через микроструктурированное волокно импульса показаны на рис 5.3.1а,б. С помощью них можно оценить длительность смещенного в длинноволновую область солитона как 500 фемтосекунд, а его энергию порядка 10 нДж. При этом длина волны солитона, используемого в качестве стоксовой волны  $\omega_2$ , подбиралась за счет параметров накачки для обеспечения возбуждения комбинационного резонанса продольной фоновой моды кристаллического кремния с частотой  $\Omega_R = 520$  см<sup>-1</sup>. В качестве накачки использовалась ослабленные импульсы на центральной длине волны фемтосекундной Cr:forsterite лазерной системы  $\omega_{\text{КАРС}} = 2\omega_1 - \omega_2 = \omega_1 - \Omega_R$ . Оба импульса накачки сводились в слабой неколлинеарной геометрии на дихроичном зеркале и фокусировались в пятно с радиусом  $\approx 5$  мкм на подложку кристаллического кремния.

Особенностью представленных экспериментов являлось использование усиленных импульсов хром-форстеритовой системы, что требовало учета как возможности фотоповреждения образца, так и влияния двухфотонного поглощения. Параметры (энергия) лазерных импульсов, фокусируемых на кремниевую подложку в неколлинеарной схеме с углом порядка пяти градусов в объеме, подбирались так, чтобы избежать повреждения образца и минимизировать эффекты, связанные с двухфотонным поглощением (ДФП) в области антистоксова сигнала. Двухфотонным поглощением можно пренебречь в случае  $\beta l < 1$ , где  $\beta \approx 4.5 \cdot 10^{-10}$  см/Вт коэффициент ДФП для кремния,  $I$  – интенсивность, а длина нелинейно-оптического взаимодействия  $l$  с учетом угла фазового согласования возбуждающих импульсов внутри образца составляла величину порядка 100 мкм. Эти оценки давали допустимые пределы энергий используемых импульсов накачки менее 100 нДж, что соответствовало условиям эксперимента, о чем также дополнительно свидетельствовала чисто квадратичная зависимость сигнала КАРС от энергии импульсов накачки [310]. Относительно слабая фокусировка зондирующих импульсов определяла конфокальный параметр равным 0.5 мм, однако оцененное выше значение нелинейной длины  $l$  позволяло около регистрировать значительно более мелкомасштабные смещение подложки (около 150 мкм) при вертикальном изменении положения фокуса относительно поверхности подложки (рис 5.3.2а).

Ширина комбинационного резонанса продольной фононной моды кристаллического кремния обычно принимается за  $3.5 \text{ см}^{-1}$ , поэтому в случае фемтосекундных зондирующих импульсов форма антистоксова сигнала определяется прежде всего их спектральной шириной (рис. 5.3.2а). Для подтверждения и оценки комбинационного вклада фононной моды в спектр КАРС-сигнала стоксов сигнал отстраивался от условия точного резонанса, что также давало похожую форму сигнала КАРС, но с интенсивностью в 4.6 раз меньшей относительно резонансного. С учетом спектральной формы импульсов накачки это значение с погрешностью около 35% подтверждается отношением резонансной и нерезонансной интенсивности КАРС-сигнала, определяемая отношением эффективных компонент тензора кубической восприимчивости  $|\chi_{1221}^{(3)R}| / |\chi_{1221}^{(3)NR}| \approx 45$ .

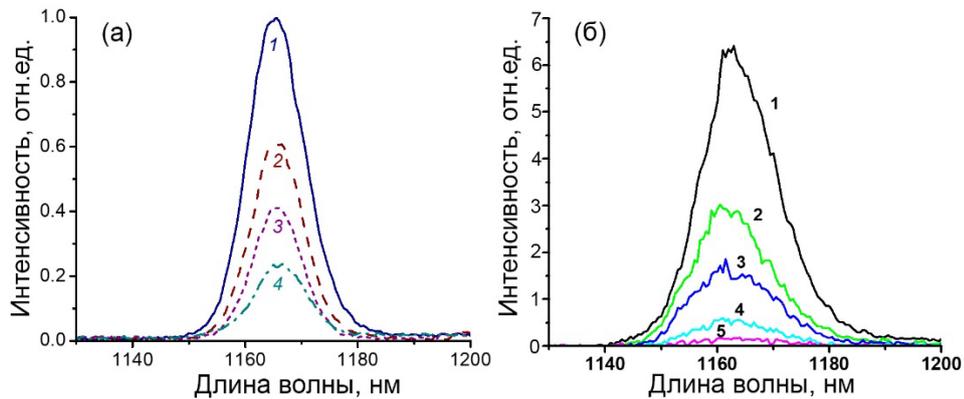


Рис 5.3.2 а) Спектр КАРС-сигнала от Si подложки толщиной 1.5 мм при разных значениях расстояния от фокуса до поверхности: 0 мкм (1), 300 мкм (2), 450 мкм (3), 600 мкм (4). б) Спектры сигнала КАРС сигнала при изменении временной отстройке импульсов накачки относительно величины максимального значения антистоксова сигнала: (1) – центральное положение; (2) и (3) +132 и -132 фс, (4) и (5) +198 и -198 фс.

Далее в этих работах были протестированы возможности осуществления КАРС-микроспектроскопии кремниевых пластин в режиме пространственного сканирования (рис.5.3.3) и получения двумерных изображений.

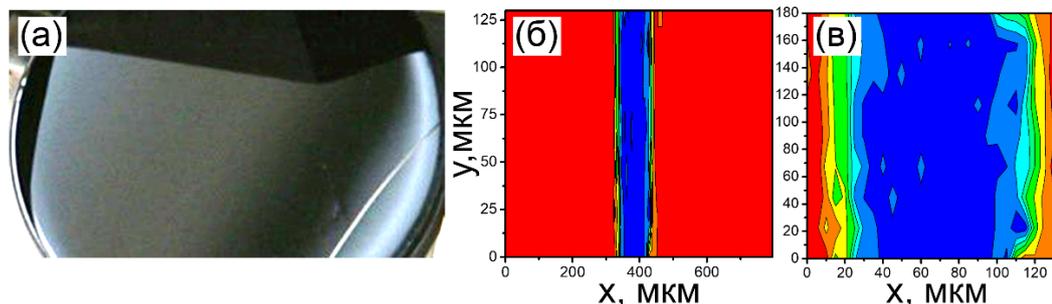


Рис 5.3.3. (а) Фотография дефекта, нанесенного на поверхность кремниевой подложки. (б,в) Двумерные КАРС спектрограммы подложки кристаллического Si с разными масштабами и временем сканирования 26 минут (б) и 4.5 минуты (в).

В экспериментах, на кремниевую подложку наносился дефект размером около 50 мкм (рис.5.3.3а), который создавал “тень” для импульсов накачки при поперечном сканировании образца, осуществленного с различными временными масштабами. Анализ неколлинеарных условий фокусировки и КАРС-изображений (рис.5.3.3б,в) позволил оценить поперечное разрешение тестовых экспериментов в 10 мкм, а для продольного эта величина составила порядка 200 мкм. При повышении пространственного и спектрального, а также быстродействия схемы эта методика может расширена для исследования процессов фотоиндуцированной генерации носителей зарядов в кремниевых структурах, составляющих основу полупроводниковой микроэлектроники [309].

#### **§5.4 Спектрально временные преобразования неусиленных импульсов от хром-фостеритового генератора в микроструктурированных световодах и нелинейных кристаллах для задач КАРС-микроскопии.**

Как было представлено выше, лазерные системы на основе усиленных фемтосекундных импульсов и микроструктурированных волокон для генерации перестраиваемых спектральных компонент могут быть эффективно использованы для реализации методов нелинейно-оптической спектроскопии на основе четырехволнового взаимодействия (ЧВВ), в частности КАРС-спектроскопии. Но невысокая частота работы лазерных систем с усилением (обычно порядка одного или нескольких килогерц) является принципиальным фактором, ограничивающим возможность их использования в методиках, где требуется получение изображений объектов в реальном времени. Поэтому современной тенденцией для задач сканирующей нелинейной микроскопии является использование фемтосекундных лазерных источников с мегагерцовой частотой следования импульсов.

В силу нелинейного характера взаимодействия со средой принципиально важным остается вопрос поддержания высокой пиковой мощности зондирующих импульсов, что часто достигается за счет уменьшения частоты повторения, но обеспечивает возможность использования импульсов в десятки и даже сотни наноджоулей. Современное направление

развития нелинейно-оптической визуализации состоит в преимущественном использовании таких высокоэнергетичных импульсов с частотой повторения в пределах от 1 до 20 мегагерц. Помимо увеличения эффективности генерации нелинейного сигнала, это позволяет уменьшить тепловую нагрузку на исследуемые объекты, что особенно важно для изучения биологических тканей. Одним из способов выполнения этих рекомендаций для лазерных источников является увеличение длины резонатора, что позволяет генерировать сверхкороткие импульсы с энергиями до нескольких десятков наноджоулей [311,312]. В Главе 3 была продемонстрирована эффективная генерация суперконтинуума и перестраиваемых импульсов в процессе солитонного самосдвига частоты от неусиленных импульсов хром-форстеритового генератора с удлинённым резонатором (частота повторения 20 МГц, энергия в импульсе до 25 нДж на длине волны 1.25 мкм), что позволяет говорить об удобной платформе для нелинейно-оптической микроскопии [131,313,314] и в целом хорошо согласуются с общим подходом к реализации этого направления [315,316].

Нелинейно-оптические методы имеют различную природу и особенности применения. В частности, КАРС микроспектроскопия обладает химической селективностью, что в основном предполагает использование достаточно узких спектральных линий импульсов накачки, определяемых условиями задачи и характеристиками комбинационных резонансов исследуемых объектов. Например, в описанных в предыдущем параграфе экспериментах даже при использовании импульсов с длительностями в несколько сотен фемтосекунд их спектральная ширина значительно превосходила ширину комбинационного резонанса продольных фононов кристаллического кремния фотонов, и условием его уверенного детектирования явилось наличие только одной исследуемой спектральной линии. Одним из возможных решений задачи повышения спектрального разрешения является использование фазовой модуляции импульсов накачки, что позволяет возбуждать и зондировать отдельные комбинационные резонансы [317].

Характерная длительность генерируемых перестраиваемых спектрально-ограниченных импульсов в нашей системе составляет порядка 60-70 фс, что соответствует ширине спектра более  $240 \text{ см}^{-1}$  и принципиально ограничивает спектральное разрешение методов когерентного комбинационного рассеяния. В настоящем параграфе представлена практическая реализация рассмотренной ранее идеи спектральной компрессии сверхкоротких импульсов в процессах нелинейно-оптических преобразований в МС световодах, а также нелинейно-оптических кристаллах [313] для реализации новой оригинальной схемы для КАРС-спектроскопии со спектрально сжатыми импульсами [313,314].

Явление спектральной компрессии отрицательно chirпированного импульса в оптическом волокне было предсказано в 1993 году [203], а первые эксперименты реализованы в 2000 году [204]. Отрицательное chirпирование импульса располагает синие компоненты на фронте, а красные на хвосте импульса. Влияние фазовой самомодуляции (ФСМ) проявляется в отстройке мгновенной частоты импульса так, что на фронте импульса ФСМ уменьшает мгновенную частоту, а на хвосте увеличивает, что компенсирует отрицательный начальный линейный chirп и “перекачивает” энергию в центральную часть импульса с его краев [1]. При соответствующем подборе начальных условий – энергии

импульса накачки и его чирпа [204], и используя уникальные свойства микроструктурированных волокон, возможно формирование с минимальными потерями близкого к спектрально-ограниченному импульса с обуженным спектром [206].

Экспериментальная схема включала фемтосекундный генератор на кристалле Cr:forsterite и два различных МС световода (рис.5.4.1). Лазерное излучение делилось на два плеча: в первом плече (МС 1) формировались перестраиваемые по частоте импульсы ( $\lambda_s = 1300 - 1800$  нм) в процессе солитонного самосдвига частоты (ССЧ), в другом плече, включающем призмный стретчер и микроструктурированное волокна (МС2) реализовывалась спектральная компрессия импульсов основного излучения хром-форстеритового генератора ( $\lambda_p = 1250$  нм). Длительность импульсов основного излучения хром-форстеритового лазера в условиях описываемых экспериментов составляла 65-70 фс с соответствующей спектральной шириной порядка 33 – 35 нм. Призмный стретчер формировал отрицательный чирп (около  $7600$  фс<sup>2</sup>), растягивая импульсы до 300 фс, и далее они заводилось в МС световод (МС2).

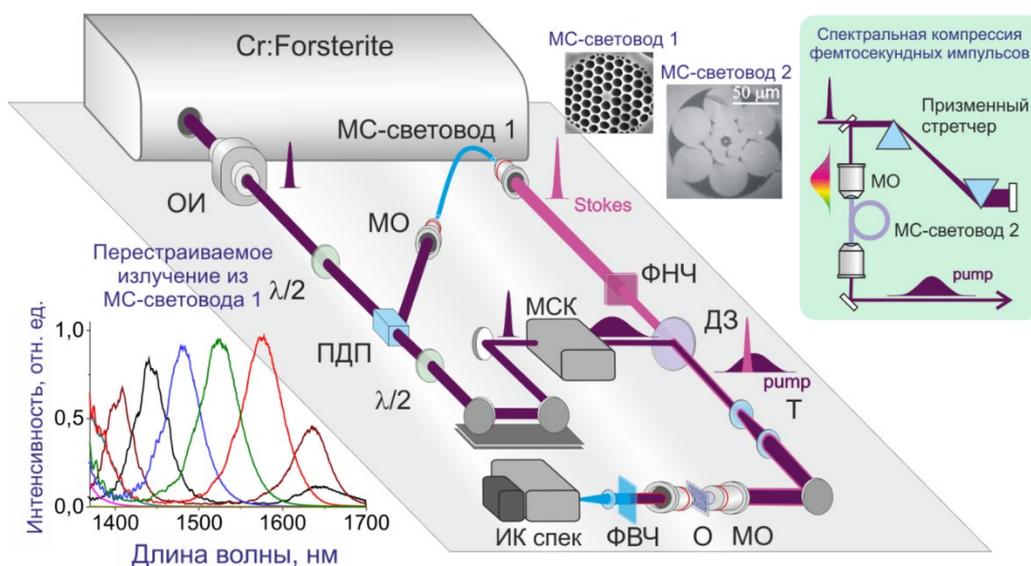


Рис.5.4.1. Схема экспериментальной установки для КАРС-спектроскопии со спектрально сжатыми импульсами, на основе хром-форстеритового генератора с удлиненным резонатором и микроструктурированных световодах со сплошной сердцевиной. На вставке представлены поперечные сечение используемых МС волокон, а также схема модуля спектральной компрессии фемтосекундных импульсов; а внизу область перестройки ИК импульсов в МС световоде 1 [314].

В экспериментах были использованы два различных МС волокна с диаметрами сердцевины 5 и 7 мкм и разными длинами 7, 10 и 20 см. На рис.5.4.2 представлены результаты спектральной компрессии импульсов накачки в этих волокнах. При увеличении энергии накачки сначала происходит спектральное сжатие до определенного уровня, а затем снова становится заметным спектральное уширение (рис.5.4.2аб). Построенные значения спектральной ширины импульсов на рис.5.4.2в демонстрируют, что в более длинных волокнах с меньшей площадью сердцевины достигается предельное сжатие при меньших энергиях накачки (максимально полученный коэффициент сжатия оценен как 3.7, что соответствует спектральной компрессии импульса до 10 нм (рис. 5.4.2г)). С другой

стороны волокна с большей сердцевиной позволяют компрессировать более мощные импульсы. Оценки показывают, что для большей компрессии, например, достижения ширины линии порядка 3 нм, необходимо предварительно chirпировать импульс до 1 пикосекунды [318] и использовать волокна с большими длинами.

Возможности вариации свойств микроструктурированных волокон позволяют подбирать оптимальное решение для целей спектральной компрессии излучения. Необходимо отметить, что специальный сложный дисперсионный профиль микроструктурированных световодов может позволить осуществить спектральную компрессию и без предварительного chirпирования, однако в этом случае существуют существенные ограничения как по энергии используемых импульсов, так и по эффективности уменьшения ширины их спектра [207].

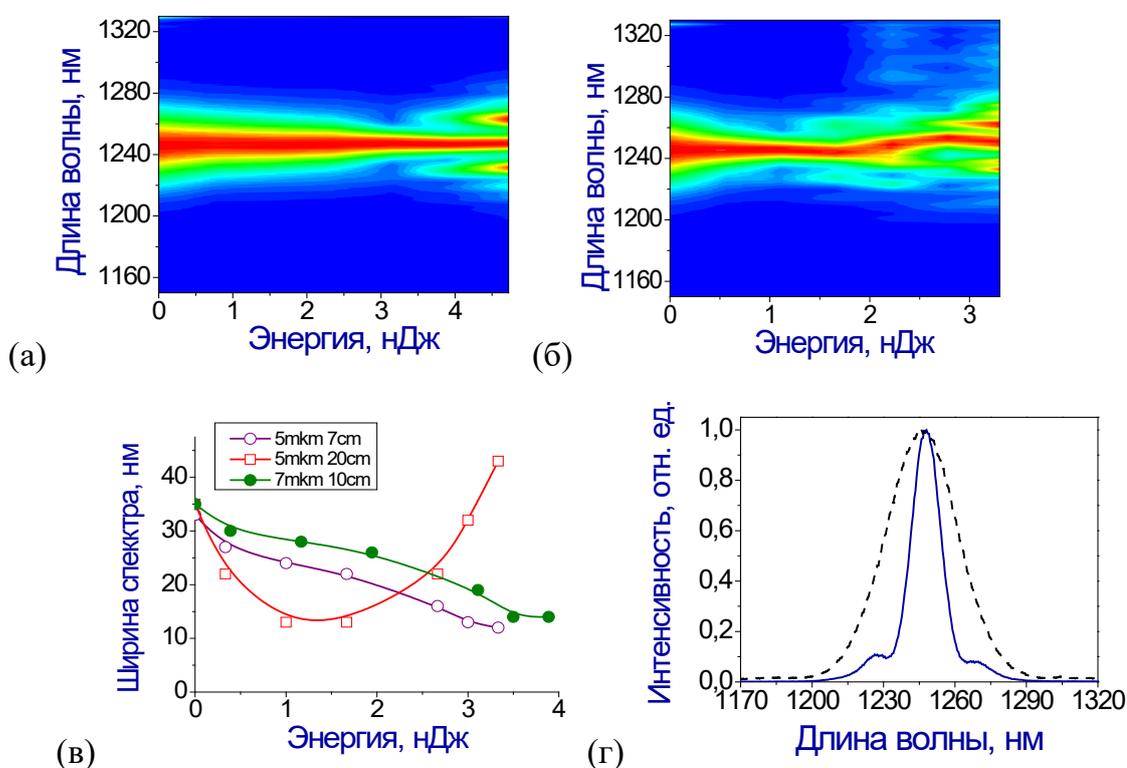


Рис.5.4.2. Двумерные карты спектральной компрессии импульсов с различными энергиями от хром-форстеритового генератора в МС световоде с диаметром сердцевины 5 мкм и различными длинами 7 см (а) и 20 см (б). Изменение ширины спектра импульса в световодах различной длиной при изменении энергии накачки (в). Пример максимально достигнутого сжатия спектра до  $65 \text{ см}^{-1}$  в МС волокне с диаметром сердцевины 5 мкм при энергии импульсов накачки 3.2 нДж (г).

Спектрально отфильтрованное излучение накачек из двух плеч сводилось на дихроичном зеркале (рис.5.4.1) и формировало бигармоническую накачку в ближнем инфракрасном диапазоне для КАРС-спектроскопии и микроспектроскопии, реализация которой представлена в следующем параграфе на примере исследования поликристаллической пленки синтетического алмаз. Энергия импульсов накачки составляла порядка 1 нДж, что при фокусировке импульсов с помощью объектива в пятно

диаметром около 4 мкм определяло интенсивность излучения в  $2 \cdot 10^{11}$  Вт/см<sup>2</sup>. В реализованной экспериментальной схеме для обеспечения плавной перестройки энергии и осуществления стабилизации энергии в волокне на длительных промежутках времени в плечо формирования стока излучения помещался поляризационный автоматизированный аттенуатор. Также характерной особенностью реализованного КАРС спектрометра является использование всех сигналов в ближней инфракрасной области (антистоксов сигнал в области 850 – 1100 нм), что требовало соответствующей регистрирующей аппаратуры на основе охлаждаемой линейки InGaAs и существенно увеличивало время измерений, однако, как было отмечено в предыдущем разделе, это обстоятельство может иметь существенные преимущества исследования непрозрачных в видимой области объектов.

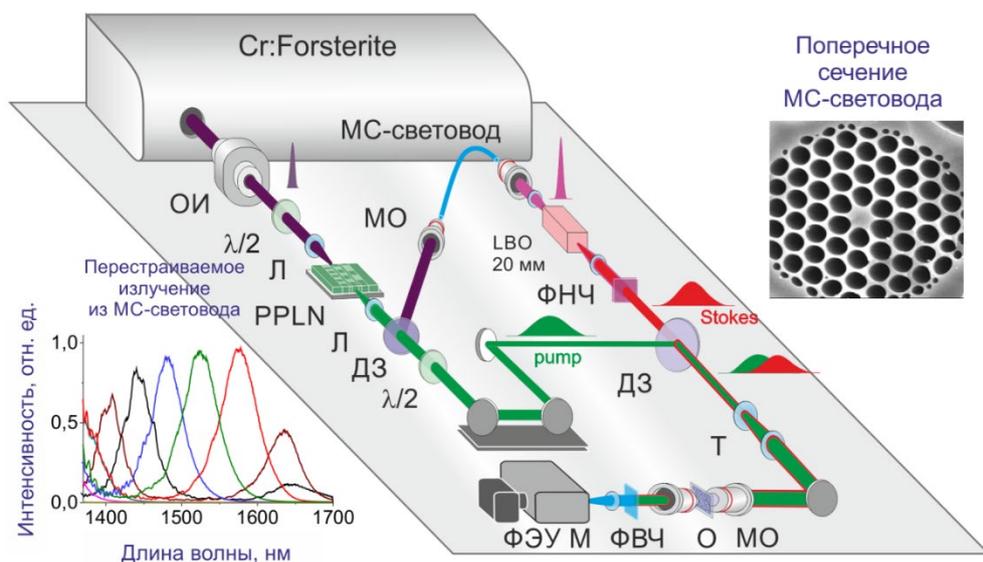


Рис.5.4.3. Модифицированная схема экспериментальной установки для КАРС-спектроскопии в видимой области спектра, на основе хром-форстеритового генератора, микроструктурированных световодов и нелинейно-оптических кристаллах PPLN ( $\text{LiNbO}_3$ ) и LBO [314].

Возможности реализованной схемы КАРС на основе Cr:forsterite генератора и микроструктурированных световодов с увеличенной сердцевиной могут быть существенно расширены за счет нелинейной трансформации зондирующих излучений накачки в видимую область спектра. Помимо использования более чувствительной регистрирующей техники в видимой области, значительно повышающей быстродействие системы, привлекательным являются возможности дополнительного управления спектрально-временными параметрами получаемых импульсов. Как было отмечено выше, увеличение спектральной селективности методики КАРС-микроскопии связано с возможностью уменьшения спектральной ширины импульсов накачки, что и было реализовано в модификации схемы КАРС спектроскопии, представленной на рис.5.4.3.

Фемтосекундное излучение Cr:forsterite лазера на длине волны 1.25 мкм удваивалось по частоте в кристалле ниобата лития с периодической доменной структурой (Periodically Poled Lithium Niobate (PPLN)) с периодом структуры 10.9 мкм. Генерируемые импульсы на

длине волны 625 нм далее использовались в схеме КАРС-спектроскопии в качестве излучения накачки. Непреобразованное в PPLN кристалле ИК излучение отделялось дихроичным зеркалом и заводилось в МС-световод для формирования перестраиваемых ИК импульсов в диапазоне 1300 – 1800 нм в процессе солитонного самосдвига частоты, что повторяет продемонстрированный ранее подход. Формируемые в МС волокне перестраиваемые по длине волны импульсы также затем удваивались по частоте в кристалле LBO (для обеспечения максимального коэффициента преобразования осуществлялась подстройка угла синхронизма в процессе нелинейно-оптического преобразования I типа ( $o + o \rightarrow e$ )). Это излучение служило в качестве стоксовой волны для возбуждения исследуемых комбинационных резонансов. Оба зондирующих импульса сводились на дихроичном зеркале и фокусировались в образец с помощью микроскопного объектива, а формируемый сигнал на антистоксовой частоте детектировался с помощью соответствующей задаче системы регистрации.

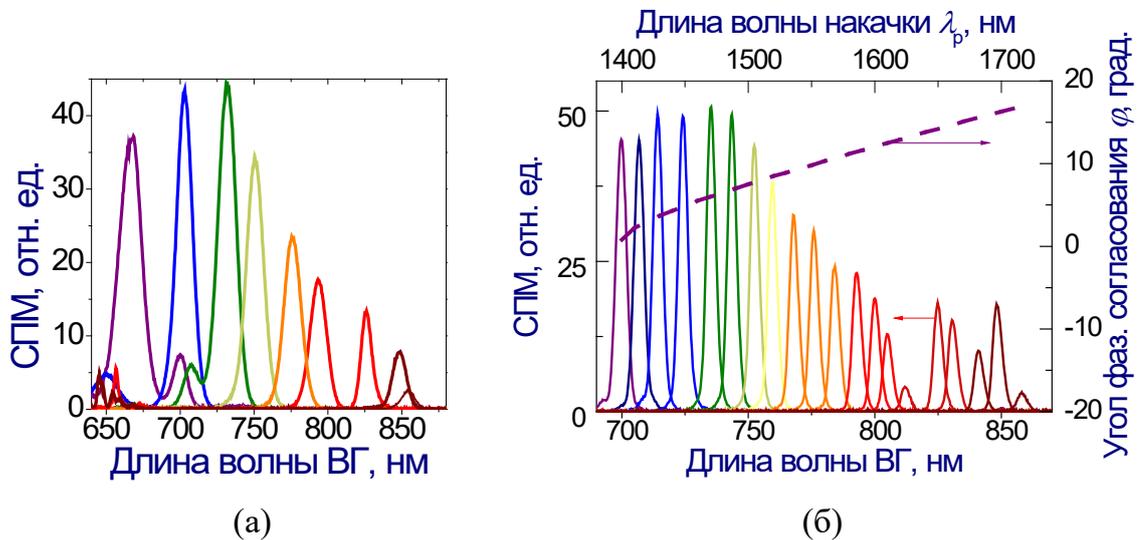


Рис.5.4.4. Спектры импульсов второй гармоники, генерируемых в кристалле LBO длиной (а) 2 мм и (б) 20 мм, при накачке формируемыми в МС-волокне перестраиваемыми солитонными импульсами. Пунктирной линией на рисунке (б) показан угол фазового согласования  $\varphi$  для процесса ГВГ в кристалле LBO, как функция длины волны солитона (верхняя ось абсцисс) и импульса второй гармоники (нижняя ось абсцисс).

Особенностью схемы нелинейного преобразования солитонов является возможность управления их длительностью за счет изменения длины кристалла и энергии. На рис. 5.4.4 представлены спектры импульсов на удвоенной частоте, сформированные в нелинейно-оптических кристаллах LBO толщиной 2 мм (а) и 20 мм (б). Толстый кристалл (20 мм) позволяет преобразовывать излучение с длинами волн 1400-1500 нм во вторую гармонику с эффективностью около 40% в диапазоне 690 – 760 нм с энергиями до 0.6 нДж. Спектральная компрессия реализуется в данном случае за счет эффективного почти вырожденного трехволнового процесса суммирования частот  $(\omega_0 - \delta) + (\omega_0 + \delta) = 2\omega_0$ , идущего параллельно с прямым процессом удвоения частоты. При использовании кристалла  $L = 20$  мм спектральная яркость импульсов с удвоенной частотой была сравнима со спектральной

яркостью инфракрасных солитонов на выходе из МС-волокна. Энергия импульсов в диапазоне с длинами волн 690 – 760 нм составляла приблизительно 0.6 нДж, а вне этой области несколько уменьшалось, например, для длины волны 860 нм их энергия достигала 0.25 нДж. Тонкий кристалл ( $L = 2$  мм) обеспечивал эффективность спектрального преобразования примерно в 2.5 раза меньше по сравнению с длинным кристаллом. Необходимо отметить, что фемтосекундные импульсы в этой области могут быть непосредственно сформированы в высоконелинейных МС волокнах с маленьким диаметром сердцевины [321], однако, энергетические характеристики формируемых таким образом импульсов (около 10-50 пДж) заметно уступают представленным в наших работах результатам.

Разница групповых скоростей при генерации второй гармоники в кристалле LBO приводит к увеличению длительности генерируемого импульса гармоники [319,320]. Меняя длину кристалла и условия фокусировки можно управлять длительностью формируемого импульса, что продемонстрировано в расчетах, результаты которых представлены на рисунке 5.4.5 для тонкого ( $L = 2$  мм, фокусное расстояние линзы  $f=7.5$  см, конфокальный параметр  $b = 3.8$  мм) и толстого ( $L = 20$  мм,  $f=15$  см,  $b = 13.5$  мм) кристаллов. Материальная дисперсия была включена в расчет через формулы Селмейра. Для длины волны импульсов накачки в области  $\lambda = 1500$  нм,  $L < b$ , длительность импульса второй гармоники близка ко времени разбегания импульсов, что отражается в слабой зависимости ее длительности от ее длины волны  $\lambda$  (кривая 1 на рис.5.4.5б). В случае толстого кристалла длительность импульса накачки много меньше времени разбегания импульсов и длительность второй гармоники демонстрирует сильную зависимость длительности от длины волны  $\lambda$  из-за дисперсии нелинейного кристалла (кривая 2 на рис. 5.4.5б).

Результаты автокорреляционных измерений длительностей импульсов второй гармоники представлены на рис. 5.4.5а. В случае тонкого кристалла LBO ширина второй гармоники на длине волны 700 нм может быть аппроксимирована гауссовой функцией с шириной по полувысоте 73 фс. В случае толстого кристалла для второй гармоники с длиной волны 790 это значение составляет 580 фс. При варьировании длины волны в диапазоне 700 – 820 нм длительность генерируемых импульсов изменяется от 210 до 590 фс. Результаты автокорреляционных измерений хорошо совпадают с результатами теоретического анализа (рис.5.4.5б), показывая, что длительность импульсов второй гармоники может контролируемо изменяться от 70 до 600 фс. Аналогичный сценарий генерации второй гармоники от основного излучения фемтосекундного Cr:forsterite генератора ( $\lambda_0 = 1250$  нм) реализовывался в кристалле ниобата лития с периодической доменной структурой (PPLN) (период 10.9 мкм). При энергии импульсов накачки порядка 10 нДж и начальной спектральной ширине около  $240 \text{ см}^{-1}$ , генерация второй гармоники на длине волны проходила с эффективностью порядка 35% и импульсы на длине второй гармоники 625 нм обладают спектральной шириной линии около  $60 \text{ см}^{-1}$ .

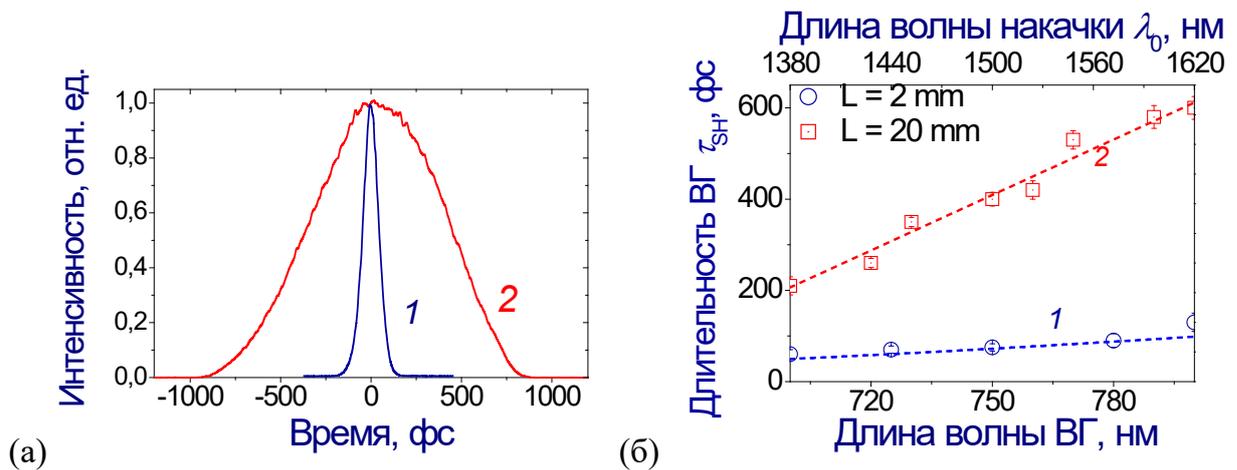


Рис.5.4.5. (а) Автокорреляционная функция импульсов второй гармоники генерируемых в кристаллах LBO на длине волны 700 нм (1,  $L = 2$  мм) и 790 нм (2,  $L = 20$  мм). (б) Экспериментальные (точки) и теоретические (линии) зависимости длительности импульсов второй гармоники от длины волны накачки для двух кристаллов с разной толщиной.

Более того, процесс генерации второй гармоники в этом случае оказывается гораздо более «богатым», с точки зрения проявления других нелинейных эффектов. Из-за фазовой самомодуляции и фазовой кросс-модуляции импульсов на частоте второй гармоники, фазовое рассогласование между излучением накачки на основной частоте и его второй гармоникой становится неоднородным в течение длительности импульсов и времени их разбегания [322], что приводит к формированию на выходе PPLN кристалла двойного импульса на удвоенной частоте излучения накачки. Временная структура этих импульсов при разном уровне накачки характеризовалась методом интерференционной автокорреляции с помощью кристалла ВВО толщиной 0.5 мм (рис.5.4.6). Как можно видеть из этих измерений, возрастание пиковой мощности импульсов накачки приводит к искажению временного профиля и формированию явной и хорошо различимой двух- и трехимпульсной формы структуры сигнала. Наилучшая аппроксимация экспериментальных данных достигалась для импульсов накачки с энергией 8.5 нДж, при этом на частоте второй гармоники формируются два импульса, где каждый из которых имеет гауссову форму с шириной по полувысоте порядка 180 фс, при этом соотношение импульсов по амплитуде около 1:7, а временной интервал между ними порядка  $\tau_p \approx 400$  фс (рис. 5.4.6б).

Импульсы с двухпиковой временной структурой позволяют разделить во времени процессы возбуждения и зондирования комбинационных колебаний в схеме нестационарной КАРС спектроскопии. Первый импульс из пары служит в качестве импульса накачки, а второй, следующий с некоторой временной задержкой, выступает в качестве зондирующего импульса. Продемонстрированная возможность управления временной огибающей импульсов в процессе удвоения частоты в PPLN кристалле позволяет реализовать методики время разрешенного подавления нерезонансного сигнала, что будет далее продемонстрировано в схеме КАРС-спектроскопии долгоживущих комбинационных линий оптических фононов [323].

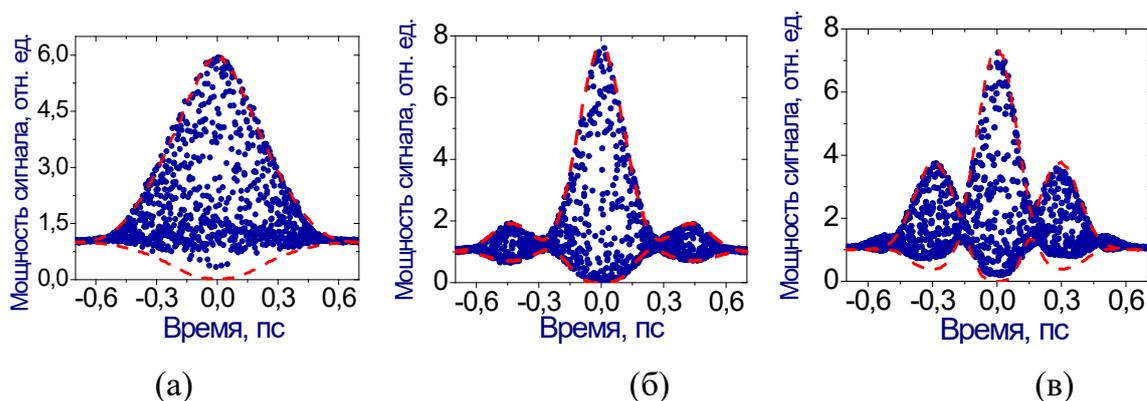


Рис.5.4.6. Экспериментальные данные и аппроксимация автокорреляционных импульсов на частоте второй гармоники на выходе из PPLN кристалла с размерами  $0.5 \times 0.5 \times 1.0$  мм при мощности накачки основного излучения 5 нДж (а), 8.5 нДж (б) и 10 нДж (в).

Таким образом, реализованная схема на основе фемтосекундного Cr:forsterite генератора с удлиненным резонатором (частота повторения импульсов 20 МГц) и микроструктурированных световодов с увеличенной сердцевиной обеспечивает удобную платформу для КАРС спектроскопии, что прежде всего связано с возможностями спектрально-временного управления зондирующими импульсами. Продемонстрированные преимущества связаны, во-первых со спектральным сжатием в МС волокнах для целей повышения спектральной селективности КАРС спектроскопии, а во-вторых с удвоением частоты в нелинейных кристаллах, что позволяет получить импульсы с варьируемой длительностью от 80 до 580 фс и перестраиваемой длиной волны в диапазоне от 680 до 1800 нм. Энергия и спектральная яркость перестраиваемых по длине волны импульсов обладают достаточным уровнем для реализации как схемы когерентной микроспектроскопии комбинационного рассеяния света, так и других нелинейно-оптических методик.

## §5.5. Трехмерная КАРС-микроспектроскопия когерентных оптических фоонов в искусственной алмазной пленке.

Наряду с задачами “чисто спектроскопического” применениями когерентного антистоксова рассеяния света, бурно развивается КАРС-микроспектроскопия, которая проявила себя одним из наиболее информативных и широко используемых нелинейно-оптических методов [324,325]. В настоящем разделе описывается применение КАРС-микроспектроскопии для исследования распределения плотности оптических фоонов в искусственной алмазной пленке [182,326]. Алмаз (алмазные пленки, микро- и наночастицы на его основе) является хорошо изученным физическим объектом, область применения которого непрерывно расширяется в широком спектре задач от квантовых сенсоров до биофотоники [327]. Один из способов диагностики качества элементов на базе искусственных алмазов связан с регистрацией комбинационного возбуждения оптических фоонов решетки, в том числе с помощью КАРС-микроспектроскопии [327,328].

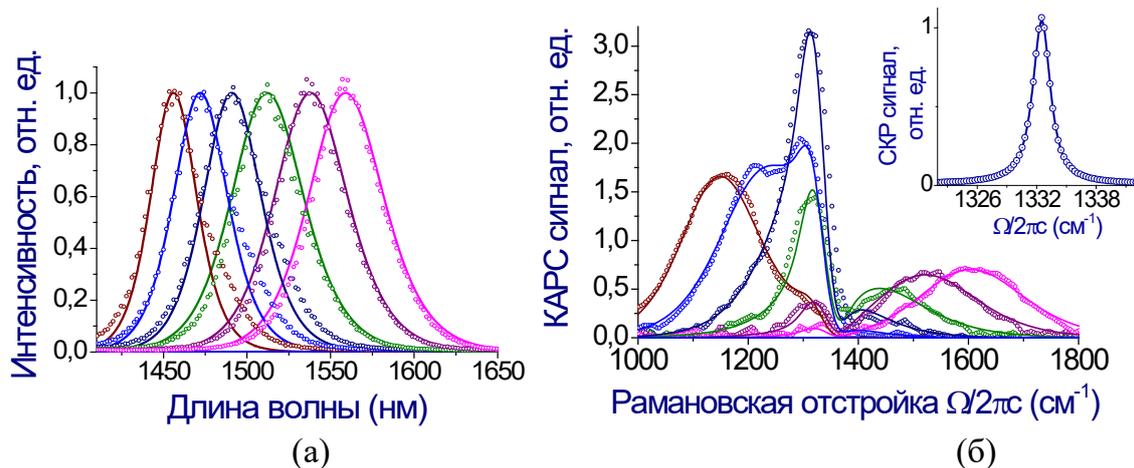


Рис.5.5.1. (а) Спектры солитонного излучения из МС-световода 1, использованные для получения КАРС спектров из алмаза. (б) Спектры КАРС сигналов CVD алмазной пленки при различной комбинационной (рамановской) отстройке. (Вставка - спектр измеренного спонтанного комбинационного рассеяния). Теоретический расчет КАРС-спектров показан сплошными линиями в предположении Лоренцевской формы линии комбинационно-активного резонанса с параметрами  $\Omega_p/(2\pi) = 1332 \text{ см}^{-1}$ ,  $\Gamma_p/(2\pi) = 2 \text{ см}^{-1}$ .

В ходе проведенных экспериментов с алмазными пленками реализовывались две задачи, на основе представленных в предыдущем параграфе схем. Во-первых, регистрация оптических фононов с использованием излучения в инфракрасной области (рис.5.4.1). В этом случае зондирующие импульсы фокусируется на образец (фокальное пятно около 5 мкм), а сигнал на длине волны разности частот излучения хром-форстеритового генератора и спектрально сжатых перестраиваемых солитонов, соответствующий возбуждению комбинационной моды, регистрируется на длине волны  $\lambda_a = 1.07 \text{ мкм}$  в геометрии на «просвет». Как уже отмечалось, такой подход имеет свои преимущества при исследовании полупроводниковых элементов (например, Si или GaAs) не прозрачных для коротковолнового излучения.

В работе [329] подробно исследовались свойства кристаллической структуры алмаза с помощью спонтанного КР. Характерная ширина комбинационной линии составляет  $1.65 \text{ см}^{-1}$  при нормальных условиях, то время как в наших экспериментах (вставка к рис.5.5.1б) это значение немного превышало  $2.0 \text{ см}^{-1}$ , что может служить индикатором не идеальности кристаллической структуры исследуемой алмазной пленки. Перестройка длины волны солитона (рис.5.5.1а) обеспечила настройку разности излучений накачки в комбинационный резонанс  $\Omega_p/2\pi \approx 1332 \text{ см}^{-1}$  (рис.5.5.1б). Интерференционная природа КАРС сигнала приводит к характерной асимметрии, связанной с вкладами резонансной и нерезонансной частей  $\chi^{(3)}$  кубической нелинейно-оптической восприимчивости материала, что было подробно рассмотрено в параграфах 5.1 и 5.2. Моделирование получаемых КАРС-спектров [182] в предположении Лоренцовского профиля линии с шириной  $2 \text{ см}^{-1}$ , позволило определить отношение резонансных и нерезонансных вкладов  $|\chi^{(3)}_r / \chi^{(3)}_{nr}| = 17$ , демонстрирующее сильную комбинационную нелинейность искусственной алмазной пленки. Фурье-преобразование выражения для нелинейной восприимчивости определяет форму нелинейного отклика во временном представлении:

$$f(t) = (1 - f_R)\delta(t) + f_R H(t) \frac{\tau_1^2 + \tau_2^2}{\tau_1 \tau_2} \exp\left(\frac{t}{\tau_2}\right) \sin\left(\frac{t}{\tau_1}\right), \quad (5.8)$$

где  $\tau_1 = \Omega_p^{-1} \approx 4$  фс и  $\tau_2 = (\Gamma_p/2)^{-1} \approx 5.3$  пс - времена колебания и затухания осциллятора, соответственно, и  $f_R$  - доля рамановской части нелинейности в общем нелинейном отклике. Проводя анализ и подгонку спектров (рис.5.5.1б) можно извлечь информацию о параметрах комбинационного резонанса. Из этих данных можно оценить коэффициент вынужденного комбинационного усиления, следуя выражению  $g_R = n_{2K} \cdot \left(\frac{4}{3}\right) \cdot \left(\frac{\omega n_0}{c}\right) \cdot \left(\frac{\chi_r^{(3)}}{\chi_{nr}^{(3)}}\right)$ , где  $n_0 \approx 2.4$  - показатель преломления,  $\omega$  - резонансная частота фонона. Подстановка значения нелинейного показателя преломления синтетического алмаза  $n_{2K} \approx 5.4 \cdot 10^{-16}$  см<sup>2</sup>/Вт, дает оценку рамановского усиления  $g_R = 2.3$  см/ГВт, что значительно больше, чем для плавленного кварца  $g_R = 0.01$  см/ГВт. Результаты исследований позволяют говорить о применимости развитой платформы фемтосекундной КАРС-спектроскопии для определения параметров оптических фононов алмазных пленок.

В видимом диапазоне существует большое количество эффективных регистрирующих приборов, что делает предпочтительным использование схемы с удвоением частоты (рис.5.4.3) для реализации КАРС-микроспектроскопии, связанной с быстрым сканированием и получением изображений объектов, в том числе в геометрии «назад». Разность удвоенных по частоте импульсов накачки на длине волны 623 нм и стоксового излучения 680 нм (энергия в импульсе 0.1 нДж) настраивалась в резонанс комбинационной моды алмаза 1332 см<sup>-1</sup>. Экспериментальная схема позволяла осуществлять фокусировку излучений на образец и его прецизионное трехмерное сканирование. В случае проведения спектроскопических исследований в системе регистрации использовался монохроматор с высоким спектральным разрешением, а поскольку при реализации трехмерной сканирующей лазерной микроскопии не требовалось анализа получаемых спектров, то было достаточно установки полосовых фильтров и применения синхронного детектирования сигнала.

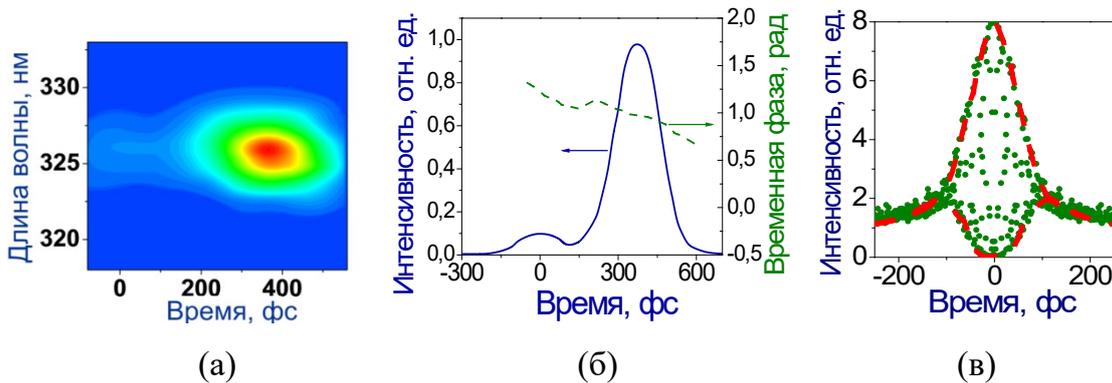


Рис.5.5.2. XFROG спектрохронограмма (а) и огибающей интенсивности импульса и его временной фазы (б) двухимпульсного режима генерации второй гармоники в PPLN кристалле. Близкие к гауссовому профилю импульсы имеют длительность 180 фс, расстояние между ними 400 фс, а их амплитуды различаются в восемь раз. (в) Автокорреляционная функция второй гармоники солитонного импульса на длине волны 680 нм – гиперболический секанс с длительностью 120 фс.

Более того, замеченная особенность формирования двойного импульса при удвоении частоты в PPLN кристалле, может быть использована для реализации нестационарной КАРС-микроспектроскопии, поскольку при анализе долгоживущих комбинационно-активных мод, возможно эффективное подавление вклада нерезонансной компоненты, связанной с быстрой оптической нелинейностью [214,320]. В этом смысле наличие разделенных во времени импульсов, получаемых в PPLN кристалле обеспечивает удобный протокол, когда первый импульс служит в качестве накачки, а следующий с временной задержкой второй импульс, зондирует возбужденное состояние системы (вставка к рис.5.5.3а).

Техника XFROG и автокорреляционные измерения использовались для характеристики импульсов накачки (см. подписи к рис. 5.5.2). Комбинационный резонанс  $1332\text{ см}^{-1}$  возбуждался первым импульсом на длине волны 623 нм (накачка) и стоксовой волной (680 нм). Для анализа возможностей осуществления такой нестационарной спектроскопии варьировалось время задержки  $\tau_d$  между стоксовым импульсом и импульсом накачки (рис. 5.5.3а). Время  $\tau_d = 0$  определяет одновременный приход импульсов стока и накачки, а третий импульс, задержанный относительно первых двух на 400 фемтосекунд, является зондирующим импульсом, считывающим информацию о когерентных колебаниях фононов в искусственной алмазной плёнке с временем затухания  $\tau_2 = 5.3\text{ пс}$ . При этом реализуется подавление быстрой нерезонансной части КАРС сигнала, а возбужденные когерентные колебания фононов еще практически не затухли ( $\tau_d \ll \tau_2$ ), что приводит к высокому контрасту спектра КАРС (рис. 5.5.3б). При изменении времен задержки  $\tau_d$  в спектре начинает проявляться интерференция между резонансными и нерезонансными компонентами сигнала КАРС (линии 2 и 3 на рис. 5.5.3б). Увеличение времени задержки приводит к отсутствию влияния  $\tau_d$  на характер спектров, что соответствует ситуации, когда импульс накачки приходит при “отрицательных” задержках.

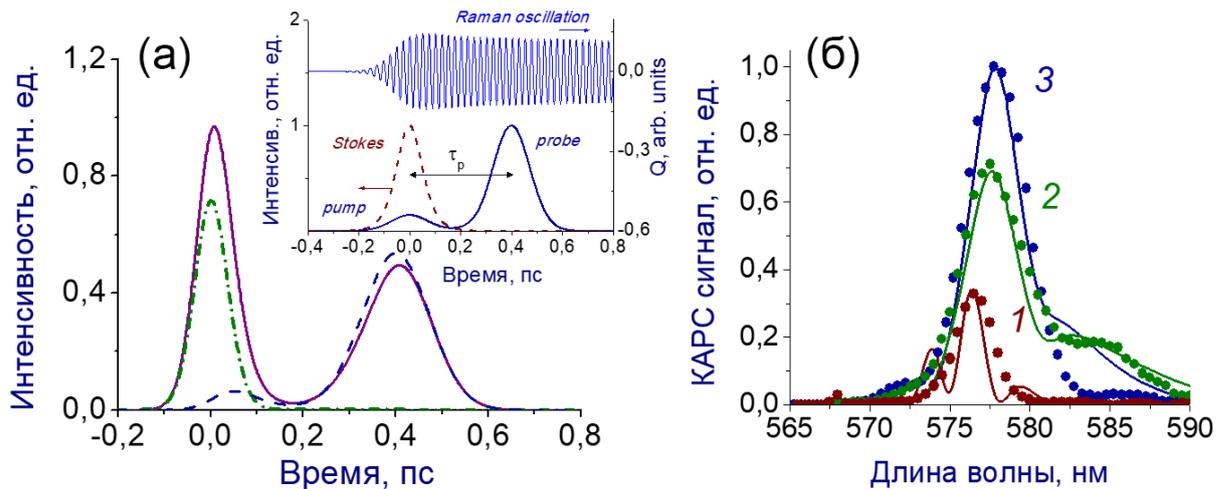


Рис.5.5.3. (а) Анализ временного профиля сигнала когерентного антистоксова рассеяния с учетом его резонансной (штрих-пунктир) и нерезонансной (пунктир) части. На панели сверху представлена последовательность импульсов накачки и динамика наведённых когерентных колебаний в алмазной пленке. (б) Экспериментальные и теоретические спектры КАРС при различных временах задержки (1)  $\tau_d = 0$ , (2) 320 фс, и (3) 400 фс.

Моделирование на рис.5.5.3б осуществлялось с учетом реальных измеренных параметров импульсов накачки (рис. 5.5.1) и алмазной пленки ( $\Omega_1/2\pi c = 1332 \text{ см}^{-1}$ ,  $\Gamma_1 = 2 \text{ см}^{-1}$ ,  $f_1 = 0.024$ ) в соответствии с выражением

$$E(\tau) \propto i\gamma \int dt A_{pr}(t) \int h(t - \theta) A_{pu}(\theta) A_{st}^*(\theta - \tau) d\theta, \quad (5.9)$$

где  $A_{pu}$ ,  $A_{st}$  и  $A_{pr}$  – комплексные амплитуды полей, нелинейный отклик:  $h(\theta) = R(\theta) + S(\theta)$ , с резонансным комбинационным членом  $R(\theta) = f_R H(\theta) \frac{\tau_1^2 + \tau_2^2}{\tau_1 \tau_2} \exp\left(\frac{\theta}{\tau_2}\right) \sin\left(\frac{\theta}{\tau_1}\right)$  и мгновенным электронным откликом  $S(\theta) = (1-f)\delta(\theta)$ . Экспериментальные данные (точки) хорошо моделируются теоретическими кривыми (рис.5.5.3).

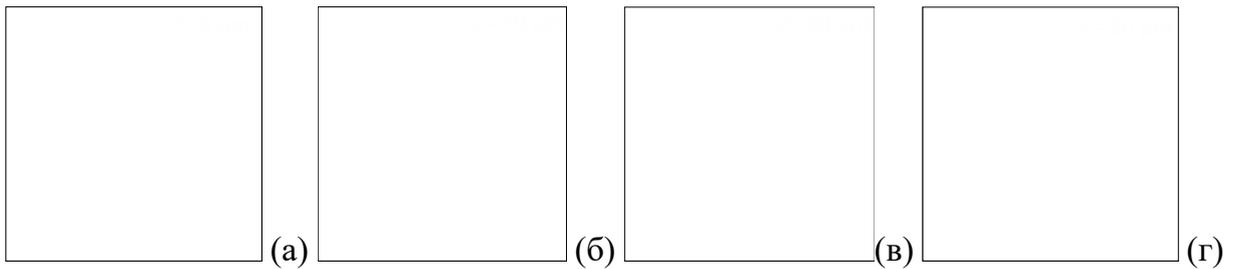


Рис.5.5.4. Двумерные карты пространственного распределения КАРС-сигнала от искусственной алмазной пленки при фокусировке излучений накачки на поверхность пленки (а), на глубину 10 мкм(б), 20 мкм (в) и 30 мкм (г).

Выбирая оптимальное время задержки  $\tau_d = 0$ , соответствующее подавлению нерезонансного фона, мы осуществили измерения в режиме трехмерной микроспектроскопии когерентных фононных мод в объеме алмаза. При этом пространственное разрешение в плоскости ХУ может достигать субмикронных значений (0.7 мкм). На рис.5.5.4 представлены КАРС-изображения пленки искусственного алмаза при различной глубине фокусировки внутрь пленки, показывающие изменение ее структуры. Амплитуда сигнала показывает возможность визуализации трехмерных локальных изменений в плотности пленки, связываемых с неоднородностью технологии их синтеза.

## §5.6. Нелинейно-оптическая КАРС-визуализация биологических тканей.

Одной из современных направлений развития биофотоники является мультимодальное применение различных нелинейно-оптических методов построения изображения глубоких слоев биологических тканей, включая визуализацию пространственной структуры и функциональных процессов внутри живых клеток [230,316,330]. Эти методы предполагают наличие источников фемтосекундных импульсов с высокой частотой повторения. Как было рассмотрено выше, МС световоды обеспечивают удобный алгоритм получения импульсов со спектрально-временными параметрами, наиболее точно соответствующими используемой нелинейной методике и поставленной задаче.

Первые работы по нелинейно-оптической биовизуализации с использованием микроструктурированных световодов относятся к началу 2000-х годов [331–333]. В

работах использовались фемтосекундные Ti:Sapphire лазеры и отрезки высоконелинейных световодов с характерными диаметрами сердцевины 1.5-2.5 мкм. На основе преобразованных по спектру и длительности импульсов была продемонстрирована двухфотонная флуоресцентная микроскопия прокрашенных тканей свиньи и крысы [331] и трехканальная микроскопия клетки фиксированного бычьего эндотелия легочной артерии [332]. В дальнейших работах было представлено использование суперконтинуума для реализации мультимодальных методов с одновременной комбинацией различных нелинейно-оптических процессов [334–339]. Так, в одной из первых работ в этом направлении [334], была реализована микроскопия клеток дрожжей методиками с одновременной реализацией двухфотонного флуоресценции и КАРС с использованием излучения Ti:Sapphire генератора и суперконтинуума в качестве опорной и стоксовой волны, соответственно. КАРС–микроспектроскопия может быть также совмещена с методиками на основе генерации второй и третьей оптической гармоники для мультимодальной визуализации различных фаз клеточного цикла HeLa [336]. Примечательной является работа [338], в которой пространственный модулятор света (SLM) использовался для фазовой и амплитудной коррекции суперконтинуума со спектром 900-1160 нм, в частности для выделения двух спектральных линий и управления их chirпом. В частности, полученные импульсы использовались для безмаркерной микроскопии свиной кожи в трех модальностях - двухфотонная флуоресценция, вторая и третья оптическая гармоники, и далее к этим модальностям была также методика КАРС [339].

Рассмотрим более подробно преимущества КАРС-микроспектроскопии, как одного из методов нелинейно-оптической диагностики [340,341]. Прежде всего, отличительные особенности связаны с химической селективностью метода, так как в этом случае не требуется флуоресцентного маркерного зонда, что особенно важно при исследовании биологических тканей, поскольку внесение подобного зонда зачастую сопровождается возмущением или интоксикацией системы. Кроме того, отсутствие переноса населенностей электронных состояний при реализации процесса КАРС уменьшает вероятность повреждения биологических образцов или их обесцвечивания, а когерентная природа взаимодействия дает более высокий уровень регистрируемого сигнала и, соответственно, значительно более высокую чувствительность и быстродействие относительно наиболее распространённых методов на основе спонтанного комбинационного рассеяния света. При этом нелинейно-оптическая природа взаимодействия полей накачки обеспечивает максимальную эффективность генерации сигнала в фокальной области сфокусированных пучков и высокое пространственное разрешение как по поперечной, так и по продольной координате. Наконец, длины волн накачек и регистрируемого сигнала разнесены по спектру, причем длина волны антистоксова сигнала смещена в коротковолновую область относительно импульсов накачки. Эта особенность является важной и привлекательной для трехмерной микроспектроскопии биологических тканей, поскольку длины волн импульсов накачки могут быть настроены в окна прозрачности поглощения воды в ближнем инфракрасном диапазоне, что обеспечивает высокую глубину проникновения в ткани, при этом достигается уменьшение величин сечения линейного и нелинейного поглощения и соответственно нагрева ткани. Эти преимущества сделали КАРС

микроскопию одним из наиболее удобных нелинейных методов диагностики в биологии, медицине и химии [340,342–347], в том числе для нанотехнологических применений [348,349].

Глобальные и масштабные исследование мозга требуют междисциплинарного подхода, в том числе применения различных линейных и нелинейных оптических методов. Рассматривая строение тканей головного мозга, можно отметить большое содержание липидов, играющих важнейшую роль в функционировании нейронных сетей и выполняющих различные функции – они обеспечивают энергоснабжение клеток, служат материалом для формирования мембраны, участвуют в процессах меж- и внутриклеточной сигнализации. Различные типы липидов являются базовым материалом строения миелина, который обволакивает аксоны и обеспечивает передачу нервных импульсов, а патологические изменение состава липидов могут способствовать различным патологиям мозга [350–352]. В молекулах липидов формируются симметричные и антисимметричные деформационные колебательные моды связи  $\text{C-H}_x$  с частотами в области  $2850 - 2900 \text{ см}^{-1}$ . Наличие этих связей в сочетании с высоким сечением комбинационного рассеяния [340] оказывается исключительно заманчивым для безмаркерной визуализации тканей головного мозга методиками на основе комбинационного рассеяния света, в частности КАРС-микроспектроскопии [350,351].

Нами была продемонстрированы возможности реализованного КАРС-микроскопа для построения изображений срезов головного мозга мыши (толщина срезов  $50 \text{ мкм}$ ) и распределения липидов в них [353]. Использовался второй вариант системы с импульсами накачки в видимой области спектра, получаемые при удвоении частоты в кристаллах PPLN и LBO. Длины волн импульсов накачки и стока настраивались на комбинационный резонанс  $2850 \text{ см}^{-1}$ , соответствующий симметричным колебаниям  $\text{C-H}_2$  группы. Спектрально сжатый стоксов импульс на длине волны  $750 \text{ нм}$  формировался от солитонов при удвоении частоты в  $20 \text{ мм}$  кристалле LBO и имел следующие параметры: длительность  $380 \text{ фс}$  энергия  $0.5 \text{ нДж}$ , спектральная ширина  $40 \text{ см}^{-1}$ . Импульсы накачки на длине волны  $623 \text{ нм}$  имели длительность  $330 \text{ фс}$ , энергию  $1.5 \text{ нДж}$  и спектральную ширину порядка  $50 \text{ см}^{-1}$ . Вариант нестационарного КАРС не подходит для случая анализа  $\text{C-H}_x$  связей, поскольку время затухания их когерентного возбуждения имеет небольшое значение  $0.3 - 0.5 \text{ пс}$ . Поэтому в реализуемой схеме, большее внимание было уделено согласованию спектров импульсов накачки с полосой колебаний полосой колебания углеводородных связей (ширина полосы оценивалась величиной около  $45 \text{ см}^{-1}$  [354]).

Схема сведения пучков, фокусировки, трехмерного сканирования и регистрации сигнала была аналогична использованной при трехмерной визуализации алмазной пленки. Импульс на антистоксовой длине волны  $\lambda \approx 525 \text{ нм}$  спектрально выделялся полосовыми фильтрами (ширина пропускания  $40 \text{ нм}$ ) и регистрировался ФЭУ. В режиме синхронного детектирования сигнала фотоэлектронным умножителем время получения изображения области  $100 \times 100 \text{ мкм}^2$  с шагом  $1 \text{ мкм}$  составляло порядка  $40 \text{ минут}$ .

Полученные изображения различных областей и тканей головного мозга лабораторной мыши представлены на рисунке 5.5.1. На рис. рис.5.5.1a темные области соответствуют

нейронам, внутри которых нет высокой концентрации углеводородных связей, которые дали бы высокий уровень сигнала КАРС. С другой стороны межклеточное пространство заполняют “богатые” липидами аксоны и дендриты, межклеточная жидкость и миелин [330]. Такая контрастность дает возможность оценить локализацию и размеры нейронных клеток. Например, для соматенсорной коры (рис. 5.5.1б) их параметры были оценены как 6-8 мкм, что не противоречит другим работам [355], с другой стороны из этих изображений можно делать заключения о распределении миелина и белого вещества. Также, например, высокий уровень сигнала на правой части рис. 5.5.1в показывает область *corpus callosum* с множеством переплетенных аксонов [330].

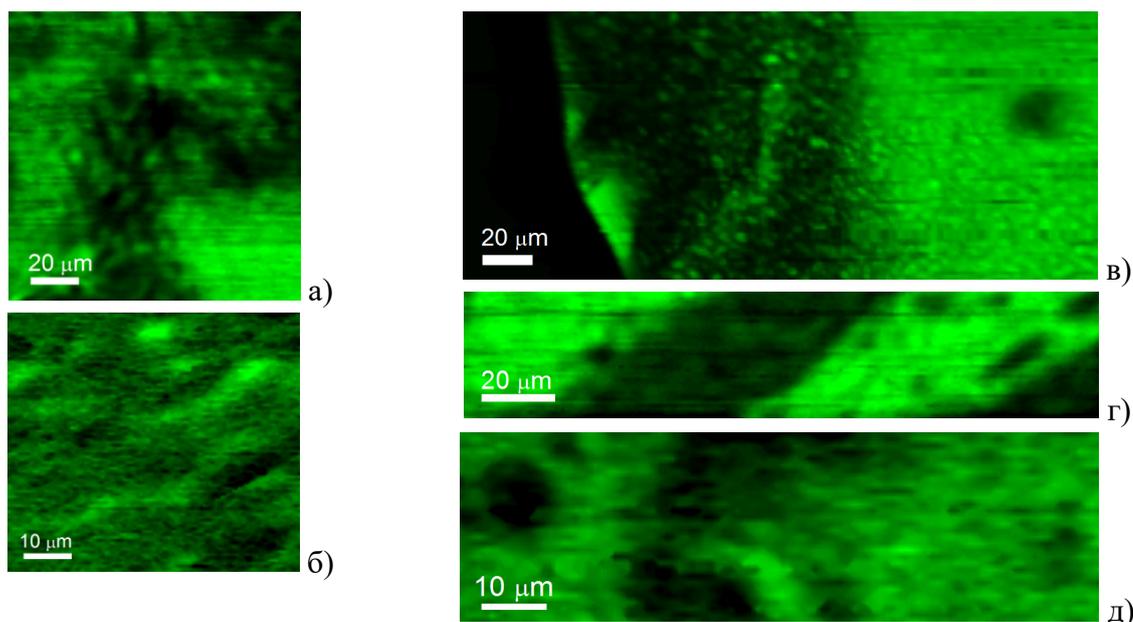


Рис.5.6.1. Изображения срезов головного мозга мыши, полученные методом КАРС-микроспектроскопии. Желудочек (а), соматосенсорная кора (б), панорамное изображение соматосенсорной коры (в), область гиппокампа (г, д).

На рисунках 5.5.1г и 5.5.1д показаны карты срезов гиппокампа, который является одной из важнейших областей головного мозга, выполняющей функцию формирования памяти. Нейроны в гиппокампе расположены близко друг к другу, что определяет малое количество миелина, что определяет темные области на этих КАРС изображениях. Пространственное разрешение реализованной схемы с объективом ЛОМО x20 NA=0.4 было оценено порядка двух микрометров, что позволяет уверенно различать структурные особенности тканей. Применение более мощных объективов позволит улучшить пространственное разрешение и реализовать нелинейно-оптическую КАРС-микроскопию с субмикронным разрешением при использовании импульсов накачки в видимой области спектра.

Подводя итоги, можно сказать, что развитая платформа на основе Cr:forsterite генератора, волоконного источника перестраиваемого излучения, спектрально-временной трансформации импульсов (сужение спектра солитонных импульсов в МС световоде, удвоение частоты исходного излучения в кристаллах) позволила реализовать метод фемтосекундной КАРС-микроспектроскопии для трехмерной визуализации с высоким пространственным разрешением объектов различной природы, включая получение

изображений тканей мозга лабораторных животных. При этом можно говорить о неинвазивном измерении образцов живых тканей, связанной с невысокой средней и пиковой мощностями импульсов накачки [356], о чем более подробно будет изложено в следующем разделе.

### **§5.7. Нелинейно-оптические преобразования в микроструктурированных волокнах для задач биофотоники и ионизационные ограничения использования сверхкоротких импульсов**

При нелинейно-оптической визуализации биологических тканей требуются достаточной большие интенсивности лазерного излучения для обеспечения высокого уровня сигнала и скорости получения изображения порядка одного кадра в секунду. Отрицательной стороной визуализации биологических объектов с помощью высокоинтенсивного лазерного излучения является повышенный риск необратимых изменений и оптического повреждения биологических тканей, вызванных воздействием света [356–359]. Чтобы понимать и контролировать степень вызванных лазерными импульсами изменений в клетках, а также предотвратить нежелательные накапливающиеся в биологических тканях эффекты, вызываемые лазерными импульсами с большой частотой следования, часто бывает очень сложно (или даже невозможно) использовать очевидный способ, заключающуюся в визуальном контроле повреждений тканей в фокусе лазерного пучка. Эти проблемы вызывают интерес к задаче определения порога неинвазивности нелинейно-оптических методов биовизуализации, количественному анализу сверхбыстрой ионизации, сопровождающего нелинейно-оптические взаимодействия лазерных импульсов с биологическими тканями, что было подробно рассмотрено в работе [359].

Сверхкороткий лазерный импульс с достаточно высокой интенсивностью при распространении в среде может генерировать свободные электроны, которые приведут к зависящему от времени изменению показателя преломления среды  $\delta n \approx -\rho(t)(2\rho_c n_0)^{-1}$ , где  $\rho(t)$  плотность электронов,  $\rho_c$  – критическая электронная плотность, и  $n_0$  – показатель преломления невозмущенной среды. Известно, что вызванное сверхбыстрой ионизацией изменение показателя преломления приводит к “синему” смещению спектра пробного импульса [360–363], распространяющегося в ионизированной области. Ключевая идея предложенного метода с использованием техники КАРС спектроскопии при типичных для визуализации мозга условиях эксперимента заключается в том, чтобы использовать это вызванное ионизацией коротковолновое спектральное смещение для того, чтобы зарегистрировать начало ионизации вещества.

В экспериментах [364] мы использовали стандартную двухчастотную схему КАРС, в которой частота излучения накачки совпадала с зондирующим. В качестве зондирующих использовались импульсы на частоте второй гармоники из оптического параметрического усилителя (ОПУ), накачиваемого фемтосекундным Ti:sapphire многопроходным усилителем (рис.5.7.1). Импульсы из ОПУ имели центральную длину волны 650 нм и длительность 300 фс. В качестве стоксова импульса использовались усиленные импульсы

непосредственно из Ti:sapphire лазерной системы длительностью 40 фс, перестраиваемые в диапазоне от 780 до 825 нм. Низкая частота повторения генерации лазерных импульсов (50 Гц), приводила к заметному увеличению времени проведения экспериментов, однако помогала избежать эффекта накопления свободных зарядов в области взаимодействия. Для реализации большей чувствительности синего сдвига сигнала КАРС к вызванной светом ионизации ткани была выбрана длиннофокусная геометрия возбуждения и сбора сигнала (с конфокальным параметром  $I_f=75$  мкм). В качестве объекта исследований использовалась кора головного мозга лабораторной мыши. Миелиновая оболочка коры богата С-Н связями, что как было показано, позволяет с высоким контрастом отличать белое вещество мозга от серого на двумерных КАРС спектрограммах [353,365].

Типичные широкополосные спектры КАРС-сигнала, измеренные в корональной области головного мозга лабораторной мыши представлены на рис.5.7.2. В этих спектрах ярко выражены симметричные С-Н колебательные моды, соответствующие колебательным модам липидов с центром пика на 547 нм, а также симметричные и ассиметричные колебательные моды растяжения молекулы H<sub>2</sub>O воды, слившиеся в пик с центром на 537 нм. Отношение амплитуд пиков на длине волны 547 и 537 нм определяется процентным соотношением содержания липидов и воды в тканях мозга в области взаимодействия (рис. 5.7.2а), на высушенных образцах мозга отсутствует пик на длине волны 537 нм, что также подтверждает связь этого пика с колебательными модами воды.

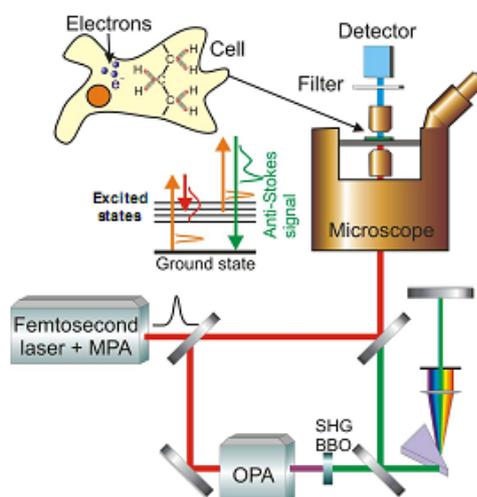


Рис.5.7.1. Схема экспериментальной установки: Ti:sapphire лазерная система с многопроходным усилителем (MPA); оптический параметрический усилитель (OPA); генерация второй гармоники осуществлялась в кристалле BBO (SHG BBO).

При достаточно высоких интенсивностях накачки спектр антистоксова сигнала испытывает синее смещение (рис. 5.7.2б), что указывает на влияние эффектов ионизации. Несмотря на то, что этот эффект незначителен, он уже вполне измерим при интенсивностях  $I_p = 0.8$  ТВт/см<sup>2</sup> и  $I_s=0.08$  ТВт/см<sup>2</sup>. Спектр антистоксова сигнала, полученный из тканей мозга при этих интенсивностях, показан закрашенными кружками на рис. 5.7.2б. Для сравнения, невозмущенный спектр КАРС из той же области мозга показан пунктиром (получен при низких интенсивностях накачки). При увеличении интенсивности излучения

накачки и стоксовой волны увеличивается высокочастотное смещение спектра антистоксова сигнала. Оно достигает 0.8 нм при  $I_p = 3 \text{ ТВт/см}^2$  и  $I_s = 0.3 \text{ ТВт/см}^2$  (см. пустые кружки на рис. 5.7.2б).

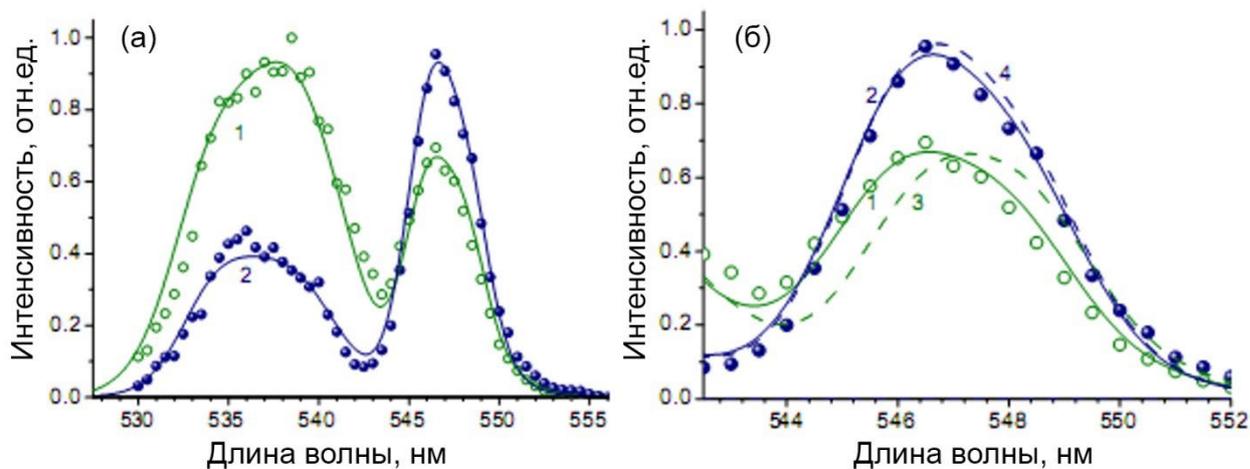


Рис.5.7.2 (а) Характерные экспериментальные КАРС спектры из двух различных областей мозга мышцы с высоким (пустые кружки) и низким (закрашенные кружки) содержанием воды в сравнении с результатами численного моделирования (с параметрами  $\varepsilon = 1$  (1) и 0.45 (2)). Интенсивность импульсов накачки и стоксовых импульсов  $I_p = 3 \text{ ТВт/см}^2$  и  $I_s = 0.3 \text{ ТВт/см}^2$  (сплошная линия 1), при  $I_p = 0.8 \text{ ТВт/см}^2$  и  $I_s = 0.08 \text{ ТВт/см}^2$  (сплошная линия 2). (б) Увеличенное изображение спектров КАРС, показанных на рисунке (а), в сравнении с расчетными пунктирными кривыми 3 и 4, относящимися к режиму низкой интенсивности с  $I_p = 0.1 \text{ ТВт/см}^2$  и  $I_s = 0.01 \text{ ТВт/см}^2$ .

Для анализа спектральных преобразований антистоксова сигнала, использовался подход, развитый в [359,364] на основе численного решения обобщенного нелинейного уравнения Шредингера (ОНУШ), описывающего трансформацию сверхкороткого лазерного импульса при распространении в быстро ионизирующейся среде [362,363]. В уравнениях была расширена модель функции комбинационного отклика, которая включает в себя мгновенную часть, отвечающую за нерезонансный вклад от электронов, и фоновый отклик от симметричных и асимметричных колебательных мод воды и липидов. В соответствии с результатами работы [366], в расчетах подбиралась относительная амплитуда электронной и фоновой части отклика среды, для наилучшего соответствия с экспериментальными данными КАРС - спектроскопии (рис. 5.7.2а,б). Уравнение распространения (1.6) решалось одновременно с вычислением динамики электронной плотности  $\rho(t) = \rho_{ph}(t) + \rho(t)_i$ , где  $\rho_{ph}(t)$  и  $\rho_i(t)$  - члены, связанные с фотоионизацией и лавинной ионизацией, соответственно. В модели фотоионизации  $\partial \rho_{ph} / \partial t = W$  среды использовался формализм Келдыша [367] с соответствующими материальными параметрами характерными для биологических тканей (воды) и параметров экспериментов [356].

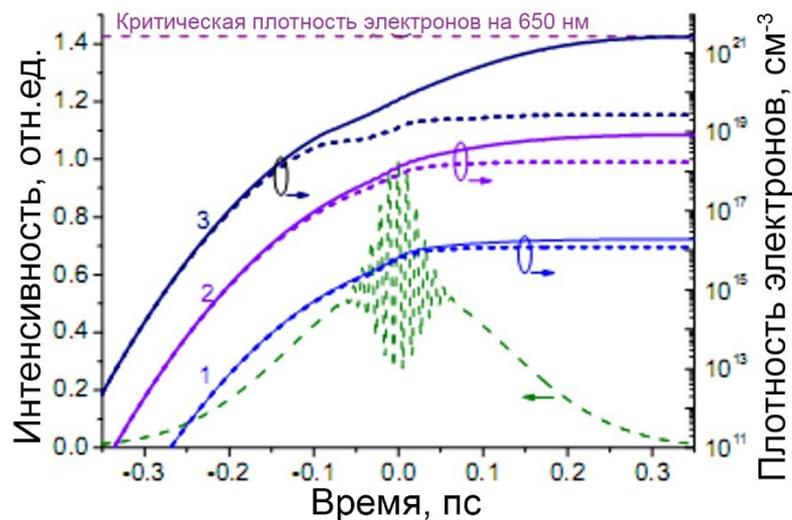


Рис.5.7.3 Электронная плотность, рассчитанная в зависимости от времени с учетом (сплошные кривые) и без (короткий пунктир) лавинной ионизации, для бигармонической накачки поля (показанного пунктиром) с максимальными интенсивностями (1)  $1.3 \text{ ТВт/см}^2$ , (2)  $5 \text{ ТВт/см}^2$ , (3)  $16 \text{ ТВт/см}^2$ . Критическая плотность электронов для излучения накачки с длиной волны 650 нм показана горизонтальным пунктиром.

Начальные условия при анализе ОНУШ определены как: трехцветное поле, состоящее из поля накачки, стоксова и зондирующего импульса (см. пунктирные линии на рис.5.7.3). Фурье преобразование от амплитуды поля  $A(\eta, z)$  дает полный спектр поля в точке  $z$ , включая его антистоксову компоненту, генерируемую в процессе КАРС в комбинационно активной среде. В режиме сильных интенсивностей световых полей плотность электронов в рассматриваемой области биологической ткани может достигнуть критической  $\rho_c$  (показано пунктирной горизонтальной линией на рис. 5.7.3) уже к заднему фронту лазерного импульса (кривая 3 на рис. 5.7.3). В этом режиме лазерное повреждение тканей появляется даже после одного двухчастотного импульса, содержащего накачку и стоксово поле. Отметим, что в этом режиме рост электронной плотности в тканях в основном определен лавинной ионизацией, причем  $\rho_i$  превышает  $\rho_{ph}$  более чем на два порядка (сплошная и пунктирная линии 3 на рис. 5.7.3).

Лазерные импульсы с меньшими интенсивностями могут привести к росту плотности электронов при отсутствии видимых повреждений биологических тканей. Из наших экспериментов видно, что в этом режиме сверхбыструю ионизацию можно зарегистрировать за счет вызванного ионизацией смещения частоты антистоксова сигнала. Возможность использования модели для предсказания ионизационных процессов проверялась сравнением между экспериментальными КАРС спектрами (закрашенные и пустые кружочки) и численным моделированием (сплошные линии) на рис. 5.7.2а,б для разных типов тканей мозга и разных интенсивностей лазерного излучения. Сравнение экспериментально измеренных спектров КАРС и результатов численного моделирования, выполненных для разных интенсивностей лазерного излучения (рис. 5.4.3а,б), помогает определить появление ионизационных эффектов и показывает степень влияния ионизации на спектр КАРС-сигнала. Таким образом, анализ частотного сдвига спектра КАРС в

зависимости от лазерной интенсивности позволяет количественно характеризовать эффекты ионизации, которые неизбежно выступают в качестве ограничивающего фактора для повышения чувствительности, отношения сигнала/шум, и, соответственно, скорости считывания при нелинейно-оптической биовизуализации.

Другое приложение микроструктурированных световодов, связано с их использованием в качестве зондов (эндоскопов) для сбора оптического сигнала и доставки его к приёмнику, что находит свое применение в задачах исследования биологических объектов, в том числе в режиме *in vivo*. Эндоскопические приложения волоконных компонентов предполагают их компактность, гибкость и многофункциональность. В отличие от использования волокон в лазерной хирургии или стоматологии, в задачах биовизуализации требуется не только транспортировка излучения накачки и оптимальная геометрия фокусировки на образце, но также предполагается эффективный сбор полезного оптического сигнала (наиболее часто флуоресценции) и его обратная доставка к системе регистрации с минимальными потерями [368]. Причем сложность требований и количество ограничений значительно возрастает в случае реализации эндоскопического протокола для нелинейно-оптических (многофотонных) методов [274]. Эти ограничения связаны с дисперсионным расплыванием сверхкороткого лазерного импульса, необходимостью учитывать возможное фотоповреждение биотканей и небольшой числовой апертурой стандартных волокон, которая позволяет собирать сигнал двухфотонной флуоресценции лишь из небольшого телесного угла, что критическим образом влияет на чувствительность.

В наших работах [369,370] было использовано кварцевое микроструктурированное волокно с двойной оболочкой (рис. 5.7.1а), что помогло реализовать оптимальные условия возбуждения и сбора двухфотонной флуоресценции (ДФФ) для различных биологических объектов. Сплошная сердцевина с диаметром 2,7 мкм этого световода, окруженная микроструктурированной оболочкой диаметром 20 мкм, используется для транспортировки зондирующих лазерных импульсов к исследуемой области. Такая структура световодной сердцевины обеспечивает высокую нелинейность и аномальный дисперсионный профиль основной моды для излучения Ti:Sapphire источников, что определяет возможность распространения импульсов в солитонном режиме в процессе ССЧ, который позволяет получить излучение на длине волны, наиболее точно совпадающей со спектром двухфотонного поглощения используемых флуоресцентных сенсоров или маркерных белков. Помимо подстройки длины в необходимую область (за счет модификации структуры диапазон смещения импульсов на выходе МС волокон подобной структуры может составлять порядка 600 нм) солитоны позволяют сохранить высокую пиковую мощность, необходимую для многофотонного возбуждения среды. Более того дисперсионный профиль МС волокна (а именно, наличие двух областей с нулевой дисперсией групповых скоростей ДГС на 690 и 1050 нм, обеспечивает возможность достижения режима стабилизации ССЧ [371]. Было продемонстрировано, что для импульсов накачки Ti:Sapphire генератора с центральной длиной волны 800 нм длительностью 40 фс и энергией большей 120 пДж, положение центральной длины волны солитонов стабилизируется относительно изменения (или флуктуаций) энергии входных

импульсов. Интенсивность лазерного излучения, используемого в экспериментах по возбуждению двухфотонной флуоресценции (ДФФ) в живых тканях, не превышала 10 ГВт/см<sup>2</sup>, что обеспечивало неинвазивный характер взаимодействия.

На рис. 5.7.4а представлен пример формирования стабильного солитонного импульса с центральной длиной волны 980-990 нм, что хорошо подходит для двухфотонного возбуждения маркерного красителя AlexaFluor 488. Такая схема возбуждения более чем на порядок увеличивает эффективность возбуждения двухфотонной флуоресценции по сравнению с использованием для этой цели импульсов накачки от Ti:sapphire лазера со сравнимыми энергетическими характеристиками. Использование сдвинутых по частоте солитонов для получения сигнала ДФФ было продемонстрировано в режиме *in vivo* в нескольких тестовых экспериментах (рис.5.7.4б): двухфотонного возбуждения флуоресцентного белка DsRed2 в мышечной ткани головастика *Xenopus laevis*, зеленого флуоресцентного белка EGFP в клетках мозга трансгенной мыши и прокрашенных тканях головного мозга мыши красителем AlexaFluor 555. Поскольку использованное волокно имеет сложную двойную оболочку (размер внешнего диаметра 24 мкм), обе эти структуры могут служить высокоапертурным (~0,55) многомодовым волноводом, необходимым для сбора и транспортировки полезного сигнала ДФФ от молекул красителя, возбужденных в результате двухфотонного поглощения. Преимущества ФК волокон с двойной оболочкой и высокоапертурной внутренней оболочкой для сбора люминесцентного отклика было ранее продемонстрировано в экспериментах по двухфотонному зондированию биологических тканей [372], и было подтверждено в наших экспериментах с подобной структурой МС волокна, обеспечившей не только возбуждение сигнала двухфотонной люминесценции, но и его эффективный сбор и регистрацию в режиме *in vivo*.

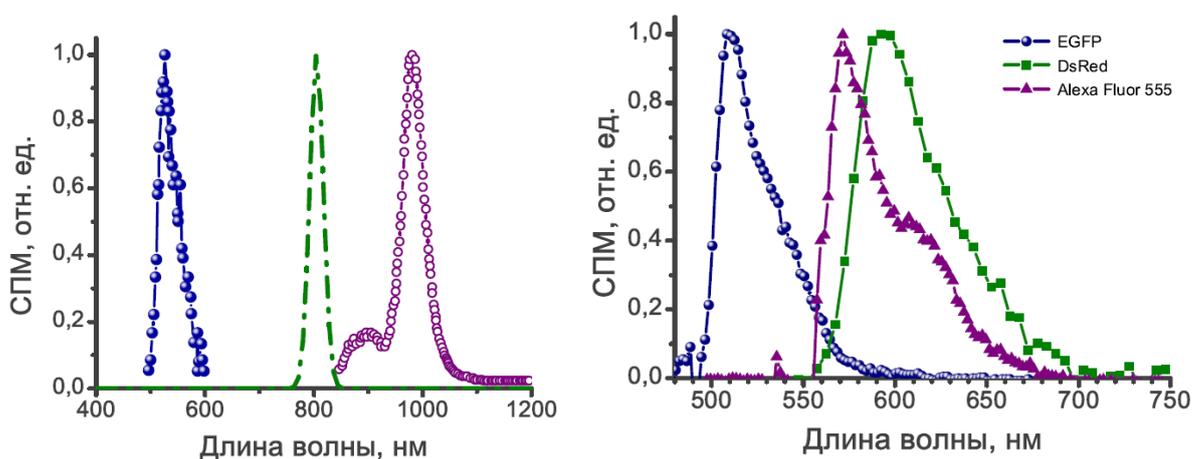


Рис.5.7.4. (а) Нормированные спектры флуоресцентного сигнала маркерного красителя AlexaFluor 488 (синяя линия), возбужденного в процессе двухфотонного поглощения, сдвинутого по частоте солитона в МС волокне (фиолетовая линия). В области 800 нм показан начальный спектр импульса накачки на выходе Ti:Sapphire лазера. (б) Примеры регистрации ДФФ сигнала в режиме *in vivo*: флуоресцентных белков EGFP в мозге трансгенной мыши (заполненные кружки), DsRed2 в хвосте головастика *Xenopus laevis* (прямоугольники) и красителя AlexaFluor 555 в окрашенном мозге мыши (треугольники).

Интересным и перспективным продолжением применения нелинейно-оптических спектральных преобразований фемтосекундных импульсов в микроструктурированных волноводах является их использование в задачах многофотонной спектроскопии различных флуоресцентных меток, в частности сенсоров окислительно-восстановительных процессов семейства пермутированных белков на основе желтого флуоресцентного белка (cpYFP), которое нашло свое отражение в недавних работах нашей группы [373–375], где были детально исследованы режимы двух- и трехфотонного возбуждения этих белков.

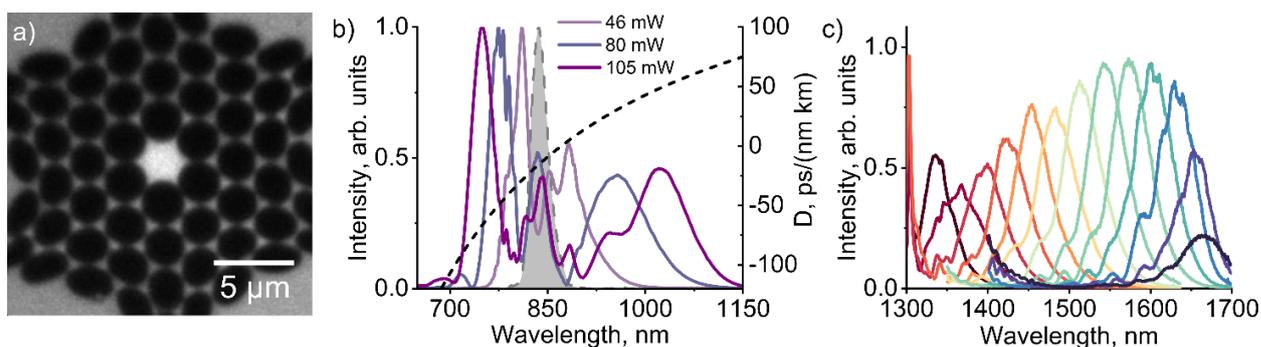


Рис.5.7.5. (a) Изображение структуры МС-волновода с диаметром сердцевины  $\sim 2,5$  мкм. (b) Спектры суперконтинуума для разных мощностей накачки перед фокусирующей асферической линзой; закрашенный профиль соответствует 7 мВт; пунктир соответствует дисперсии волокна. (c) Спектры сдвинутых по частоте солитонов при накачке хром-форстеритовым генератором.

Для проведения спектроскопии и микроскопии двухфотонного возбуждения в диапазоне от 650 нм до 1150 нм был использован небольшой отрезок МС волновода (рис.5.7.5а) с диаметром сердцевины порядка 2.5 мкм и нулем дисперсии групповых скоростей, близкой к центральной длине волны фемтосекундного Ti:Sapphire генератора. В этом случае удавалось получить стабильное широкополосное излучение, из которого можно было выделять отдельные спектральные полосы (рис.5.7.5б), используемые для прецизионной характеристики двухфотонных спектров возбуждения органических красителей и флуоресцентных белков с точностью до 1 ГМ при концентрации образца в 1 мкМ за время порядка 1 минуты [375].

Хотя такой подход с использованием сверхуширенного излучения от Ti:Sapphire генератора фемтосекундных импульсов успешно применялся при измерениях двухфотонных спектров возбуждения белковых сенсоров в “зеленой” части спектра, при смещении в длинноволновую область возникают определенные проблемы, в первую очередь связанные с падением эффективности двухфотонного возбуждения для “красных” меток и значительно более высокие требования пиковой интенсивности для трехфотонного возбуждения. Решением может служить применение эффекта солитонного самосдвига частоты при работе в области аномальной дисперсии групповых скоростей МС волнопроводов и использования фемтосекундного хром-форстеритового генератора, что подробно обсуждалось в Главе 3. Эта схема позволяет получить перестройку центральной длины волны формируемых спектрально-ограниченных солитонов с высоким коэффициентом преобразования входной мощности (рис.5.7.5в). Помимо решения спектроскопических

задач, связанных с точным измерением сечений двух и трехфотонного поглощения, большая гибкость в управлении спектральными и временными параметрами выходного излучения МС волновода позволяет добиться оптимальных условий для проведения таких методик, как КАРС-микроспектроскопия, микроскопия генерации второй и третьей гармоники, микроскопия вынужденного комбинационного рассеяния и флуоресцентная микроскопия при двух- и трехфотонном возбуждении [376].

## **§5.8. Источник коррелированных фотонных пар и одиночных провозглашенных фотонов на основе векторного четырехволнового взаимодействия в двулучепреломляющем фотонно-кристаллическом световоде**

В настоящее время квантовая оптика является одним из наиболее стремительно развивающихся разделов физики. Большинство экспериментов по исследованию различных вопросов, связанных с квантовыми вычислениями [377], криптографией [378], телепортацией [379] и метрологией [380], проводятся с коррелированными фотонными парами и одиночными фотонами, которые затем могут быть использованы для формирования более сложных квантовых состояний света и других задач квантовой оптики. Наиболее распространённым методом получения фотонных пар (впервые предложенным Д.Н.Клышко [381]) является спонтанное параметрическое рассеяние (СПР) в кристаллах с квадратичной нелинейностью. В качестве альтернативы СПР можно рассматривать процесс спонтанного четырехволнового взаимодействия (ЧВВ) в оптических волноводах, в том числе в фотонно-кристаллических оптических волокнах. В отличие от происходящего на нелинейности второго порядка СПР в кристаллах, в процессе ЧВВ необходима пара фотонов накачки, которые распадаются на два фотона с симметрично отстроенными частотами, которые также могут служить источником одиночных провозглашенных фотонов [141]. В случае волоконного источника одиночных фотонов и фотонных пар обычно выделяют несколько очевидных преимуществ: (i) создаются наилучшие условия сопряжения и волоконной транспортировки реализуемых квантовых состояний света; (ii) гибкое управление дисперсией волокон обеспечивает возможность широкого контроля характеристик квантовых состояний света; (iii) волоконные технологии имеют высокий потенциал миниатюризации и использования их в схемах интегральной оптики.

Возможность получения коррелированных фотонных пар в стандартных одномодовых световодах впервые была продемонстрирована в [382], где использовалось волокно длиной 300 м и достигнута яркость  $10^3$  пар/секунду, что было близко к пределу скорости счета фотонов детекторами в то время. Гораздо большая яркость, а также гибкость управления параметрами фотонной пары может быть достигнута в фотонно-кристаллических волокнах [141]. За счет изменения геометрии оболочки и диаметра сердцевины возможно создать волокна с нулем дисперсии в видимом диапазоне, а также в телекоммуникационном окне около длины волны 1500 нм. Это позволило реализовать источники фотонных пар на самых разнообразных длинах волн – от 500 до 1600 нм [383–393]. Длины фотонно-кристаллических волокон, необходимые для создания источника с

яркостью  $10^6$  фотонных пар в секунду составляют всего порядка 1 м, а необходимая средняя мощность накачки титан-сапфирового фемтосекундного генератора – около 1 мВт. Также на основе источника фотонных пар в ФК волокнах возможна реализация генератора одиночных провозглашенных фотонов [391–394], в том числе с одиночными фотонами в чистом состоянии [395]. Теоретический анализ процесса ЧВВ с классической и квантовой точек зрения проведен в [396], влияние дисперсии волокна, длины волны накачки и поляризации излучения на степень спектральной коррелированности фотонной пары рассмотрено в [141]. Интересной реализацией является генерация фотонных пар в перетянутых волокнах [397,398]. Анализ негативного влияния шумовых фотонов, сгенерированных в процессе спонтанного рамановского рассеяния проведен в [38]. Наиболее полный обзор результатов экспериментов по генерации фотонных пар и одиночных фотонов в ФК волокнах приведен в [399,400].

В параграфе 2.3 был приведен анализ дисперсионных и нелинейных свойств фотонно-кристаллических световодов применительно к возможности генерации коррелированных фотонных пар в процессе спонтанного ЧВВ. Этот анализ продемонстрировал основные требования к характеристикам оптических волноводов с учетом имеющихся экспериментальных возможностей, что позволило остановиться на выборе коммерчески доступного волокна модели NL-PM-750, которое также имеет значительное двулучепреломление вследствие эллиптической формы сердцевинки и помимо скалярного ЧВВ позволяет генерировать фотонные пары в процессе векторного ЧВВ.

Для проведения экспериментов в лаборатории фотоники и нелинейной спектроскопии МГУ имени М.В.Ломоносова была создана установка (рис.5.8.1), позволяющая получать и анализировать свойства спектрально-запутанных фотонных пар, полученных в процессах векторного ЧВВ в высоконелинейном двулучепреломляющем ФК волокне модели NL-PM-750 [401–404].

В качестве накачки используется фемтосекундный титан-сапфировый генератор, позволяющий формировать импульсы длительностью 50 фс FWHM с частотой повторения 92 МГц, центральной длиной волны  $\lambda_p=800$  нм и энергией в импульсе до 5 нДж. Высокая пиковая мощность импульсов накачки обеспечивает эффективное протекание спонтанного четырехволнового взаимодействия. Для уменьшения влияния группового разбегания участвующих в процессе ЧВВ компонент, лазерные импульсы с длиной волны  $\lambda_p=800$  нм и длительностью 50 фс chirпируются, а именно раскладываются в спектр на отражательной дифракционной решетке с дальнейшей спектральной фильтрацией на щели. Особенности оптической схемы позволяют формировать спектрально-ограниченные импульсы с длительностью порядка 300 фс без частотного и пространственного chirпа. Возникающие при этом значительные энергетические потери не играют существенной роли, поскольку в экспериментах средняя мощность излучения не превосходит нескольких мВт. Использование небольших значений пиковых мощностей также важно с точки зрения уменьшения влияния «паразитных» нелинейно-оптических процессов, в частности

проявляющихся в сильном уширении спектра, которое могло бы препятствовать эффективному выделению фотонных пар.

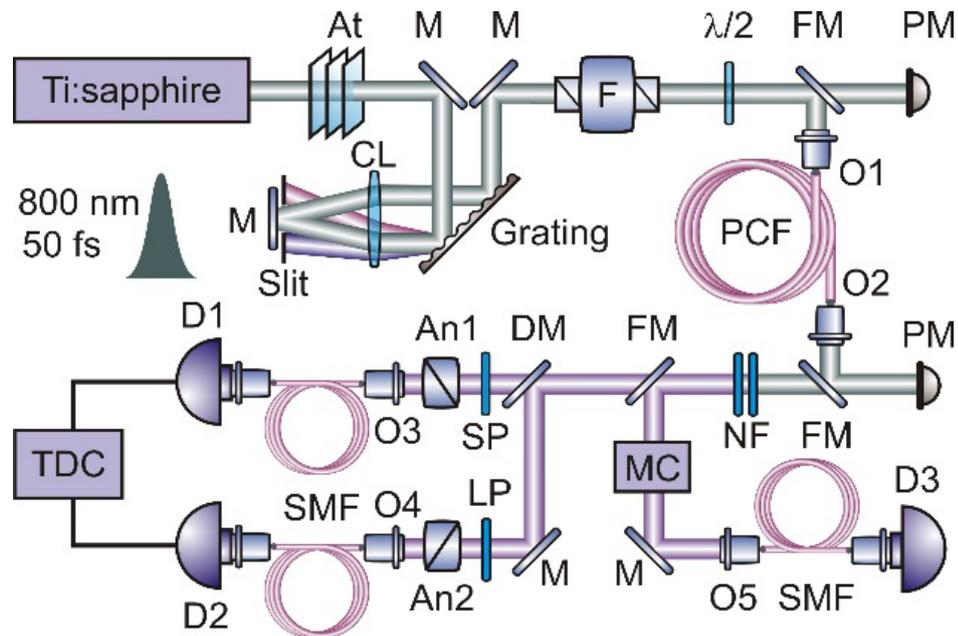


Рис.5.8.1. Экспериментальная установка. At – фильтры; M – зеркала; F – изолятор Фарадея; CL – цилиндрическая линза;  $\lambda/2$  – полуволновая пластинка; O – объективы; PCF – фотонно-кристаллическое волокно; NF – notch фильтры NF-808; MC – монохроматор; DM – дихроическое зеркало с длиной волны отсечки 805 нм; SP – коротковолновый фильтр; LP – длинноволновый фильтр; An – анализаторы Глана-Тейлора; SMF – одномодовые волокна; D – кремниевые лавинные фотодетекторы; TDC – время-цифровой преобразователь.

Управление условиями возбуждения амплитуд полей в быстрой ( $f$ ) и медленной ( $s$ ) модах ФК волокна осуществлялось полуволновой пластиной по очевидным зависимостям:  $E_f = E_p \cos \varphi$  и  $E_s = E_p \sin \varphi$  (где  $\varphi$  – угол к направлению оси быстрой моды относительно исходной поляризации излучения накачки  $E_p$ ). Большинство измерений проводились для значений угла поворота полуволновой пластинки  $\varphi = \pi/4$ , что соответствует равномерному распределению амплитуды поля накачки по двум ортогональным модам волокна.

На выходе фотонно-кристаллического волокна были использованы узкополосные notch-фильтры NF-808 с центральной длиной волны 808 нм и шириной полосы 34 нм, обеспечивающие ослабление излучение накачки более чем на двенадцать порядков, что диктуется как необходимостью отсечки некоррелированных фотонов накачки, так и необходимостью защиты используемых лавинных однофотонных фотодетекторов (SPAD). Поворот интерференционных фильтров на небольшой угол позволял сдвигать центр «вырезаемой» ими спектральной полосы и соответственно варьировать длину волны излучения накачки в пределах 785-825 нм. Это излучение затем разделялось на два канала: анализировалось по спектру с помощью монохроматора и однофотонного детектора, либо направлялось в схему Брауна-Твисса для проведения корреляционных измерений. Дихроичное зеркало DM разделяет в пространстве фотоны с длинами волн больше и

меньше  $\lambda_p$ . Для подавления шумовых рамановских фотонов перед детекторами размещаются интерференционные фильтры SP и LP. Кроме того, в случае генерации фотонов в ортогональной относительно накачки поляризации моде, поляризованное преимущественно вдоль накачки излучение рамановского рассеяния может быть дополнительно отфильтровано с помощью анализаторов (призм Глана-Тейлора).

Нами использовались кремниевые лавинные однофотонные фотодетекторы MPD-050 и COUNT-T с волоконным вводом. Схема совпадений на базе встраиваемой электронной платы TimeHarp 260P имеет два канала с разрешением по времени 25 пс и мёртвым временем 25 нс. Измеренное временное разрешение (аппаратная функция) схем совпадений на базе детекторов MPD-050 и COUNT-T составляет  $\sim 50$  и 350 пс, соответственно. Однофотонные детекторы MPD-050 обладают более высоким временным разрешением, но их квантовая эффективность на длине волны 800 нм заметно ниже, чем для детекторов COUNT-T (15% и 60% соответственно). В зависимости от реализуемой экспериментальной задачи использовались разные варианты детекторов. Суммируя возможности реализованной экспериментальной схемы, можно сказать, что она обеспечивает управление мощностью излучения накачки, ее центральной длиной волны, шириной спектра и поляризацией, а схема измерений позволяет характеризовать как спектральные, так корреляционные параметры формируемых в фотонно-кристаллическом волокне фотонных пар [401–405].

В работах [401–405] детально исследовано векторное четырехволновое взаимодействие, обеспечивающее новые режимы генерации коррелированных фотонных пар. В частности, особое внимание уделялось исследованию генерации фотонных пар на частотах сигнальной и холостой волн в модах при ортогонально-поляризованной накачке, что позволяет повысить контраст генерируемых фотонных пар относительно рамановского шума и обеспечить поляризационную перепутанность состояний [402,405]. Хотелось бы отметить, что формирование фотонных пар в векторном ЧВВ I-типа было исследовано достаточно подробно, в то время как ЧВВ II-типа практически не рассматривалось до наших работ. Получены спектральные компоненты, отстроенные относительно частоты накачки на 45 ТГц в области аномальной дисперсии высоконелинейного фотонно-кристаллического волокна NL-PM-750. На рисунке 5.8.2а представлен спектр излучения на выходе из ФК волокна NL-PM-750, измеренный в режиме счёта фотонов для векторного ЧВВ в поляризационной конфигурации  $s_p + f_p = s_s + f_i$ . На графике видны хорошо разрешенные пики на длинах волн  $\lambda_s = 713$  нм и  $\lambda_i = 912$  нм, соответствующие сгенерированным сигнальным (s) и холостым (i) фотонам, а также широкий пик спонтанного рамановского рассеяния (максимум отстроен от длины волны накачки на величину  $\sim 30$  нм). Как уже было отмечено при описании экспериментальной схемы, излучение накачки  $\lambda_p$  многократно подавляется notch-фильтрами.

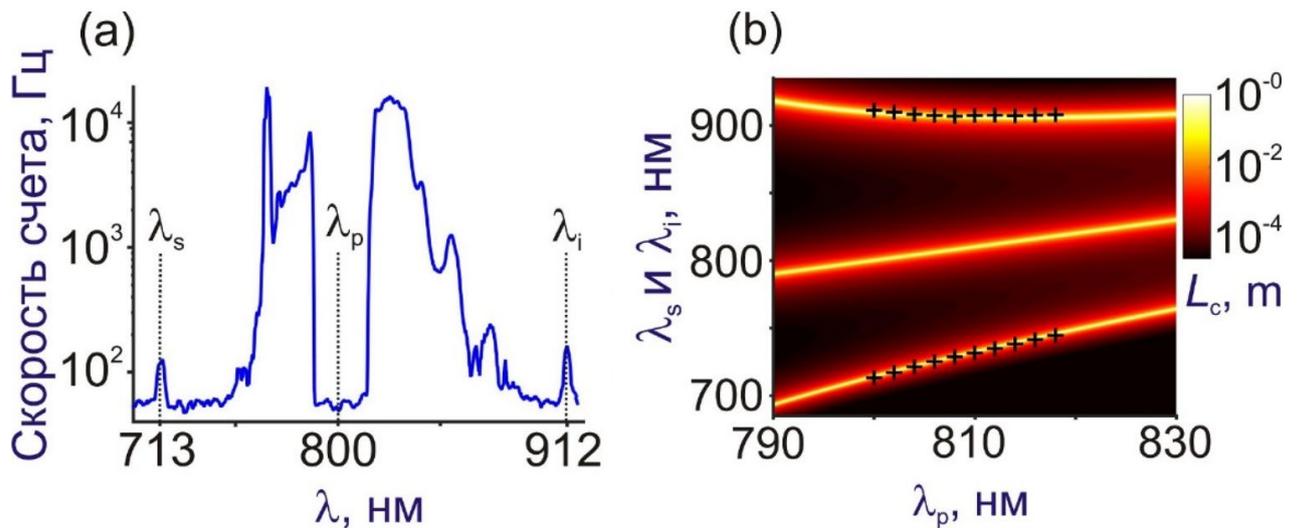


Рис. 5.8.2. (а) Спектр излучения на выходе из фотонно-кристаллического волокна при накачке на  $\lambda_p=800$  нм. (б) Спектральная карта векторного ЧВВ II типа (цвет) и результаты измерения сигнальных и холостых дин волн (крестики).

Скорость счёта фотонов вблизи рамановского пика более чем на два порядка выше, чем скорость счета сигнальных и холостых фотонов. Использование особенностей фазового согласования для векторного ЧВВ II типа (рис.2.3.2) позволяет при средней мощности накачки  $\sim 1$  мВт (пиковая мощность  $P = 35$  Вт) получить отстройку частоты пар фотонов относительно накачки, превышающую 45 ТГц (около 200 нм). Такой большой сдвиг частот обеспечивает увеличение контраста фотонных пар относительно рамановского рассеяния при соответствующей спектральной фильтрации. На рисунке 5.8.2б показано сравнение рассчитанной на основе дисперсии волокна карты фазового согласования процесса  $s_p + f_p = s_s + f_i$  с экспериментально измеренными длинами волн сигнального и холостого фотонов. Благодаря преимуществам, обеспечиваемым векторным характером четырехволнового взаимодействия, реализован яркий (до  $10^5$  пар в секунду) источник коррелированных фотонных пар с эффективным спектральным и поляризационным подавлением рамановского шума. Поскольку подтверждённая скорость генерации достигает  $10^5$  пар в секунду, а импульсы накачки поступают в ФК волокно с частотой повторения 92 МГц, вероятность генерации фотонной пары на импульс составляет примерно одну тысячную, что свидетельствует о протекании сугубо неклассического спонтанного процесса ЧВВ [401].

Одним из важнейших неклассических состояний света являются одиночные фотоны, контроль формирования которых можно осуществить с помощью фотонных пар в режиме генерации одиночных провозглашенных фотонов, для которого требуется уже три детектора. Первый детектор измеряет провозглашающий фотон, а оставшиеся два – обеспечивают измерение корреляционной функции  $g^{(2)}(0)$  в схеме Брауна-Твисса. Регистрация  $g^{(2)}(0) \ll 1$  является показателем успешной реализации источника одиночных провозглашенных фотонов. Для анализа физики процесса регистрации одиночных провозглашенных фотонов представим модель для вычисления корреляционных и кросскорреляционных функций детектируемых фотонов. Регистрируемые на детекторах

D1 и D2 фотоны будем обозначать сигнальными, а детектируемый на D3 фотон будем называть холостым (или провозглашающим). Смысл этого названия заключается в том, что регистрация фотона на D3 провозглашает (определяет) наличие сопряженного (парного) фотона, который будет зарегистрирован D1 или D2 [402,405].

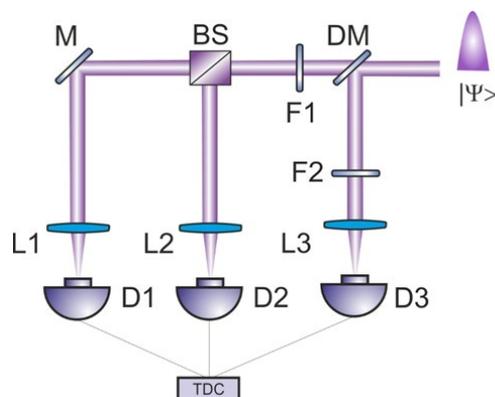


Рис.5.8.3. Модифицированная часть экспериментальной схемы для характеристики источника одиночных провозглашенных фотонов. *M* – зеркало, *DM* – дихроическое зеркало, *F1* – интерференционный фильтр на 710 нм, *F2* – интерференционный фильтр на 920 нм, *BS* – делитель пучка 50:50.

В экспериментах измеряются скорости счета фотонов  $N_1$ ,  $N_2$ ,  $N_3$  на детекторах D1, D2, D3, скорости счета совпадений между отсчетами детекторов D1 и D2  $N_{12}$ , скорости счета совпадений между отсчетами детекторов D1 и D3  $N_{13}$ , а также скорости счета тройных совпадений  $N_{123}$  фотоотчетов детекторов D1, D2 и D3 в зависимости от мощности заводимого в волокно излучения накачки. В ходе описанных ниже экспериментов все остальные параметры излучения накачки (длительность импульса, поляризация, центральная длина волны) поддерживались неизменными, так как они уже были оптимизированы ранее при исследовании векторного режима ЧВВ в поляризационной конфигурации  $s_p + f_p = s_s + f_s$ . В частности, это позволило убрать из оптической схемы дифракционную решетку и щель для фильтрации спектра. Вместо этого для фильтрации используется узкополосный интерференционный фильтр, что уменьшает потери излучения накачки. Как и в представленных выше экспериментах используется накачка с центральной длиной волны около 800 нм, сигнальный фотон имеет центральную длину волны около 713 нм, холостой фотон – около 912 нм. На рис. 5.8.4 показаны зависимости скорости счета фотонов на детекторах D1, D2 и D3 от мощности накачки.

Графики на рис. 5.8.4а и 5.8.4б идентичны друг другу, так как соответствуют сигнальным фотонам, разделенным симметричным делителем пучка. Различие в скорости счета фотонов примерно в 2.5 раза вызвано тем, что D1 имеет в 2.5 раза большую квантовую эффективность на длине волны сигнального фотона. Зависимости на рис. 5.8.4а и 5.8.4б аппроксимированы квадратичной функцией вида  $ap^2$ , где  $a$  – параметр аппроксимации. Чисто квадратичная зависимость показывает [382], что в сигнальном канале находятся только фотоны, сгенерированные в процессе спонтанного ЧВВ. На рис. 5.8.4с показана зависимость количества холостых фотонов от мощности накачки. Данная зависимость

также носит квадратичный характер, однако ее приходится аппроксимировать полиномом вида  $ap^2 + bp$ . Это связано с тем, что в холостом канале имеются фотоны, рожденные в процессе рамановского рассеяния, количество которых растет линейно с мощностью накачки. На рис. 5.8.4d в одних осях построены зависимости  $N_1+N_2$  (синий) и  $N_3$  (красный). Видно, что в холостом канале действительно содержится значительная линейная по мощности составляющая. Максимальная мощность накачки, при которой удалось провести измерения, составляет 2.5 мВт. Такое ограничение связано с тем, что при большей мощности излучение накачки в ФК волокне уширяется настолько, что notch-фильтр начинает пропускать большое количество фотонов накачки, что делает невозможным какие-либо измерения в режиме счета фотонов. Количество совпадений  $N_{12}$  зависит от мощности как  $ap^4$ , так количество фотонов на каждом из D1 и D2 зависит от мощности квадратично, а количество совпадений в данном случае должно быть пропорционально произведению количества фотонов на каждом из детекторов.

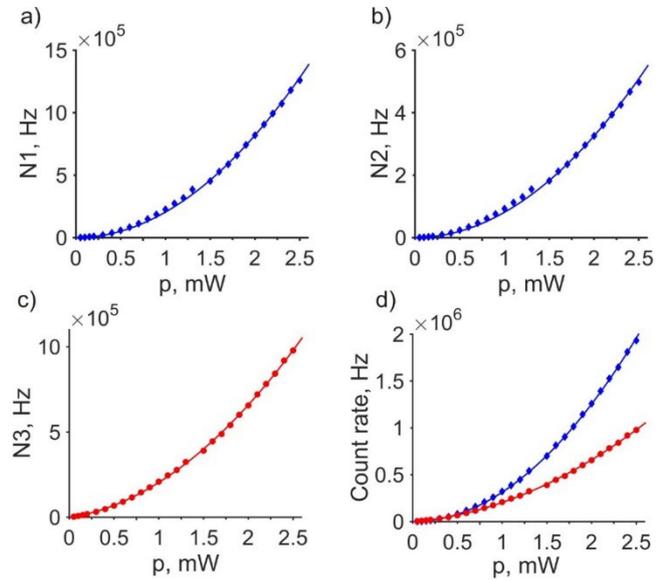


Рис.5.8.4. Скорости счета фотонов на детекторах D1, D2 и D3. А –  $N_1$ , b –  $N_2$ , c –  $N_3$ , d – синий –  $N_1+N_2$ , красный –  $N_3$

Таким образом, в эксперименте зарегистрирована скорость счета фотонных пар  $2 \times 10^5$  Гц при средней мощности накачки 2.5 мВт. Это соответствует яркости источника  $8 \times 10^4$  Гц/мВт, что более чем на 2 порядка превышает результаты, обычно получаемые в процессе СПР в нелинейных кристаллах. С учетом эффективности детекторов скорость генерации фотонов в спонтанном ЧВВ II-типа превышает  $10^6$  Гц, и лимитирующим фактором являются характеристики детектирующей системы (в качестве физического ограничивающего фактора можно говорить об уширении спектра накачки). Высокая яркость волоконных источников фотонных пар и одиночных фотонов является одним из основных преимуществ таких источников над СПР-источниками.

Тройные совпадения соответствуют одновременному срабатыванию всех трех используемых детекторов. Такие события возможны вследствие одновременной генерации нескольких фотонных пар одним импульсом накачки, а также наличия различных шумов в

сигнальном и холостом канале. Зависимость хорошо аппроксимируется функцией  $ap^4$  [405]. Можно отметить, что количество тройных совпадений значительно меньше, чем количество фотонных пар, что в том числе обеспечивает антигруппировки провозглашенных фотонов со значениями условной корреляционной функции меньшими единицы.

Проведение измерений статистических (корреляционных) свойств фотонных пар является необходимой процедурой при их характеристизации. Непосредственным признаком «неклассичности» света может являться антигруппировка или сверхгруппировка регистрируемых фотоотсчётов, определяемая с помощью нормированной корреляционной функции второго порядка  $g^{(2)}(\tau)$ . На практике корреляционная функция определяется через число совпадений и единичных фотоотсчётов в схеме Брауна-Твисса. Функция  $g^{(2)}(\tau)$  несёт информацию о вероятности процесса и для стационарного источника определяется как [399]:

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle \hat{a}^\dagger(t) \hat{a}^\dagger(t+\tau) \hat{a}(t+\tau) \hat{a}(t) \rangle}{\langle \hat{a}^\dagger(t) \hat{a}(t) \rangle^2}, \quad (5.11)$$

где  $\hat{a}^\dagger(t)$  и  $\hat{a}(t)$  – операторы рождения и уничтожения фотонов в момент времени  $t$ , а угловые скобки обозначают усреднение по квантовому состоянию. При  $\tau = 0$   $g^{(2)}(0)$  называют *параметром группировки* или *нормированным четвёртым моментом поля*. Значение  $g^{(2)}(0)$  характеризует статистику измеряемых фотонных пар. Важным свойством  $g^{(2)}(0)$  является то, что её значение не искажается при наличии потерь в системе. Эта особенность позволяет проводить измерение с помощью разбалансированных светоделителей или в условиях, когда квантовая эффективность используемых детекторов существенно различается.

Можно записать выражение (5.11) для корреляционных и кросс-корреляционных функций второго порядка в общем виде  $g_{ij}^{(2)}(0) = \frac{\langle \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i \hat{a}_j^\dagger \hat{a}_j \rangle}{\langle \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i \rangle \langle \hat{a}_j^\dagger \hat{a}_j \rangle}$ , где индексы  $i, j$  обозначают номера детекторов. Кросс-корреляционная функция  $g_{13}^{(2)}(0)$  описывает статистику генерации фотонных пар в сигнальном и холостом канале (поскольку делитель пучка симметричен  $g_{13}^{(2)}(0) = g_{23}^{(2)}(0)$ ). Для когерентного света с пуассоновской статистикой  $g_{13}^{(2)}(0) = 1$ . Если  $g_{13}^{(2)}(0) > 1$ , это свидетельствует о суперпуассоновской статистике и группировке фотонов, свойственной классическим световым полям, например, тепловому излучению с  $g^{(2)}(0) = 2$ . Сверхгруппировка  $g_{13}^{(2)}(0) \gg 1$  наблюдается для двухфотонного света с примесью вакуума, причём, с ростом мощности накачки и, как следствие, числа генерируемых пар  $N$ ,  $g_{13}^{(2)}(0)$  уменьшается  $\sim N^{-1}$  и в пределе яркого сжатого вакуума становится равной 2.

Рассматривая противоположный случай слабого усиления, можно видеть, что кросс-корреляционная функция будет возрастать. В идеальных условиях отсутствия темновых отсчетов детекторов и фоновой засветки значения  $g_{13}^{(2)}(0)$  могут возрастать неограниченно,

что имеет физический смысл, заключающийся в сколько угодно малой вероятности генерации более чем одной пары фотонов за один импульс накачки при малых коэффициентах усиления. Однако, в реальных условиях получение больших значений  $g_{13}^{(2)}(0)$  затруднено наличием темновых отсчетов детекторов и другими источниками некоррелированных фотонов, например, для волоконных источников фотонных пар подобным фактором является спонтанное рамановское рассеяние.

Кросс-корреляционная функция детекторов D1 и D2  $g_{12}^{(2)}(0) = \frac{\langle \hat{a}_1^+ \hat{a}_1 \hat{a}_2^+ \hat{a}_2 \rangle}{\langle \hat{a}_1^+ \hat{a}_1 \rangle \langle \hat{a}_2^+ \hat{a}_2 \rangle} = g_{ss}^{(2)}(0)$  является корреляционной функцией сигнального пучка фотонов. Это соответствует тому факту, что светоделитель не влияет на кросс-корреляционную функцию сигнального и холостого фотонов.

Условная корреляционная функция  $g_{cond}^{(2)}(0)$  используется для характеристики качества источника одиночных провозглашенных фотонов. “Классическое” определение условной корреляционной функции записывается как:

$$g_{cond}^{(2)}(0) = \frac{p(D1\&D2|D3)}{p(D1|D3)p(D2|D3)}, \quad (5.12)$$

где  $p(D1\&D2|D3)$  – вероятность одновременной регистрации фотоотсчетов на D1 и D2 при условии детектирования сигнала на D3,  $p(D1|D3)$  и  $p(D2|D3)$  – вероятности отсчета на D1 или D2 при условии фотоотсчета на D3. Перезаписывая уравнение (5.12) в терминах скоростей счета фотонов, можно получить:  $g_{cond}^{(2)}(0) = \frac{N_{123}N_3}{N_{13}N_{23}}$ , где  $N_{123}$  – количество тройных совпадений,  $N_{13}$  и  $N_{23}$  – количество совпадений отсчетов соответствующих индексам пар детекторов,  $N_3$  – общее количество холостых фотонов за все время измерения. Совпадением считается детектирование фотонов в пределах некоторого временного окна, обычно обусловленного временным разрешением используемой системы регистрации. В пределе малого среднего числа фотонов на моду  $g_{cond}^{(2)}(0) \rightarrow 0$ , что соответствует одиночным фотонам в сигнальной моде (эффект антигруппировки фотонов). В противоположном пределе, соответствующему яркому сжатому вакууму  $g_{cond}^{(2)}(0) \rightarrow 3/2$ , наблюдается эффект группировки фотонов в сигнальном канале. Отметим, что в этом случае статистика фотонов отличается от статистики как тепловых, так и когерентных состояний, что является редким явлением для полей с макроскопическим числом фотонов. Можно определить границу советующей квантовому эффекту антигруппировки фотонов  $g_{cond}^{(2)}(0) = 1 \rightarrow \langle n \rangle = 1/\sqrt{2}$ , то есть меньше одного фотона на моду, и связать это с конкретными параметрами процесса ЧВВ в волокне. При малых значениях накачки и соответственно малых значениях усиления возможно получение произвольно малых значений  $g_{cond}^{(2)}(0)$ , однако, в этом случае количество фотонов на моду также становится произвольно малым, что неинтересно с практической точки зрения.

Таким образом, рассматривались четыре корреляционные функции, которые описывают статистические свойства излучения, сгенерированного в процессе спонтанного векторного ЧВВ II типа.

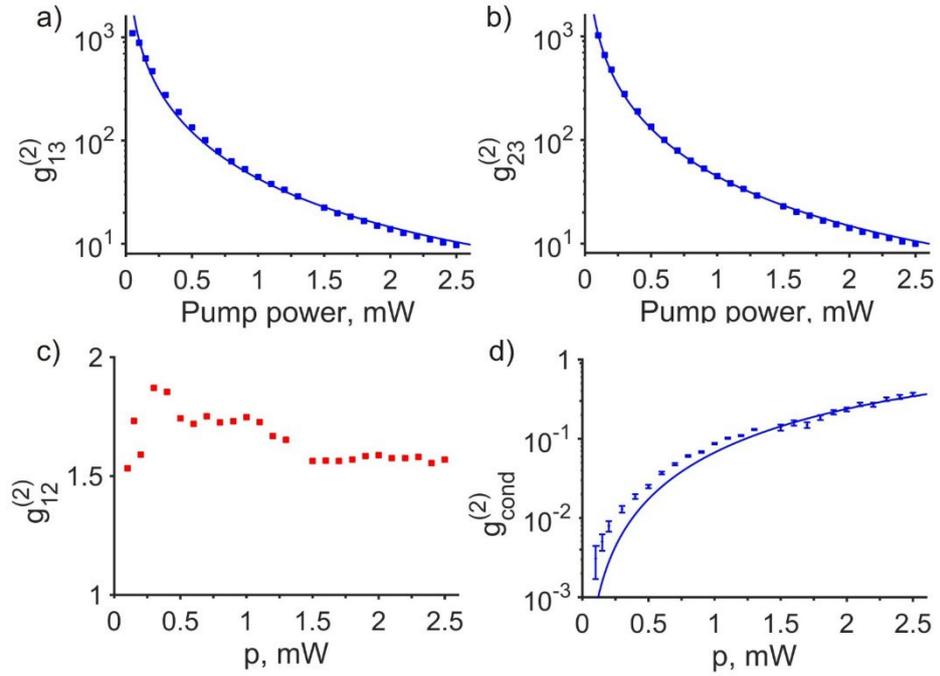


Рис.5.8.5. Корреляционные функции  $g^{(2)}$ .

Корреляционные функции  $g_{13}^{(2)}(0)$  (рис. 5.8.5а) и  $g_{23}^{(2)}(0)$  (рис. 5.8.5б) демонстрируют сверхгруппировку, что является проявлением генерации фотонных пар. Полученные в эксперименте максимальные значения превышают 1000 и ограничены сверху лишь уровнем темновых отсчетов детекторов (типичные значения  $g_{si}^{(2)}(0)$ , получаемые в СПР-экспериментах в кристаллах, достигают  $10^8$  [406]. При этом скорость счета фотонных пар мала и составляет всего 75 Гц. Минимальные полученные значения составляют около 10 и ограничены снизу невозможностью в реализованной схеме далее повышать мощность накачки и проводить измерения в режиме счета фотонов, так как детекторы переходят в насыщение. При этом количество зарегистрированных фотонных пар составляет  $2 \times 10^5$  Гц. Предельное значение  $g_{13}^{(2)}(0)$  и  $g_{23}^{(2)}(0)$  в режиме яркого вакуума равно 2. Зависимости на рис. 5.8.5а и 5.8.5б аппроксимированы функцией вида  $2 + a/(p^2 + bp)$ . Добавление линейного члена в знаменателе связано с наличием рамановского сигнала в холостом канале. Наличие значительной группировки фотоотсчетов особенно важно для реализации фантомной спектроскопии, описанной в следующем параграфе 5.9, поскольку именно параметр  $g_{si}^{(2)}$  определяет отношение между числом коррелированных и случайных совпадений.

Корреляционная функция  $g_{12}^{(2)}(0)$  показана на рис. 5.8.5с. При любой мощности накачки должно соблюдаться равенство  $g_{12}^{(2)}(0) = 2$ . Однако, экспериментальная зависимость несколько отличается от теоретической. При малой мощности накачки  $g_{12}^{(2)}(0)$  падает в связи с возрастающим влиянием темновых отсчетов детекторов, а при большой мощности значительное влияние начинает оказывать рамановское рассеяние, что также приводит к падению  $g_{12}^{(2)}(0)$  до уровня около 1.5.

Наиболее важной является условная корреляционная функция  $g_{cond}^{(2)}(0)$ , вычисляемая согласно (6.2). Напомним, что физический смысл такой корреляционной функции заключается в характеристике статистики излучения в сигнальном канале при условии регистрации холостого фотона. Условная регистрация сигнальных фотонов приводит к явлению антигруппировки в сигнальном канале. На рис. 5.8.5d показана зависимость  $g_{cond}^{(2)}(0)$  от мощности накачки. При ее уменьшении  $g_{cond}^{(2)}(0)$  стремится к нулю, а при большой мощности накачки возрастает, что является следствием возрастания вероятности генерации одновременно нескольких фотонных пар. Зависимость на рис. 5.8.5d аппроксимируется функцией вида  $\frac{2ap^2(2+3ap^2)}{(1+2ap^2)^2}$ , где  $a$  – свободный параметр. Бары погрешностей связаны с пуассоновской статистикой количества измеренных за данный промежуток времени тройных совпадений фотоотчетов  $N_{123}$ . Видно, что аппроксимация работает достаточно хорошо, однако, при уменьшении мощности накачки появляются расхождения, связанные с возрастающим влиянием темновых отсчетов детекторов. Минимальное достигнутое значение  $g_{cond}^{(2)}(0) = 0.0031 \pm 0.0014$ , максимальное измеренное значение составляет  $g_{cond}^{(2)}(0) = 0.36 \pm 0.02$ . Таким образом, все результаты измерений дают антигруппировку и субпуассоновскую статистику фотонов, что говорит об успешной реализации волоконного источника одиночных провозглашенных фотонов на основе векторного ЧВВ II типа в высоконелинейных фотонно-кристаллических световодах.

Другим важным вопросом, характеризующим генерируемые фотонные пары, является величина их квантовой запутанности. Квантовое запутывание высокой размерности [407–410] – это уникальный ресурс квантовых технологий, который обеспечивает возможность кодирования информации со сверхвысокой плотностью в квантовых коммуникациях [411,412], квантовых вычислениях с использованием квантовой логики [413], высокую точность измерений фазы в квантовых системах [414], повышенную устойчивость к шуму [415,416], более высокий уровень безопасности в квантовой криптографии [417]. Перепутывание во временной или частотной области совместимо с волоконно-оптическим протоколом передачи сигналов и возможно на основе режима четырехволнового взаимодействия в модах оптических световодов [92,312,315,337–340]. В наших исследованиях [403] показано, что векторное четырехволновое взаимодействие (ЧВВ) лазерных импульсов в сильно двулучепреломляющем высоконелинейном оптическом волокне может быть источником широкополосного многомерного перепутывания в непрерывных переменных с тонко настраиваемой энтропией и чистотой.

В результате ЧВВ на выходе из волокна генерируется запутанное широкополосное состояние, которое может быть представлено как

$$|\Psi\rangle = \kappa \iint F(\omega_1, \omega_2) \hat{a}_{j_1}^\dagger(\omega_1) \hat{a}_{j_2}^\dagger(\omega_2) |0\rangle_{j_1} |0\rangle_{j_2} d\omega_1 d\omega_2, \quad (5.13)$$

где  $F(\omega_1, \omega_2)$  – функция совместной спектральной амплитуды (ССА), а  $\hat{a}_{j_1}^\dagger(\omega)$  и  $\hat{a}_{j_2}^\dagger(\omega)$  – операторы рождения фотонов с центральной частотой  $\omega$  в поляризационных модах  $j_1$  и  $j_2$

соответственно. Для процесса ЧВВ  $\omega_{p_1} + \omega_{p_2} = \omega_s + \omega_i$  при накачке со спектральными амплитудами  $\alpha_1(\omega)$  и  $\alpha_2(\omega)$  функция ССА задаётся как

$$F(\omega_s, \omega_i) = \int \alpha_1(\omega') \alpha_2(\omega_s + \omega_i - \omega') \Phi(\omega', \omega_s, \omega_i) d\omega', \quad (5.14)$$

где

$$\Phi(\omega', \omega_s, \omega_i) = \text{sinc} \left[ \Delta\beta(\omega', \omega_s, \omega_i) \frac{L}{2} \right] \exp \left[ i\Delta\beta(\omega', \omega_s, \omega_i) \frac{L}{2} \right] \quad (5.15)$$

это функция фазового согласования, а  $L$  – длина нелинейной среды и

$$\Delta\beta(\omega', \omega_s, \omega_i) = \beta(\omega') + \beta(\omega_s + \omega_i - \omega') - \beta(\omega_s) - \beta(\omega_i) - \gamma_1 P_1 - \gamma_2 P_2 \quad (5.16)$$

– расстройка постоянных распространения  $\beta(\omega)$  для полей, участвующих в процессе ЧВВ,  $\gamma_1$  и  $\gamma_2$  – соответствующие нелинейными коэффициенты, а  $P_1$  и  $P_2$  – пиковые мощности накачки. В общем случае функция ССА не разлагается на множители как произведение функций от  $\omega_1$  и  $\omega_2$ . Разложение Шмидта позволяет представить функцию  $|\Psi\rangle$  в виде бесконечной суммы факторизованных слагаемых:

$$F(\omega_1, \omega_2) = \sum_n \sqrt{\lambda_n} \psi_n(\omega_1) \varphi_n(\omega_2), \quad (5.17)$$

где  $\lambda_n$ ,  $\psi_n(\omega)$  и  $\varphi_n(\omega)$  находятся как собственные значения и собственные функции интегральных уравнений, задающих состояние системы. Коэффициенты Шмидта  $\lambda_n$  позволяют дать количественную оценку запутанности в терминах энтропии  $S = -\sum_n \lambda_n \log_2 \lambda_n$ . Параметр Шмидта, определяемый как  $K = 1/\sum_n \lambda_n^2$ , показывает размерность гильбертова пространства (или число бифотонных мод), необходимую для описания запутанности состояния с чистотой, количественно определяемой как  $p = 1/K$ .

Наш анализ [403] демонстрирует, что широкополосной фотонной парой, генерируемой в процессе ЧВВ, можно управлять, изменяя длину волны накачки и геометрию поляризации, создавая при этом как высокочистые низкоразмерные состояния, так и высокоэнтропийные запутанные состояния в пространстве очень высокой размерности. В параграфе 2.3 (рис.2.3.4) были представлены карты фазового согласования (длины когерентности  $l_c = \pi/|\Delta\beta|$ ), рассчитанные как функции длин волн накачки, сигнальных и холостых фотонов, для пяти различных геометрий поляризации процесса ЧВВ. Для анализа состояний бифотонов, рождаемых в процессе векторного ЧВВ в ФК волокне численно решались интегральные уравнения, описывающие состояния двухфотонного поля для пяти поляризационных конфигураций. Оба поля накачки в расчетах представлялись в виде спектрально ограниченных импульсов длительностью 300 фс с гауссовским спектральным профилем  $\alpha_1(\omega) = \alpha_2(\omega) = \alpha_0 \exp[-(\omega - \omega_p)^2/\sigma^2]$  и переменной центральной частотой  $\omega_p = \omega_{p1} = \omega_{p2}$ . Расчеты проводились для волокна с параметрами  $\gamma = 100 \text{ Вт}^{-1}\text{км}^{-1}$ ,  $\delta n$  варьировалось в диапазоне от  $10^{-4}$  до  $10^{-3}$  и профилем дисперсии групповых скоростей

(ДГС) с нулем при  $\lambda \approx 740$  нм. Этот набор параметров соответствует фотонно-кристаллическому волокну длиной  $L = 40$  см с радиусом сердцевинки около 1,45 мкм и гексагональной решеткой в оболочке с коэффициентом заполнения воздухом  $\approx 0,36$ . Пиковая мощность лазера  $P_1 = P_2 = P = 50$  Вт. На рис.5.8.6 представлены функции ССА и коэффициенты Шмидта, а на рис. 5.8.7 энтропия запутывания и чистота состояний, рассчитанные для фотонной пары на выходе из волокна в различных поляризационных модах.

Рассмотрим сначала конфигурацию полей  $sf$ - $fs$ . При центральной длине волны накачки  $\lambda_p = 800$  нм наблюдается почти горизонтальная полоса в центре карты ССА [рис.5.8.6a'(a)], соответствующая  $\approx 98\%$  вероятности генерации фотонной пары. Поскольку практически вся ширина  $\Delta\omega_s \approx 35$  ТГц в пределах этого центрального лепестка карты ССА соответствует одной спектральной моде  $\psi_1(\omega)$ , на выходе из волокна в подавляющем большинстве преобладают бифотоны с факторизируемой волновой функцией  $|\Psi\rangle$ . Результаты разложения Шмидта, представленные на рис. 5.8.6a'd, показывают, что структура центрального лепестка на карте ССА на рис. 5.8.6a'(a) действительно может быть точно аппроксимирована как произведение двух спектральных мод  $\psi_1(\omega)$  и  $\phi_1(\omega)$ . Эта пара мод входит в разложение Шмидта (6.7) с весовым коэффициентом  $\sqrt{\lambda_1} \approx 0,99$ . Отметим, что второй по величине коэффициент  $\lambda_2$  в этом разложении почти на два порядка меньше, чем  $\lambda_1$  [рис. 5.8.6a'(d)]. Эффективная размерность гильбертова пространства, необходимая для описания запутанности такого двухфотонного состояния, составляет  $K \approx 1,04$ . Чистота фотонной пары в этом режиме составляет  $p \approx 0,96$ , энтропия запутанности  $S \approx 0,15$  [рис. 5.8.7(d)]. Это обстоятельство является важным, поскольку при довольно простой организации схемы эксперимента в векторном ЧВВ можно получить фотонные пары высокой чистоты при накачке на длине волны около 800 нм – центральной длине волны Ti:Sapphire лазерных источников.

На других длинах волн в процессе  $sf$  -  $fs$  ЧВВ генерируются состояния, структура спектральной запутанности которых может быть описана только в гильбертовом пространстве более высокой размерности. В частности, при  $\lambda_p = 850$  нм, центральный лепесток на карте ССА наклонен [рис. 5.8.6a'(b)], что указывает на положительную корреляцию между различными частотными компонентами ЧВВ. В этом случае двухфотонное состояние уже не сводится к одному члену в разложении (6.7), поскольку несколько произведений мод Шмидта в этом разложении имеют пренебрежимо малый  $\lambda_n$  [рис. 5.8.6a'(e)], внося заметный вклад в  $|\Psi\rangle$ . Таким образом, двухфотонное состояние, генерируемое на выходе волокна, больше не факторизуется, а определяется суперпозицией нескольких пар мод Шмидта. Эффективная размерность гильбертова пространства, необходимая для описания запутанности фотонной пары в этом случае, составляет  $K \approx 3,4$ . Чистота фотонной пары равна  $p \approx 0,29$ , а энтропия запутанности  $S \approx 1,9$ .

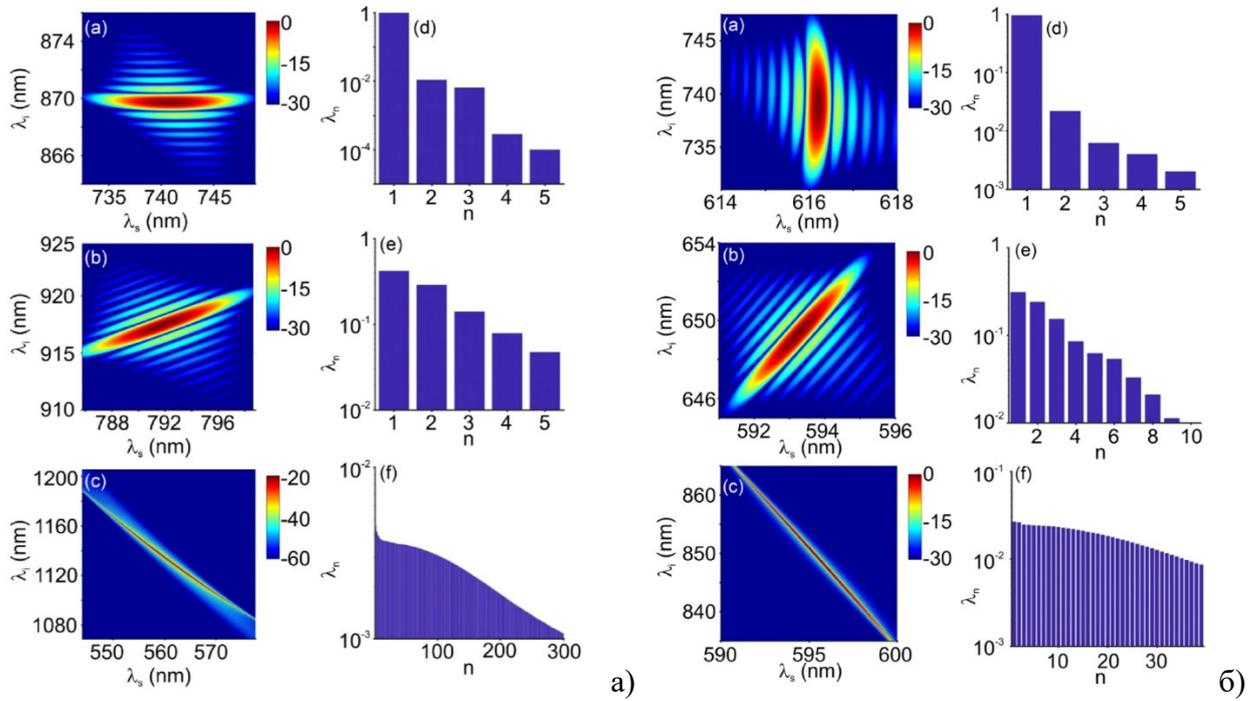


Рис.5.8.6 {a'}: (a)-(c) Совместная спектральная амплитуда  $F(\lambda_s, \lambda_i)$  для поляризационной геометрии  $sf - fs$  ЧВВ  $2\omega_p = \omega_s + \omega_i$ . (d)-(f) Коэффициенты Шмидта  $\lambda_n$  для двухфотонного состояния, генерируемого при накачке  $\lambda_p = 800$  нм (a), (d), 850 нм (b), (e) и 750 нм (c), (f). {б'}: (a)-(c) Совместная спектральная амплитуда  $F(\lambda_s, \lambda_i)$  для поляризационной геометрии  $sf - sf$  ЧВВ  $2\omega_p = \omega_s + \omega_i$ . (d)-(f) Коэффициенты Шмидта  $\lambda_n$  для двухфотонного состояния, генерируемого при накачке  $\lambda_p = 670$  нм (a), (d), 620 нм (b), (e) и 700 нм (c), (f).

Еще большее число мод Шмидта необходимо для описания запутанности при накачке  $\lambda_p = 750$  нм [рис. 5.8.6a'(c)]. В этом случае спектр  $\lambda_n$  простирается до очень больших  $n$  [рис. 5.8.6a'(f)], а двухфотонное состояние  $|\Psi\rangle$  является суперпозицией очень большого числа пар мод Шмидта. Эффективная размерность гильбертова пространства  $K > 400$ , корреляция между различными частотными составляющими поля отрицательна, чистота фотонной пары  $\rho \approx 0,002$ , а энтропия запутанности  $S \approx 6,5$ .

На рис. 5.8.6б' представлены аналогичные расчёты, выполненные для процесса  $sf - sf$  ЧВВ, в котором две кросс-поляризованные волны накачки с одинаковой центральной длиной волны и одинаковыми гауссовыми спектральными профилями создают сигнальные и холостые волны в быстрой и медленной модах соответственно [рис.1(e)]. Для этой поляризационной конфигурации двухфотонные состояния с наивысшей чистотой генерируются на длине волны накачки  $\approx 670$  нм. Центральный лепесток карты ССА в этом режиме вертикальный [рис. 5.8.6б'(a)] и точно (с погрешностью  $\approx 1,5\%$ ) аппроксимируется как произведение  $\psi_1(\omega)$  и  $\phi_1(\omega)$ . В двухфотонном состоянии, генерируемом в этом режиме, преобладает первый член в разложении (6.7), причём наибольшее собственное значение  $\lambda_1$  в  $\approx 60$  раз больше, чем второй по величине коэффициент  $\lambda_n$  [Рис. 5.8.6б'(d)]. Чистота фотонной пары теперь равна  $\rho \approx 0,93$ , эффективная размерность гильбертова пространства  $K \approx 1,06$ , а энтропия запутанности  $S \approx 0,26$  [рис. 5.8.7(f)].

Поскольку центральная длина волны кросс-поляризованной накачки отстраивается от этой длины волны, центральный лепесток на карте ССА становится наклонным [рис.

5.8.66'(b) и 5.8.66'(c)], что указывает на положительную [рис. 5.8.66'(b)] или отрицательную [рис. 5.8.66'(c)] частотную корреляцию. При длине волны накачки  $\lambda_p = 700$  нм [рис. 5.8.66'(c)], широкий спектр  $\lambda_n$  [рис. 5.8.66'(f)] указывает на очень высокую размерность гильбертова пространства,  $K > 70$ . Чистота этого состояния составляет всего лишь  $\rho \approx 0,01$ , а энтропия запутанности  $S \approx 4,0$ .

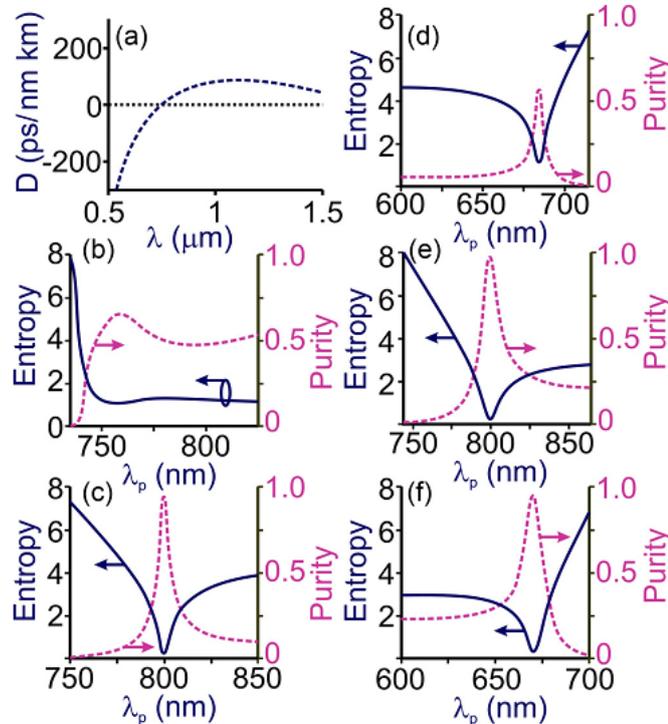


Рис.5.8.7. (a) ДГС волокна, используемая в расчётах. (b)-(f) Энтропия запутывания (синяя сплошная линия) и чистота двухфотонных состояний (розовая пунктирная линия) для различных геометрий поляризации в зависимости от длины волны накачки: (b) скалярное ЧВВ, (c)  $ff$ - $ss$ , (d)  $ss$ - $ff$ , (e)  $sf$ - $fs$  и (f)  $sf$ - $sf$ .

Среди других поляризационных геометрий, представляет интерес процесс  $ff$ - $ss$ , в котором обе волны накачки распространяются в быстрой моде, в то время как сигнальные и холостые генерируются в медленной [рис. 2.3.1(b)], что позволяет генерировать двухфотонные состояния высокой чистоты. При длине волны накачки  $\lambda_p = 800$  нм, этот ЧВВ-процесс обеспечивает двухфотонные состояния с чистотой  $\rho \approx 0,9$  [рис. 5.8.7(c)], что указывает на высокую степень факторизуемости фотонной пары. Проблема, однако, состоит в том, что в этой поляризационной геометрии сигнальные и холостые фотоны генерируются в одной и той же поляризационной моде [рис. 2.3.5(b)], что ограничивает возможности манипулирования состоянием с помощью поляризационной оптики по сравнению со схемами, использующими кросс-поляризованную накачку [ $sf$ - $fs$  и  $sf$ - $sf$  на рис. 2.3.5 (d) и 2.3.5 (e)]. В то время как спектральные карты функции ССА представляют мощный инструмент для визуализации структуры квантового запутывания в частотной области, разложение Шмидта во временной области, как показано ниже, описывает физическую картину того, как эта запутанная структура создается в результате нелинейной динамики импульсов классического поля.

В наших исследованиях [403] также было показано, что Фурье-преобразование и анализ мод Шмидта во временной области позволяет увидеть ясную физическую картину того, как запутанная структура двухфотонных состояний создаётся в результате нелинейной динамики коротких импульсов накачки, что раскрывает фундаментальное соотношение между квантовой и классической картинами генерации фотонных пар. Знание временного профиля импульсных мод, образующих двухфотонные состояния высокой чистоты, может быть полезным для формирования сверхкоротких фотонных волновых пакетов в задачах многофотонной спектроскопии и сверхразрешающей микроскопии с использованием квантовых состояний света.

В описанных выше экспериментах спектральные компоненты генерируемых фотонных пар в высоконелинейном фотонно-кристаллическом волокне NL-PM-750 отстроены относительно частоты накачки на 45 ТГц, что в сочетании с возможностью генерации холостых фотонов в ортогональной к накачке поляризационной моде дает возможность эффективного спектрального и поляризационного подавления рамановских шумов. Большой научный интерес также генерация бифотонов с еще большей спектральной отстройкой и полосой (сверхширокополосные бифотоны) [422–424]. Такие широкополосные бифотоны могут обеспечить более эффективное двухфотонное возбуждение и временную спектроскопию молекулярных систем при низком потоке фотонов по сравнению с традиционными лазерными источниками [425–427]. В квантово-оптической когерентной томографии сверхширокополосные бифотоны также могут использоваться для достижения субмикронного аксиального разрешения [428–430]. В работе [431] была продемонстрирована генерация бифотонов с использованием полых фотонно-кристаллических световодов с общей спектральной шириной 110 ТГц.

Нелинейные и дисперсионные свойства фотонно-кристаллического волокна NL-PM-750 позволяют значительно расширить диапазон свойств генерируемых фотонных пар. В нашей работе [432] сообщается об экспериментальной реализации яркого сверхширокополосного (180 ТГц) волоконного источника бифотонов с широко спектрально разделенными сигнальными и холостыми фотонами. Прежде всего, для увеличения ширины полосы как сигнальных, так и холостых фотонов необходимо обеспечить условие, при котором  $\Delta\beta$  имеет экстремум при изменении частоты накачки. Эксперименты проводились в совместной лаборатории в Казанском квантовом центре КНИИТУ-КАИ им. А.Н. Туполева. Если в предыдущих экспериментах мы были ограничены небольшой спектральной полосой перестройки Ti:Sapphire генератора в области 800 нм, то в данном случае имелась возможность более гибкого управления параметрами импульса – центральной длиной волны и спектральной шириной. Это дает возможность более полно использовать дисперсионные свойства фотонно-кристаллического волокна NL-PM-750, а именно наличием двух областей с нулями дисперсии групповых скоростей в области 750 и 1600 нм (рис. 5.8.9с). Карта фазового согласования на рис.5.8.9d имеет двудольный вид и принципиально она соответствует картам фазового согласования, представленным на рис. 2.3.6, которые были построены для ограниченного спектрального диапазона. Необходимо отметить, что карты фазового согласования очень чувствительны к параметрам накачки, нелинейным и дисперсионным свойствам используемых образцов волокон, поэтому

требуется аппроксимация проводимых расчетов к экспериментальным результатам. При использовании скалярного ЧВВ взаимодействия и длине волны накачки в области 750 нм, соответствующей нулю дисперсии групповых скоростей, возможна генерация пар фотонов со сверхширокой спектральной полосой с длиной волны сигнального 600 нм и холостого 1000 нм фотона (рис. 5.8.9а). Для достижения условий такого режима было необходимо точно настраивать мощность накачки, длину волны накачки  $\lambda_p$  в диапазоне 2 нм и его полуширину  $\Delta\lambda_p$ . В эксперименте мы добились наиболее широкого спектра при  $\lambda_p=750.7$  нм и ширине полосы накачки  $\Delta\lambda_p \approx 2$  нм ( $\sim 1$  ТГц). Суммарная ширина спектра (сигнальная и холостая полосы) за вычетом комбинационного рассеяния света вблизи накачки в этом случае может достигать  $\approx 180$  ТГц при высокой яркости источника и низком уровне оптических шумов в выходном пучке, вызванных комбинационным рассеянием света. Это подтверждается зависимостями  $g^{(2)}(0)$  и скорости генерации пар от мощности накачки (рис. 5.8.9б).

Рекордная спектральная ширина нашего бифотонного источника указывает на заманчивые перспективы его использования в квантовой когерентной оптической томографии, что позволит повысить аксиальное разрешение метода до субмикронного масштаба. Благодаря более высокой спектральной яркости продемонстрированный бифотонный источник обещает стать мощным инструментом в спектроскопии двухфотонного поглощения сложных молекулярных систем и биологических объектов, для которых характерны окна прозрачности в диапазонах частот около 600-900 и 1000-1400 нм. Выбрав подходящую конструкцию фотонно-кристаллического волновода, можно регулировать спектральные области генерации коррелированных фотонных пар от видимого диапазона до инфракрасного возможно осуществлять сверхбыструю фантомную спектроскопию в очень широком спектральном диапазоне.

Важной задачей для практического применения является перевод таких источников на оптическую платформу, обеспечивающую их компактность и масштабируемость, что, прежде всего, связано с использованием недорогих непрерывных источников в качестве накачки. В наших исследованиях [433] показано, что использование фотонно-кристаллического волокна NL-PM-750 позволяет уже при небольших мощностях непрерывной накачки диодного лазера в районе 800 нм добиться достаточно высокой скорости генерации бифотонов, значения которой сопоставимы со значениями при использовании фемтосекундных импульсов накачки. Достигнуть этого удастся благодаря малой эффективной площади мод волокна, а также его особым дисперсионным профилем, характеризуемым двумя длинами волн нулевой дисперсии в видимом и ближнем инфракрасном диапазоне. Данный дисперсионный профиль обеспечил фазовый синхронизм генерации бифотонов на несущих частотах в двух разных спектральных диапазонах – в видимом и телекоммуникационном. В первую очередь были измерены спектры сигнальных фотонов  $\lambda_s$ , генерируемых на выходе ФК волокна для обоих режимов накачки (импульсного и непрерывного). Их сравнение показывает, что в обоих режимах спектральная форма сигнальных фотонов практически не изменяется, за исключением небольшого уменьшения ширины спектральной полосы с  $\approx 1.0$  нм в импульсном режиме до  $\approx 0.8$  нм в непрерывном режиме. Так при длине волны накачки  $\lambda_p = 800$  нм и длине волны

сигнальных фотонов  $\lambda_p = 529$  нм, холостые фотоны будут находится вблизи длины волны  $\lambda_i = 1640$  нм.

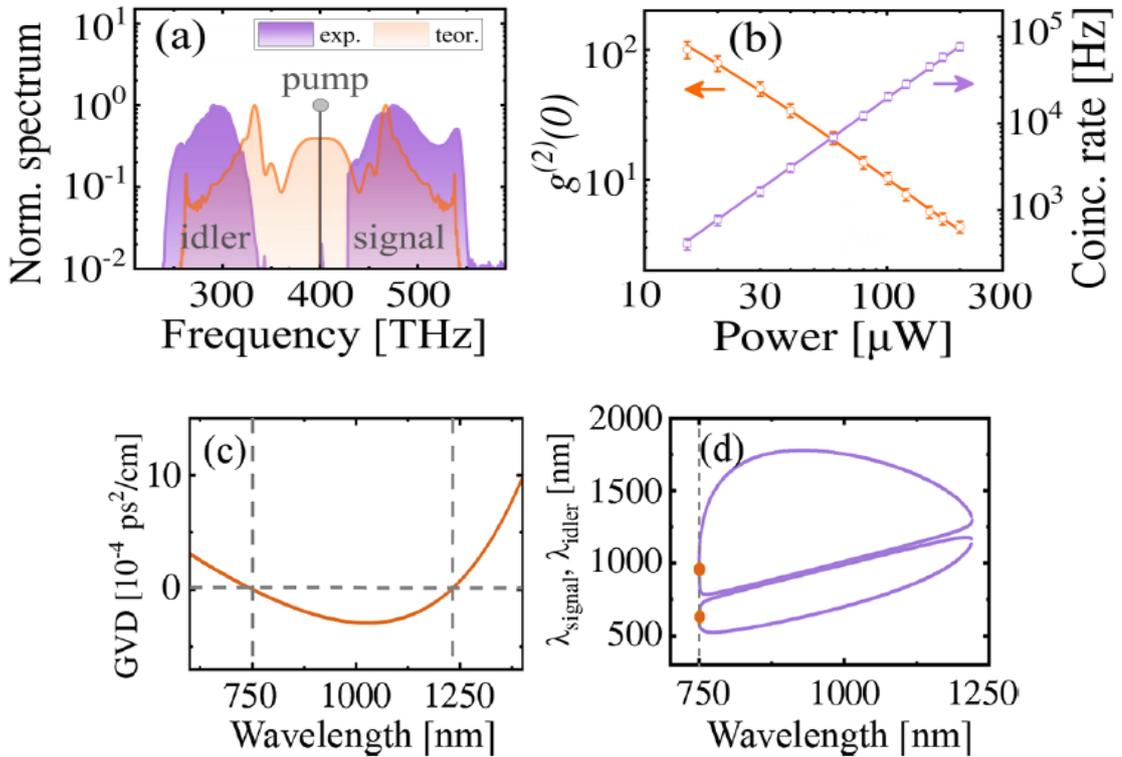


Рис.5.8.9. (а) Спектральные полосы формирования бифотонов (сигнальная и холостая): экспериментальный (фиолетовый) и расчетный (оранжевый) спектры. (б) Корреляционная функция второго порядка  $g^{(2)}(0)$  (левая ось, оранжевые кружки) и скорость генерации бифотонов (правая ось, фиолетовые кружки) в зависимости от мощности накачки. Сплошные линии описывают соответствующие аппроксимирующие функции. Дисперсия групповых скоростей (с) и расширенная карта фазового для спонтанного скалярного ЧВВ в фотонно-кристаллического волокна NL-PM-750 (d).

Далее были проведены измерения скоростей счёта фотонов выходного излучения для каждого режима возбуждения. Зависимость скоростей счета от мощности для сигнальных фотонов с хорошей точностью аппроксимируется функцией вида  $N_s(P) \propto P^2$ , что характерно для спонтанного ЧВВ процесса. В тоже время, при импульсной накачке зависимость для холостых фотонов аппроксимируется уже функцией с добавлением линейного члена, обусловленного шумовыми рамановскими фотонами в холостом канале, что уже обсуждалось ранее. Однако, в случае непрерывной накачки скорость счёта в холостом канале  $N_i$  описывается практически линейной зависимостью  $N_i \propto P_{cw}$ . Такая зависимость является идентификатором того, что в данном режиме основной вклад в выходном сигнале с холостого канала вносят шумовые фотоны. Увеличение шумового вклада можно связать с увеличением средней мощности непрерывной накачки, необходимой для получения регистрируемой в эксперименте генерации фотонных пар.

Чтобы охарактеризовать производительность и эффективность нашего источника, мы исследовали скорости счета совпадений фотонных пар и значения корреляционной

функции второго порядка  $g^{(2)}(0)$  в зависимости от усреднённой мощности импульсной фемтосекундной накачки и непрерывной диодной накачки (рис. 5.8.10).

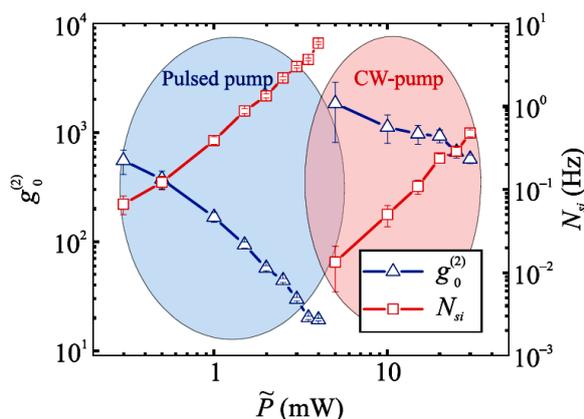


Рис.5.8.10. Скорости счета совпадений фотонных пар и значения корреляционной функции второго порядка  $g^{(2)}(0)$  в зависимости от усреднённой мощности импульсной фемтосекундной накачки ( $P_{cp} \leq 4$  мВт) и непрерывной диодной накачки ( $P_{cp} \geq 5$  мВт).

Максимальное значение  $g^{(2)}(0) = 550$  достигается при средней мощности накачки всего 0.3 мВт, при этом пиковая мощность в импульсе накачки составляет  $\sim 8$  Вт. Отметим, что при этом скорость генерации фотонных пар на выходе из волокна значительно превосходит скорость зарегистрированных совпадений в эксперименте  $N_{si}$ , что определяется в данной схеме измерений большим количеством потерь, с учетом которых можно говорить, что при максимальном значении скорости совпадений в импульсном режиме  $N_{si} = 5$  Гц ( $g^{(2)}(0) = 20$ ), скорость генерации на выходе из волокна соответствует  $\approx 4$  МГц. В случае непрерывной накачки корреляционная функция вычислялась с учетом временного разрешения регистрирующей аппаратуры в сигнальном и холостом каналах. Максимальное значение  $g^{(2)}(0) \approx 2000$  достигается при мощности непрерывной накачки всего 5 мВт (рис.5.8.10), что сравнимо с результатами полученными при непрерывной накачке волокна с подвесной сердцевинной с использованием сверхпроводящих детекторов [434]. Максимальное значение скорости совпадений в непрерывном режиме достигает  $N_{si} = 0.4$  Гц ( $g^{(2)}(0) = 560$ ), что с учетом оценки эффективности системы регистрации позволяет оценить максимальное значение яркости источника  $\sim 0.3$  МГц.

Таким образом, была продемонстрирована генерация междиазонных (в видимой и инфракрасной области) бифотонов с использованием фотонно-кристаллического волокна с непрерывной накачкой. Использование высоконелинейного фотонно-кристаллического волокна NL-PM-750 обеспечило генерацию фотонных пар в видимом и телекоммуникационном диапазонах на длинах волн вблизи 0.5 и 1.6 мкм. При этом за счет небольшого сдвига длины волны излучения накачки  $\lambda_p$  можно добиться точного попадания длины волны холостого фотона в стандартный телекоммуникационный диапазон вблизи 1.55  $\mu\text{m}$ . Последнее обстоятельство представляет высокий интерес для создания малогабаритных интегральных источников коррелированных фотонных пар.

Подводя итоги настоящего раздела, можно отметить, что была создана установка, позволяющая получать высококонтрастные фотонные пары, используя векторное

четырёхволновое взаимодействие в фотонно-кристаллическом волокне с кубической нелинейностью. Детально исследовано векторное четырехволновое взаимодействие, обеспечивающее новые режимы генерации коррелированных фотонных пар. Благодаря преимуществам, обеспечиваемым векторным характером четырехволнового взаимодействия, реализован яркий (более  $10^6$  пар в секунду) источник коррелированных фотонных пар с эффективным спектральным и поляризационным подавлением рамановского шума. Мы показали, что векторное четырехволновое взаимодействие (ЧВВ) ультракоротких лазерных импульсов в сильно двулучепреломляющем, высоконелинейном оптическом волокне может быть источником широкополосного многомерного перепутывания в непрерывных переменных с тонко настраиваемой энтропией и чистотой. Мы продемонстрировали, что состоянием фотонных пар такого векторного ЧВВ можно управлять, изменяя длину волны накачки и геометрию поляризации, создавая при этом как высокочистые низкоразмерные запутанные состояния, так и высокоэнтропийные запутанные состояния в пространстве очень высокой размерности.

### **§5.9. Квантовая спектроскопия поглощения с использованием спектрально-коррелированных фотонных пар, генерируемых в фотонно-кристаллическом волокне**

Высокое спектральное, временное и пространственное разрешение современных спектроскопических методов обеспечивает получение информации о беспрецедентно широком диапазоне физических, химических, биологических свойств различных объектов, что делает спектроскопию наиболее распространённым и развитым методом современных физических измерений. Реализации различных методов линейной и нелинейной спектроскопии обычно предполагают использование классических источников света, к которым в данном контексте можно отнести и лазеры. Использование неклассических (квантовых) источников излучения открывает перспективы для развития новых квантовых спектроскопических методов и подходов за счёт управления параметрами квантового состояния света и особенностей фотонной статистики. В настоящее время большинство методов линейной и нелинейной квантовой спектроскопии предполагает использование бифотонов и их свойств частотной антикорреляции.

Простейшая схема линейной квантовой спектроскопии на основе спектрально перестраиваемых бифотонов предполагает наличие двух плеч, в одном из которых происходит взаимодействие сигнального/холостого пучка фотонов с исследуемым объектом, а в другом осуществляется спектральный анализ холостого/сигнального пучка. Такую методику часто называют "фантомной" квантовой спектроскопией [435]. Обычно выделяют три основных преимущества такого подхода: (а) спектральные диапазоны поглощения образца и анализируемого сигнала могут сильно отличаться; (б) возможность значительного дистанционного разнесения плеч, где происходит взаимодействие с образцом и измерение спектральных характеристик бифотонов; (в) возможность

значительного увеличения соотношения сигнал/шум, например, когда измерения проводятся в инфракрасном диапазоне.

Неклассические свойства фотонных пар также дают неожиданные преимущества в методах нелинейной спектроскопии, например, сечение двухфотонного поглощения спектрально-запутанных пар линейно (а не квадратично) зависит от интенсивности падающего света [436]. Это обстоятельство позволяет рассчитывать на преимущество использования очень слабых потоков фотонов, что практически исключает возможность фотоповреждения образцов, что особенно важно при работе с биологическими объектами. Спонтанное параметрическое рассеяние (СПР) обеспечивает ключевое требование к используемым в квантовой спектроскопии неклассическим состояниям света, а именно, широкий спектр бифотонных пар. Это позволяет проводить измерения в разных спектральных диапазонах в квантовой спектроскопии линейного поглощения, а в случае реализации нелинейных методик, например, например при двухфотонном поглощении, определяет временную коррелированность, необходимую для реализации линейного по интенсивности режима. Как было показано в предыдущих разделах, микроструктурированные (фотонно-кристаллические) волокна, являются удобным ярким источником бифотонов, получаемых в процессе ЧВВ. Их специфические линейные, нелинейные и дисперсионные свойства позволяют генерировать как факторизуемые, необходимые для создания одиночных провозглашённых фотонов в чистом состоянии, так и широкополосные сильно антикоррелированные по спектру фотонные пары, обеспечивающие малое время запутанности. В настоящем параграфе будут представлены результаты работ по квантовой спектроскопии линейного поглощения с использованием частотно-коррелированных фотонных пар, получаемых в фотонно-кристаллическом волокне по описанной в параграфе 5.8 методике.

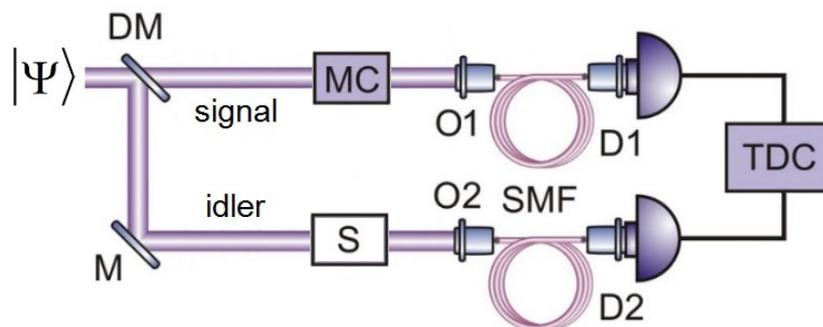


Рис. 5.9.1. Схема квантовой спектроскопии линейного поглощения. DM – дихроическое зеркало, M – зеркало, MC – монохроматор, S – исследуемый образец, O – объективы, SMF – одномодовые волокна, D – однофотонные детекторы, TDC – время-цифровой преобразователь.

Принципиальная оптическая схема квантового спектрометра представлена на рис. 5.9.1. Генерируемое в ФК волокне в процессе ЧВВ частотно-коррелированное бифотонное состояние  $|\Psi\rangle$  поступает в модифицированную оптическую схему Брауна-Твисса. Дихроичное зеркало разделяет исходный пучок на два плеча – сигнальные фотоны направляются в монохроматор, а холостые проходят через исследуемый образец для анализа его спектра поглощения. Для регистрации оптических сигналов и их анализа используются однофотонные детекторы и схема совпадений.

Регистрация коррелированных фотонных пар может быть выражена через скорость совпадений отсчётов на детекторах D1 и D2 [58]:

$$R_c \propto \frac{1}{T} \int_0^T \int_0^T dt_1 dt_2 G^{(2)}(t_1, t_2), \quad (5.18)$$

где  $G^{(2)}(t_1, t_2)$  – корреляционная функция Глаубера второго порядка, а  $T$  – временное окно схемы совпадений.  $G^{(2)}(t_1, t_2)$  можно определить следующим образом:

$$G^{(2)}(t_1, t_2) = \langle \Psi | \hat{E}_1^{(-)}(t_1) \hat{E}_2^{(-)}(t_2) \hat{E}_2^{(+)}(t_2) \hat{E}_1^{(+)}(t_1) | \Psi \rangle = \left| \langle 0 | \hat{E}_2^{(+)}(t_2) \hat{E}_1^{(+)}(t_1) | \Psi \rangle \right|^2. \quad (5.19)$$

В месте расположения детекторов состояние поля в моменты времени  $t_1$  и  $t_2$  выражается через положительно-частотные операторы, включающие спектральные функции исследуемого образца и монохроматора:

$$\hat{E}_1^{(+)}(t_1) = \int_0^\infty \hat{a}_i(\omega) f(\omega) e^{-i\omega t_1} d\omega, \quad (5.20)$$

$$\hat{E}_2^{(+)}(t_2) = \int_0^\infty \hat{a}_s(\omega) A(\omega - \omega_M) e^{-i\omega t_2} d\omega, \quad (5.21)$$

где  $\hat{a}_s(\omega)$  и  $\hat{a}_i(\omega)$  – операторы уничтожения для фотонов на сигнальных и холостых частотах, а  $A(\omega - \omega_M)$  – аппаратная функция монохроматора с центром на частоте  $\omega_M$ . Используя выражения (5.18-5.21) и выражение (5.13) для смешанного состояния  $|\Psi\rangle$ , а также предполагая, что аппаратная функция монохроматора достаточно узкая и окно схемы совпадений намного больше, чем обратная ширина полос сигнальных и холостых фотонов, можно выразить скорость регистрации совпадений при наличии исследуемого образца в холостом канале как [44]:

$$R_c^{sample} \propto |F(\omega_i) f(2\omega_p - \omega_M)|^2, \quad (5.22)$$

где  $F(\omega_i)$  – сечение совместной спектральной амплитуды  $F(\omega_i, \omega_s)$  для холостого фотона. Величина этой скорости пропорциональной квадрату модуля спектральной функции поглощения образца  $f(\omega)$ , обращённой относительно удвоенной частоты накачки. При этом учитывая, что в общем случае функция  $F(\omega_i)$  может достаточно сильно изменяться в пределах  $f(\omega)$ , для адекватного отображения исследуемого спектра поглощения необходимо выполнить нормировку скорости совпадений с образцом на соответствующую зависимость без образца:

$$R_c^{sample} / R_c = |f(2\omega_p - \omega_M)|^2. \quad (5.23)$$

При изменении длины волны накачки волокна для перестройки частоты холостых и сигнальных фотонов также необходимо использовать подобную нормировку для обеспечения "сшивки" различных областей измеряемого спектра. Спектральные

разрешение метода определяется шириной спектра накачки и спектральным разрешением самого спектрального прибора (монохроматора). Интересно сравнить отношение сигнал/шум для квантовой и классической схем спектроскопии поглощения. В первом случае уровень регистрируемых совпадений  $R$  складывается из сигнала совпадений фотонных пар  $R_{pairs}$  и некоррелированного шума  $R_{noise}$ :

$$R = R_{pairs} + R_{noise}. \quad (5.24)$$

При условии отсутствие потерь число регистрируемых фотонных пар задается числом двухфотонных пакетов  $S$  и квантовыми эффективностями детекторов:

$$R_{pairs} = \eta_s \eta_i S. \quad (5.25)$$

Источник паразитных совпадений связан как с «внешним» шумом  $N$ , так и с влиянием одного из фотонов коррелированной пары:

$$R_{noise} = (N_s N_i + \eta_s S N_i + \eta_i S N_s) T. \quad (5.26)$$

Малая величина временного окна схемы совпадений  $T$  (десятки или даже несколько сотен пикосекунд) обеспечивает сильное подавление числа шумовых совпадений по сравнению с сигналом фотонных пар  $R_{noise} \ll R_{pairs}$  и возможность реализации квантовой спектроскопии поглощения даже в условиях сильного зашумления  $N \gg S$ . Сравнивая отношения сигнал/шум для случаев реализации квантовой ( $SNR_q = \eta_s \eta_i S / N_s N_i T$ ) и классической ( $SNR_c = \eta S / N$ ) спектроскопии  $SNR_q / SNR_c = \eta / NT$ , можно легко видеть, что преимущество первой достигается при использовании детекторов с высокой квантовой эффективностью и низким уровнем темновых отсчётов, а также схемы совпадений с малым временным окном.

Нами была экспериментально реализована схема квантовой спектроскопии линейного поглощения с использованием частотно-коррелированных фотонных пар, генерируемых в фотонно-кристаллическом волокне [437,438]. Согласно описанной ранее методике, накачка ФК волокна осуществляется перестраиваемыми импульсами в диапазоне 790-825 нм с шириной спектра порядка 3 нм. Спектрально коррелированные фотонные пары генерируются в процессе векторного ЧВВ II типа, что обеспечивает перестройку холостых фотонов в области 905-925 нм, а сигнальных в 695-755 нм.

Узкополосный notch-фильтр NF808-34 блокирует излучение накачки (его характеристиками в данном случае и определяется область перестройки), а сигнальные и холостые фотоны разделяются на дихроическом зеркале DM и направляются на монохроматор и исследуемый образец  $S$  соответственно. Регистрация осуществляется с помощью кремниевых лавинных фотодетекторов COUNT-T с высокой квантовой эффективностью (~ 60% на 700 нм и 900 нм).

При сканировании длины волны сигнального канала монохроматором, схема позволяет исследовать его спектр в режиме счёта одиночных фотонов. Поскольку

монохроматор уменьшает мощность излучения более чем на 2 порядка, было необходимо регистрировать отсчеты в течение достаточно длительного времени. Для проверки работоспособности системы и в качестве первого тестового образца  $S$  использовался узкополосный интерференционный фильтр FB920-10 расположенный под углом  $17^\circ$  к оси для подгонки его спектра пропускания под исследуемый спектральный диапазон. Для полного охвата исследуемого спектрального диапазона образца достаточно двух значений длин волн накачки волокна 795 нм и 805 нм. На рис. 5.9.2 показаны спектры совпадений фотоотсчетов для этих двух волн накачки, инвертированные относительно удвоенной частоты накачки.

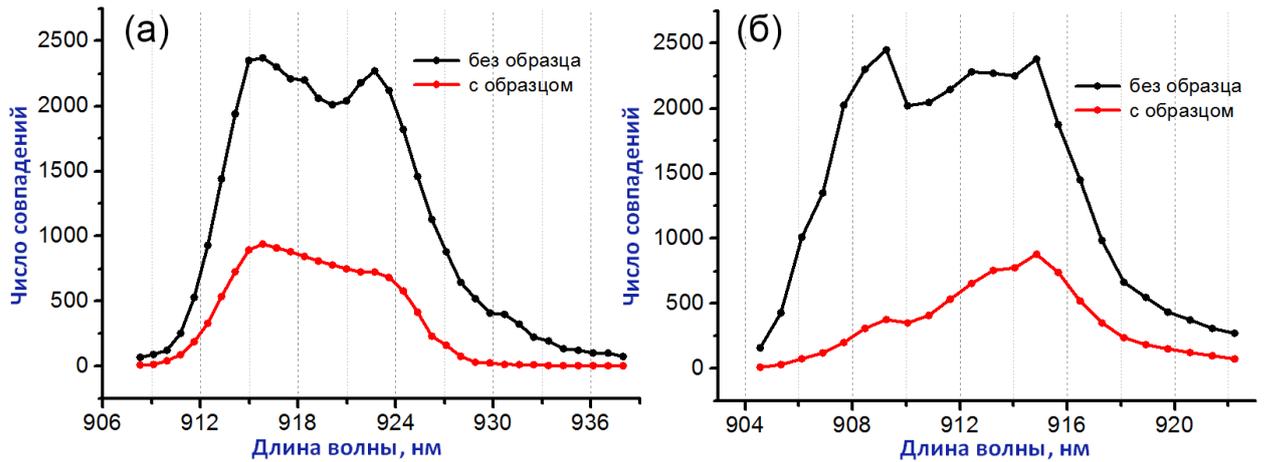


Рис. 5.9.2. Число зарегистрированных совпадений без образца (чёрный) и с образцом (красный). Время накопления 90 секунд. Длина волны накачки (а) 795 нм, (б) 805 нм.

Немонотонность числа отсчётов в центральных областях пика совпадений (даже в отсутствие исследуемого образца в холостом канале) связана со структурой совместного спектрального распределения фотонной пары  $F(\omega_i, \omega_s)$ . Поскольку, согласно (36), производится нормировка на число совпадений без образца, тот факт, что функция  $F$  не является плоской, не влияет на разрешение метода. В центральных областях графиков 5.9.2 зарегистрировано количество совпадений, достаточное для расчёта искомого спектра с приемлемым стандартным отклонением (относительная ошибка растёт с уменьшением числа совпадений  $\delta_f \propto 1/R_c$ , см. рис. 5.9.3). Кроме того, на каждой длине волны за время экспозиции (90 секунд) регистрируется около 100 некоррелированных совпадений в соседних импульсах (они подчинены пуассоновской статистике и должны вычитаться из числа совпадений в пределах одного импульса накачки).

Для проверки достоверности результатов необходимо провести сравнение измеренной  $f(\omega)$  со спектром, полученным классическим методом. На рис. 5.9.3а красной линией показан спектр пропускания фильтра FB920-10, измеренный с использованием классического источника света. Точками изображен нормированный спектр пропускания, полученный с помощью регистрации совпадений частотно-коррелированных фотонных пар согласно (36). Схема измерений может быть легко обратима относительно функциональности каналов в схеме Брауна-Твисса: холостые ИК-фотоны направляются на сканирующий монохроматор, а сигнальные фотоны – на другой тестовый образец

узкополосный интерференционный фильтр FB730-10 (рис.5.9.3б). Заметим, что использование во втором случае более светосильного монохроматора M522 в холостом канале позволило более чем на порядок увеличить скорость счета совпадений на детекторах, и, следовательно, значительно уменьшить ошибку, связанную с наличием некоррелированных шумовых фотонов.

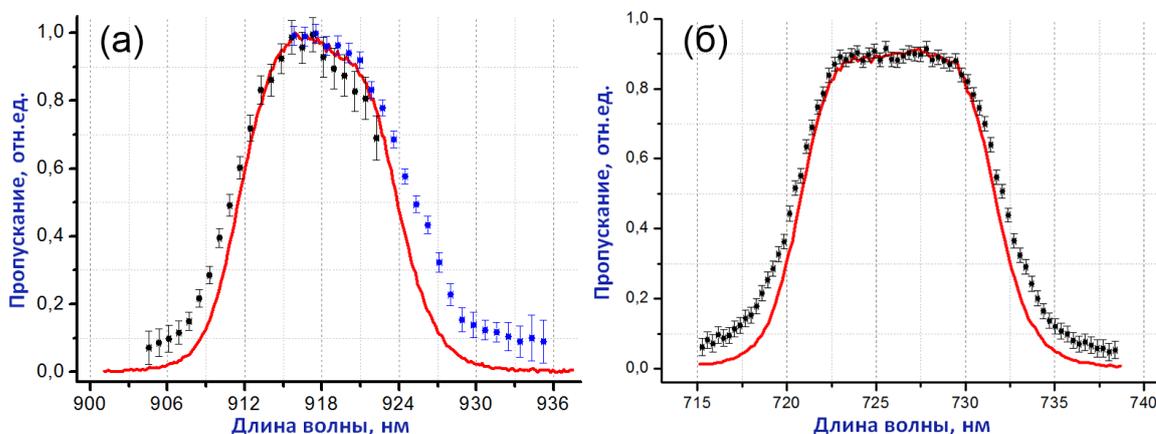


Рис. 5.9.3. (а) Спектр пропускания фильтра FB920-10 под углом падения  $17^\circ$ , измеренный классически (красный) и с помощью частотно-коррелированных фотонных пар при накачке 805 нм (чёрный) и 795 нм (синий). (б) Спектр пропускания фильтра FB730-10 под углом падения  $18^\circ$ , измеренный классически (красный) и с помощью частотно-коррелированных фотонных пар (чёрный).

Тот факт, что спектры, измеренные с помощью частотно-коррелированных фотонных пар, оказываются несколько уширенными относительно классических (рис. 5.9.3), связан с использованием импульсной накачки, поскольку снижается точность пересчета сопряженных длин волн фотонной пары. Эта особенность является, пожалуй, единственным недостатком метода. Тем не менее, при исследовании достаточно широких спектров (например, биологических образцов) в широком спектральном диапазоне при низком фотоповреждении может быть достигнуто достаточно высокое разрешение.

После проведения тестовых измерений с интерференционными фильтрами, вторая конфигурация схемы была использована для исследования спектра поглощения органического красителя на основе тетра-третбутил-фталоцианина в ацетоне в диапазоне 690-740 нм при непосредственном сканировании светосильным монохроматором M522 в сопряженном холостом канале на длинах волн 905-920 нм. Для защиты сигнального детектора в соответствующий канал перед образцом был помещен коротковолновый фильтр SP750. Измеренный спектр представлен на рис. 5.9.4.

Для увеличения разрешения спектральная ширина импульса накачки была дополнительно уменьшена до 2 нм на этапе фильтрации на щели. Время накопления увеличено до 120 секунд. Сравнение измеренного спектра с полученным при использовании классического источника света является критерием достоверности результата. Отметим, что более высокий по сравнению с классическим уровень ошибок объясняется относительно небольшим временем накопления. При его увеличении уровень ошибок может быть значительно снижен. В условиях же сильного зашумления, исходя из

вышеприведенной оценки соотношения чувствительностей и, с учетом параметров используемых детекторов, соотношение сигнал/шум для фантомной спектроскопии может превосходить классическое соотношение на порядки.

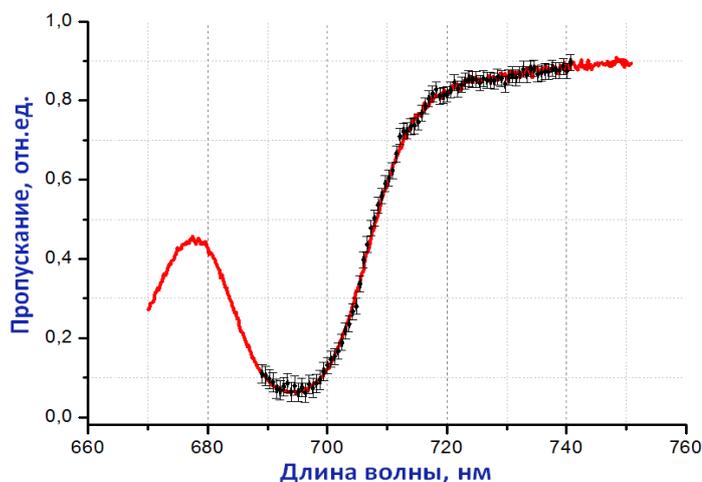


Рис. 5.9.4. Спектр пропускания раствора тетра-третбутил-фталоцианина в ацетоне, измеренный классически (красный) и с использованием частотно-коррелированных фотонных пар (черный).

Таким образом, экспериментально реализован метод линейной квантовой спектроскопии с использованием частотно-коррелированных фотонных пар, полученных в сильно невырожденном процессе четырехфотонного смешения в двулучепреломляющем ФК волокне NL-PM-750. Возможность гибкого управления состоянием света, генерируемого в волокне, позволяет формировать сильно отстроенные фотонные пары, поэтому спектральный диапазон, в котором работает монохроматор и проводятся прямые измерения, может значительно отличаться от исследуемого спектра, что исключает влияние паразитных сигналов. Измерены спектры пропускания тестовых образцов (узкополосных интерференционных фильтров) и раствора органического красителя на основе тетра-третбутил-фталоцианина в диапазоне 690-740 нм при непосредственном сканировании в сопряженном канале на длинах волн 905-920 нм. Исследуемый метод обладает высокой устойчивостью к фоновому излучению и может быть использован с низкими потоками фотонов, что исключает фотоповреждение светочувствительных, например, биологических образцов.

Таким образом, в наших исследованиях продемонстрирована универсальная волоконно-оптическая платформа для генерации управляемых квантовых состояний света, основанный на процессе спонтанного четырехволнового взаимодействия (ЧВВ) в специальных типах фотонно-кристаллических волокон. Особенности дисперсионных свойств двулучепреломляющих, высоконелинейных фотонно-кристаллических световодов обеспечивают различные режимы генерации квантовых состояний света в результате векторного спонтанного четырехволнового взаимодействия фемтосекундных лазерных импульсов. Высокая яркость продемонстрированного источника (порядка  $10^5$  Гц/мВт), возможность обеспечения режима генерации провозглашенных одиночных фотонов и контроля степени квантовой запутанности фотонных пар, наличие условий для

использования непрерывных дешевых и технологичных источников обеспечивает хороший потенциал использования этих источников для различных протоколов, связанных с квантовыми вычислениями, криптографией или другими приложениями квантовой оптики, что, в частности, было продемонстрировано в экспериментах по квантовой (фантомной) спектроскопии поглощения.

Подводя итоги настоящей главы, можно сказать, что в ней продемонстрированы практические применения микроструктурированных (фотонно-кристаллических) волокон в различных областях современной оптики. Во-первых, было показано значительное увеличение эффективности когерентного антистоксова рассеяния (КАРС) в волноводных модах полых фотонно-кристаллических световодов, что может значительно повысить эффективность методик газового анализа. Во-вторых, продемонстрировано использование перестраиваемых импульсов, формируемых в микроструктурированных световодах с твердотельной сердцевиной, для целей нелинейно-оптической сканирующей микроспектроскопии объектов различной природы. В-третьих, показано, что на основе высоконелинейных двулучепреломляющих световодов может быть реализована удобная платформа для различных приложений квантовой оптики. Более подробно основные результаты диссертационной работы изложены в заключительном разделе.

## **Заключение. Основные результаты.**

Исследования, представленные в диссертационной работе, позволили достичь прогресса в понимании физических механизмов нелинейно-оптического преобразования при распространении импульсов в микроструктурированных волноводах. Можно выделить ряд существенных результатов диссертационной работы.

- Использование генерируемых в хром-форстеритовом лазере с удлиненным резонатором (частота повторения порядка 20 МГц, центральная длина 1.25 мкм) наноджоулевых фемтосекундных импульсов для накачки микроструктурированных кварцевых световодов со сплошной твердотельной сердцевиной диаметром порядка 5 мкм обеспечивает их эффективное спектральное преобразование в режиме солитонного самосдвига частоты (ССЧ). Получена широкополосная перестройка солитонных импульсов с энергией до 3 нДж в диапазоне от 1300 до 1800 нм. Их длительность имеет характерные значения 60-70 фс, что соответствует пиковым мощностям до 100 кВт. Численный анализ указывает на возможность генерации перестраиваемых солитонов с субмегаваттными уровнями пиковых мощностей.

- На основе аналогичной схемы преобразования импульсов накачки хром-форстеритового генератора в микроструктурированных волокнах с увеличенной сердцевиной показано, что сдвинутые по длине волны солитоны, генерируемые в процессе солитонного самосдвига частоты, образуют интерференционные полосы высокой видности. Это свидетельствует об их гладком спектральном профиле и позволяет реализовать методику синтеза предельно коротких импульсов с длительностью в несколько циклов поля.

- Продемонстрированы особенности спектрального уширения фемтосекундных импульсов с центральной длиной волны 1.14 мкм в режиме нормальной дисперсии в полностью твердотельном микроструктурированном световоде с большой площадью моды. Спектральные и фазовые особенности уширенных импульсов, обладающих пиковой мощностью 3 МВт, позволили осуществить его временную компрессию до длительности порядка 20 фс с пиковой мощностью 20 МВт.

- Экспериментально продемонстрирована возможность спектральной компрессии фемтосекундных импульсов накачки Cr:forsterite лазера при их распространении в микроструктурированных световодах одновременно со спектральным сдвигом в длинноволновую область в процессе солитонного самосдвига частоты. Подбор длины волокна и начального chirpa импульса накачки позволяет эффективно управлять величиной его спектральной компрессии, достигающей, как было показано в экспериментах, 6.5 раз и ограниченной условиями перекачки энергии с крыльев импульса в его центральную спектральную область.

- При использовании микроструктурированных световодов, изготовленных из стекол с высокой нелинейностью с элементами наноструктурирования сердцевины, с оптической

накачкой от неусиленных импульсов Cr:forsterite генератора продемонстрирована генерация перестраиваемого излучения в видимой области спектра (400 – 1000 нм). Высокое значение коэффициента нелинейности и дисперсионные свойства волокон обеспечивают спектральную трансформацию в процессе солитонного самосдвига частоты, генерации суперконтинуума, фазосогласованного возбуждения дисперсионных волн и третьей оптической гармоники.

- Высокая эффективность нелинейно-оптического преобразования импульсов Cr:forsterite лазера с удлиненным резонатором (центральная длина волны 1.25 мкм) в процессе солитонного самосдвига частоты в микроструктурированных световодах с увеличенной сердцевиной (в диапазоне 1.3 – 1.8 мкм) позволяет осуществлять их дальнейшее спектрально-временное преобразование в процессе генерации второй оптической гармоники в нелинейно-оптических кристаллах. Таким образом, реализован новый мегагерцовый волоконный источник сверхкоротких импульсов с суб- и наноджоулевыми уровнями энергии длительностью от 50 до 580 фс, обладающий общей областью перестройки в диапазоне от 630 до 1800 нм, что особенно важно для реализации нелинейно-оптической визуализации, в том числе на основе нелинейно-оптической спектроскопии когерентного антистоксова рассеяния света (КАРС).

- Показано, что волноводный режим нелинейно-оптического взаимодействия, реализуемый в изолированных модах полых ФК-волноводов, приводит к радикальному увеличению эффективности четырехволновых взаимодействий по сравнению с режимом жесткой фокусировки. Для нелинейно-оптической спектроскопии на основе когерентного антистоксова рассеяния света (КАРС) подобное увеличение эффективности достигало одного порядка. Была продемонстрирована возможность диагностики аналита (молекул воды), осаждаемого на внутренних стенках полых фотонно-кристаллических (микроструктурированных) волокон с большой площадью моды. Интерферометрическая природа сигнала КАРС обеспечивает возможность анализа вклада оболочки в общую нелинейность волноводных мод полых микроструктурированных волокон, что повышает чувствительность и точность спектральных измерений.

- Продemonстрирована мультимодальная платформа для нелинейной микроспектроскопии когерентного антистоксова рассеяния света (КАРС) на основе Cr:forsterite (хром-форстеритового) генератора с центральной длиной волны 1.25 мкм, микроструктурированных световодов с большой площадью кварцевой сердцевины и нелинейно-оптических кристаллов. Эта техника обеспечивает не только проведение измерений в видимой и инфракрасной области, но также обладает спектральной селективностью за счет спектрального сужения зондирующих импульсов в микроструктурированных световодах и нелинейно-оптических кристаллах. Формирование последовательности фемтосекундных импульсов с задержкой порядка 400 фс в процессе удвоения частоты в кристалле с периодической доменной структурой (PPLN) позволяет реализовать режим нестационарной КАРС спектроскопии. Возможности реализованной

методики продемонстрированы в экспериментах по сканирующей КАРС-микроскопии различных объектов. Показано, что техника фемтосекундной КАРС спектроскопии позволяет измерять амплитуду, время дефазировки и параметры оптической нелинейности оптических фононов в синтетических алмазных пленках.

- Наличие широких полос пропускания и особенности дисперсионных свойств полых фотонно-кристаллических волокон с диаметром сердцевины порядка 15 мкм обеспечивают различные режимы транспортировки лазерных импульсов в направляемых волноводных модах. Продemonстрирована возможность передачи высокоэнергетичных лазерных импульсов от Nd:YAG источников через полые ФК волокна. Полученные потоки энергии в экспериментах составили 440 Дж/см<sup>2</sup> для 10 нс лазерных импульсов и 90 Дж/см<sup>2</sup> для 40 пс импульсов. Для импульсов ближнего инфракрасного диапазона в области 1060 – 1070 нм, характерной для фемтосекундных итербиевых лазерных источников, продемонстрирована возможность транспортировки мощных фемтосекундных импульсов в режиме временного сжатия предварительно chirпированных импульсов от 510 фс до 110 фс в процессе их распространения в режиме аномальной дисперсии в полой сердцеvine фотонно-кристаллического световода, заполненного атмосферным воздухом. Как было показано, подобный режим временной компрессии фазомодулированных импульсов обеспечивает их транспортировку со значениями энергии около 0.5 мкДж и пиковой мощности 5 МВт. Другой режим доставки излучения с мультимегаваттным уровнем пиковой мощности реализуется при солитонном распространении импульсов, что было продемонстрировано для усиленных импульсов второй гармоники хром-форстеритовой лазерной системы.

- Дисперсионные и нелинейные свойства полых антирезонансных световодов револьверного типа с диаметром сердцевины 70 мкм, толщиной стенок внутренних капилляров оболочки порядка 500 нм, заполненных инертным газом при высоком давлении, обеспечивают эффективное нелинейно-оптическое преобразование фемтосекундных импульсов накачки ближнего и среднего инфракрасного диапазона с субмиллиджоулевыми уровнями энергий в режиме солитонной самокомпрессии. Подбор давления газа и энергии фемтосекундных импульсов накачки создает условия формирования мультиоктавного суперконтинуума и высокоэнергетичных предельно коротких импульсов. Продemonстрировано, что техника прямого измерения светового поля X-SEA-F-SPIDER в сочетании с методикой определения спектральной фазы высокочастотного крыла суперконтинуума, генерируемого в полом антирезонансном волноводе, обеспечили возможность прямой характеристики импульсов, формируемых в процессе солитонной самокомпрессии с длительностями порядка половины цикла поля на длине волны 1.8 мкм, что дает оценку пиковой мощности более 2 ГВт. Такие импульсы находят применение в области аттосекундной оптики и петагерцовой оптоэлектроники.

- Продemonстрирована возможность использования спонтанного четырехволнового взаимодействия в высоконелинейных двулучепреломляющих фотонно-кристаллических волокнах для эффективной управляемой генерации коррелированных фотонных пар и

одиночных фотонов. Впервые подробно рассмотрена генерация фотонных пар при пяти возможных поляризационных конфигурациях четырехволнового взаимодействия (ЧВВ) с одноцветной накачкой, с использованием которых можно создать спектрально запутанные и факторизуемые фотонные пары. Экспериментально получены и охарактеризованы кросс-поляризованные фотонные пары, созданные в процессе векторного ЧВВ II типа в ФК волокне модели NL-PM-750. Яркость источника составляет  $8 \times 10^4$  Гц/мВт при средней мощности накачки 2.5 мВт и  $g^{(2)}(0) = 10$ . Полученная яркость значительно превосходит аналогичные параметры СПР-источников фотонных пар ( $\sim 1000$  Гц/мВт). Максимальное значение параметра  $g^{(2)}(0) = 1200$  при скорости счета совпадений 75 Гц без коррекции на потери в схеме и квантовую эффективность детекторов.

- Векторное четырехволновое взаимодействие (ЧВВ) фемтосекундных лазерных импульсов в двулучепреломляющем, высоконелинейном оптическом волокне может быть источником широкополосного многомерного перепутывания в непрерывных переменных с тонко настраиваемой энтропией и чистотой состояний. Состоянием фотонных пар такого векторного ЧВВ можно управлять, изменяя длину волны накачки и геометрию поляризации, создавая при этом как высокочистые низкоразмерные запутанные состояния, так и высокоэнтропийные запутанные состояния в пространстве высокой размерности. Дана количественная характеристика степени спектральной запутанности фотонной пары, как функции дисперсионных свойств ФК волокна и параметров оптического поля накачки, в частности, центральной длины волны накачки, ее поляризации и мощности. Показано, что в ФК волокнах с использованием векторного ЧВВ возможно сформировать факторизуемые фотонные пары с энтропией запутывания  $S = 0.2$  и параметром Шмидта  $K = 1.04$ , что соответствует чистоте состояния провозглашенных одиночных фотонов  $p = 0.96$ . Выявлены условия для создания сверхзапутанных состояний.

- Впервые экспериментально реализован метод линейной квантовой (фантомной) спектроскопии с использованием частотно-коррелированных фотонных пар, полученных в волоконном источнике на основе векторного спонтанного ЧВВ в фотонно-кристаллическом волокне. Получен спектр пропускания тестового красителя в диапазоне 905 – 935 нм при непосредственном сканировании в сопряжённом канале на длинах волн 700 – 740 нм. Сравнение измеренного спектра с полученным при использовании классического источника света является критерием достоверности результата.

- Продемонстрирован высокоэффективный волоконный источник сверхширокополосных бифотонов с рекордной спектральной шириной порядка 180 ТГц на основе спонтанного ЧВВ в фотонно-кристаллическом волокне, накачиваемым фемтосекундными лазерными импульсами. Получение сверхширокополосного спектра достигается при использовании длины волны накачки близкой к одному из двух нулей дисперсии групповых скоростей световода. Проведено сравнение режимов генерации коррелированных фотонных пар при импульсной (фемтосекундной) и непрерывной накачке в области 0.8 мкм, показана

возможность генерации фотонных пар в обоих режимах с большой частотной отстройкой около 0.5 и 1.6 мкм.

Бурное развитие направления микроструктурированных (фотонно-кристаллических) волокон в течение более чем двух десятилетий внесло заметный вклад в волоконную нелинейную оптику. Представленные в настоящей диссертационной работе результаты имеют важное значение, как с точки зрения исследования новых режимов нелинейно-оптического преобразования лазерных импульсов в волоконном режиме, так и с точки зрения практического применения формируемых импульсов, что было продемонстрировано в экспериментах по нелинейной спектроскопии.

Представленные в диссертационной работе результаты получены в процессе работы автора на кафедре общей физики и волновых процессов физического факультета МГУ имени М.В.Ломоносова.

Я глубоко благодарен Алексею Михайловичу Желтикову, вместе с которым я начал заниматься не только представленной в диссертации тематикой, но и в целом научной деятельностью. Начиная со студенческих времен его беспрецедентная работоспособность, прозорливость в различных областях жизни и дружеская поддержка во многом направляла мою жизнь. А заданная высокая планка научной экспертизы продолжает во многом определять уровень текущих исследований группы. Хотелось бы выразить надежду, что в будущем у нас еще будет возможность работать вместе.

В этой связи с благодарностью обращаюсь к светлой памяти нашего учителя профессора Николая Ивановича Коротеева, чья исключительная интеллигентность и преданность науке до сих пор во многом является примером и объединяющим фактором.

Хотелось бы выразить признательность кандидату физико-математических наук А.А.Иванову. Без его помощи с техническим обеспечением экспериментов на начальных этапах работы, бескорыстной поддержки при развитии хром-форстеритовых лазеров в нашей лаборатории, а также просто спокойствия и человеческой доброты, вряд ли работа имела бы настоящий вид.

Выражаю огромную благодарность кандидатам физико-математических наук И.В.Федотову, А.А.Ланину, Е.Е.Степанову, с которыми вместе были проведены многочисленные эксперименты, во многом определившие содержание настоящей работы, и с которыми мы продолжаем успешно работать уже над другими задачами.

Хотелось бы поблагодарить кандидатов физико-математических наук Е.Е.Серебрянникова и А.А.Воронина, выполнившие значительную часть теоретического анализа, без которого полученные экспериментальные результаты имели бы заметно меньшее значение.

Я благодарен кандидатам физико-математических наук Д.А.Акимову, С.О.Конорову, В.А.Митрохину, Л.В.Амитоновой, а также А.Д.Саввину, с которыми мы

плодотворно сотрудничали на первых этапах работы. На последних этапах работы огромный вклад в исследования внесли Н.Л.Петров, Н.С.Старшинов, И.В.Савицкий, которым также выражаю глубокую признательность.

Заметная часть материала, представленного в диссертации, отражает результаты сотрудничества с известными научными группами и замечательными учеными в России и за рубежом, которым также хотелось бы выразить огромную признательность и перечислить как соавторов: В.И.Белоглазов, Н.Б.Скибина, А.В.Щербаков (Институт технологии и обработки стеклянных структур, Саратов); Ю.Н.Кондратьев, В.С.Шевандин, К.В.Дукельский, А.В.Хохлов (Государственный оптический институт им. С.И.Вавилова); Л.А.Мельников (Саратовский государственный университет им. Н.Г.Чернышевского), Д.фондер Линде, А.П.Тарасевич, П.Жу (университет Эссена-Дуйсбурга, Германия), Ч.К.Сун (Национальный университет Тайваня, Тайпей, Тайвань). И.Бугар, Д.Хорват, Д.Хорват (мл) (Международный лазерный центр Братиславы, В.В.Яковлев (университет Висконсин-Миллуоки, США), Р.Майлс (Принстонский университет, Принстон, США), С.А.Моисеев, М.С.Смирнов (Казанский квантовый центр КНИИТУ КАИ им.А.Н.Туполева).

Я благодарен профессору В.А.Макарову и всему коллективу кафедры общей физики и волновых процессов физического факультета МГУ имени М.В.Ломоносова за поддержку, творческую и дружескую атмосферу, которая неизменно присутствует в нашем коллективе.

Хотелось бы искреннее поблагодарить Дмитрия Александровича Сидорова-Бирюкова за многолетнюю дружбу, неоценимую и многостороннюю помощь, а также пожелать ему преодолеть все барьеры.

Я благодарен своей семье и друзьям за то, что не смотря на все временные задержки и различные проблемы, они верили в возможность написания настоящей работы.

**Список используемых сокращений:**

МС – микроструктурированный

ФК – фотонно-кристаллический

КАРС – когерентное антистоксово рассеяние света

КР – комбинационное рассеяние света

ВКР – вынужденное комбинационное рассеяние света

ЧВВ – четырехволновые взаимодействия

ССЧ – солитонный самосдвиг частоты

ЧВС – четырехволновое смешение

ГВГ – генерация второй гармоники

ГТГ – генерация третьей гармоники

ИК – инфракрасный

FROG – frequency resolved optical gating (методика временного стробирования с разрешением по частоте)

## СПИСОК ПУБЛИКАЦИЙ АВТОРА ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

1. Fedotov A.B. Tuning the photonic band gap of sub-500-nm-pitch holey fibers in the 930–1030-nm range / Ivanov A.A., Alfimov M.V., Beloglazov V.I., Mel'nikov L.A., Skibina Yu.S., Zheltikov A.M. // *Laser Physics*. – 2000. – Т. 10. – №. 5. – С. 1086–1088. JIF WoS: 0.750 / 0,35 п.л. / вклад соискателя 70%.
2. Алфимов М.В. Фотонно-кристаллические волноводы с фотонной запрещенной зоной, перестраиваемой в области 930-1030 нм / Желтиков А.М., Иванов А.А., Белоглазов В.И., Кириллов Б.А., Магницкий С.А., Тарасишин А.В., Федотов А.Б., Мельников Л.А., Скибина Н.Б. // *Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики*. – 2000. – Т. 71. – №. 12. – 714–719. ИФ РИНЦ: 0.818 / 0,69 п.л. / вклад соискателя 40%.
3. Желтиков А.М. Управляемая локализация света и нелинейно-оптические взаимодействия сверхкоротких лазерных импульсов в микро- и наноструктурированных волокнах с перестраиваемой фотонной запрещенной зоной / Алфимов М.В., Федотов А.Б., Иванов А.А., Сырчин М.С., Тарасевич А.П., Фон дер Линде Д. // *Журнал экспериментальной и теоретической физики*. – 2001. – Т. 120(3). – №. 9. – С. 570–582. ИФ РИНЦ: 0.916 / 1,50 п.л. / вклад соискателя 40%.
4. Fedotov A.B. Holey fibers with 0.4–32-m-lattice-constant photonic band-gap cladding: Fabrication, characterization, and nonlinear-optical measurements / Alfimov M.V. Ivanov A.A., Tarasishin A.V., Beloglazov V.I., Tarasevitch A.P., Von der Linde D., Kirillov B.A., Magnitskii S.A. Chorvat D., Chorvat D. Jr., Naumov A.N., Vlasova E.A., Sidorov-Biryukov D.A., Podshivalov A.A., Kolevatova O.A., Melnikov L.A., Akimov D.A., Makarov V.A., Skibina Yu.S., Zheltikov A.M. // *Laser Physics*. – 2001. – Т. 11. – № 1. – С. 138–145. JIF WoS: 0.791 / 0,92 п.л. / вклад соискателя 60%.
5. Федотов А.Б. Уширение спектра фемтосекундных лазерных импульсов в волноводах с фотонно-кристаллической оболочкой / Желтиков А.М., Мельников Л.А., Тарасевич А.П., Фон дер Линде Д. // *Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики*. – 2000. – Т. 71. – № 7. – С. 407–411. ИФ РИНЦ: 0.818 / 0,58 п.л. / вклад соискателя 60%.
6. Fedotov A.B. Enhanced spectral broadening of short laser pulses in high-numerical-aperture holey fibers / Zheltikov A.M., Tarasevitch A.P., Von der Linde D. // *Applied Physics B: Lasers and Optics*. – 2001. – Т. 73. – № 2. – С. 181–184. JIF WoS: 2.277 / 0,46 п.л. / вклад соискателя 60%.
7. Федотов А.Б. Модовая структура и спектральные свойства излучения суперконтинуума, генерируемого в микроструктурированных волокнах / Пинг Жу, Кондратьев Ю.Н., Багаев С.Н., Шевандин В.С., Дукельский К.В., Смирнов В.Б., Тарасевич А.П., Фон дер Линде Д., Желтиков А.М. // *Журнал экспериментальной и теоретической физики*. – 2002. – Т. 95. – № 5. – С. 851–860. ИФ РИНЦ: 0.916 / 1,16 п.л. / вклад соискателя 60%.
8. Fedotov A.B. Microstructure-fiber sources of mode-separable supercontinuum emission for wave-mixing spectroscopy / Ping Zh., Tarasevitch A.P., Dukelskii K.V., Kondrat'ev Yu.N., Shevandin V.S., Smirnov V.B., Von der Linde D., Zheltikov A.M. // *Journal of Raman Spectroscopy*. – 2002. – Т. 33. – № 11-12. – С. 888–895. JIF WoS: 0.852 / 0,92 п.л. / вклад соискателя 60%.
9. Fedotov A.B. Assorted non-linear optics in microchannel waveguides of photonic-crystal fibers / Konorov S.O., Serebryannikov E.E., Sidorov-Biryukov D.A., Mitrokhin V.P., Dukelskii K.V., Khokhlov A.V., Shevandin V.S., Kondratev Yu.N., Scalora M., Zheltikov A.M. // *Optics Communications*. – 2005. – Т. 255. – № 4-6. – С. 218–224. JIF WoS: 1.872 / 0,81 п.л. / вклад соискателя 30%.
10. Fedotov A.B. Supercontinuum generation in photonic-molecule modes of microstructure fibers / Naumov A.N., Bugar I., Chorvat D., Sidorov-Biryukov D.A., Chorvat D. Jr.,

- Zheltikov A.M. // IEEE Journal on Selected Topics in Quantum Electronics. – 2002. – Т. 8. – № 3. – С. 665–667. JIF WoS: 3.378 / 0,35 п.л. / вклад соискателя 40%.
11. Fedotov A.B. Frequency-tunable supercontinuum generation in photonic-crystal fibers by femtosecond pulses of an optical parametric amplifier / Naumov A.N., Zheltikov A.M., Bugar I., Chorvat D., Chorvat D. Jr., Tarasevitch A.P., Von der Linde D. // Journal of the Optical Society of America B: Optical Physics. – 2002. – Т. 19. – № 9. – С. 2156–2164. JIF WoS: 2.147 / 1,04 п.л. / вклад соискателя 50%.
  12. Fedotov A.B. Photonic-molecule modes of a microstructure cobweb fiber / Naumov A.N., Konorov S.O., Beloglazov V.I., Melnikov L.A., Skibina N.B., Sidorov-Biryukov D.A., Shcherbakov A.V., Zheltikov A.M. // Laser Physics. – 2002. – Т. 12. – № 11. – С. 1363–1365. JIF WoS: 0.857 / 0,35 п.л. / вклад соискателя 50%.
  13. Федотов А.Б. Локализация света и переключаемая генерация суперконтинуума в модах циклической фотонной молекулы микроструктурированного волокна / Бугар И., Наумов А.Н., Хорват Д. мл., Сидоров-Бирюков Д.А., Хорват Д., Желтиков А.М. // Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики. – 2002. – Т. 75. – № 7. – С. 374–378. ИФ РИНЦ: 0.818 / 0,58 п.л. / вклад соискателя 50%.
  14. Konorov S.O. Anti-stokes generation in guided modes of photonic-crystal fibers modified with an array of nanoholes / Akimov D.A., Ivanov A.A., Alfimov M.V., Fedotov A.B., Sidorov-Biryukov D.A., Melnikov L.A., Shcherbakov A.V., Bugar I., Chorvat D. Jr., Uherek F., Chorvat D., Zheltikov A.M. // Laser Physics Letters. – 2004. – Т. 1. – № 8. – С. 402–405. JIF WoS: 1.226 / 0,46 п.л. / вклад соискателя 40%.
  15. Konorov S.O. Chirp-controlled anti-stokes frequency conversion of femtosecond pulses in photonic-crystal fibers / Bugar I., Sidorov-Biryukov D.A., Chorvat D. Jr., Kondratev Yu.N., Shevandin V.S., Dukelskii K.V., Khokhlov A.V., Fedotov A.B., Uherek F., Morozov V.B., Makarov V.A., Chorvat D., Zheltikov A.M. // Laser Physics. – 2004. – Т. 14. – № 5. – С. 772–775. JIF WoS: 0.857 / 0,46 п.л. / вклад соискателя 40%.
  16. Акимов Д.А. Спектральное сверхширение субнаноджоулевых фемтосекундных импульсов лазера на хром-форстерите в перетянтом волокне / Алфимов М.В., Багаев С.Н., Биркс Т., Иванов А.А., Федотов А.Б., Уодсуорт У. Дж., Рассел Ф.С. Дж., Пивцов В.С., Подшивалов А.А., Желтиков А.М. // Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики. – 2001. – Т. 74. – № 9. – С. 515–519. ИФ РИНЦ: 0.818 / 0,58 п.л. / вклад соискателя 40%.
  17. Akimov D.A. Two-octave spectral broadening of subnanjoule cr:forsterite femtosecond laser pulses in tapered fibers / Ivanov A.A., Alfimov M.V., Bagayev S.N., Birks T.A., Wadsworth W.J., Russell P.J., Fedotov A.B., Pivtsov V.S., Podshivalov A.A., Zheltikov A.M. // Applied Physics B: Lasers and Optics. – 2002. – Т. 74. – № 4-5. – С. 307–311. JIF WoS: 2.203 / 0,58 п.л. / вклад соискателя 30%.
  18. Федотов А.Б. Волноводные свойства и спектр собственных мод полых фотонно-кристаллических волокон / Коноров С.О., Колеватова О.А., Белоглазов В.И., Скибина Н.Б., Мельников Л.А., Щербаков А.В., Желтиков А.М. // Квантовая электроника. – 2003. – Т. 33. – № 3. – С. 271–274. ИФ РИНЦ: 0.902 / 0,46 п.л. / вклад соискателя 30%.
  19. Коноров С.О. Собственные моды полых фотонно-кристаллических волокон / Федотов А.Б., Колеватова О.А., Белоглазов В.И., Скибина Н.Б., Щербаков А.В., Желтиков А.М. // Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики. – 2002. – Т. 76. – № 6. – С. 401–405. ИФ РИНЦ: 0.818 / 0,58 п.л. / вклад соискателя 30%.
  20. Коноров С.О. Эволюция огибающей и фазы фемтосекундных импульсов в полых фотонно-кристаллических волокнах / Федотов А.Б., Белоглазов В.И., Скибина Н.Б., Щербаков А.В., Желтиков А.М. // Квантовая электроника. – 2004. – Т. 34. – № 1. – С. 51–55. ИФ РИНЦ: 0.902 / 0,58 п.л. / вклад соискателя 20%.
  21. Chia S.H. A sub-100fs self-starting cr:forsterite laser generating 1.4w output power / Liu T.M., Ivanov A.A., Fedotov A.B., Zheltikov A.M., Tsai M.R., Chan M.C., Yu C.H., Sun

- C.K. // *Optics Express*. – 2010. – Т. 18. – № 23. – С. 24085–24091. JIF WoS: 4.692 / 0,81 п.л. / вклад соискателя 20%.
22. Ivanov A.A. High-energy self-mode-locked cr:forsterite laser near the soliton blowup threshold / Martynov G.N., Lanin A.A., Fedotov A.B., Zheltikov A.M. // *Optics Letters*. – 2020. – Т. 45. – № 7. – С. 1890–1893. JIF WoS: 4.180 / 0,46 п.л. / вклад соискателя 50%.
  23. Ivanov A.A. Pulse-width-tunable 0.7 W mode-locked cr:forsterite laser / Voronin A.A., Lanin A.A., Sidorov-Biryukov D.A., Fedotov A.B., Zheltikov A.M. // *Optics Letters*. – 2014. – Т. 39. – № 2. – С. 205–208. JIF WoS: 4.282 / 0,46 п.л. / вклад соискателя 40%.
  24. Lanin A.A. Ultrabroadband xfrog of few-cycle mid-infrared pulses by four-wave mixing in a gas / Fedotov A.B., Zheltikov A.M. // *Journal of the Optical Society of America B*. – 2014. – Т. 31. – № 8. – С. 1901–1905. JIF WoS: 2.319 / 0,58 п.л. / вклад соискателя 40%.
  25. Fedotov A.B. Dispersion and nonlinearity nanomanagement of highly nonlinear photonic-crystal fibers for the spectral transformation of cr:forsterite laser pulses / Serebryannikov E.E., Ivanov A.A., Melnikov L.A., Shcherbakov A.V., Sidorov-Biryukov D.A., Sun Ch.-K., Alfimov M.V., Zheltikov A.M. // *Laser Physics Letters*. – 2006. – Т. 3. – № 6. – С. 301–305. JIF WoS: 1.341 / 0,58 п.л. / вклад соискателя 60%.
  26. Fedotov A.B. Highly nonlinear photonic-crystal fibers for the spectral transformation of cr:forsterite laser pulses / Serebryannikov E.E., Ivanov A.A., Sidorov-Biryukov D.A., Melnikov L.A., Shcherbakov A.V., Sun Ch.-K., Alfimov M.V., Zheltikov A.M. // *Optics Communications*. – 2006. – Т. 267. – № 2. – С. 505–510. JIF WoS: 1.682 / 0,69 п.л. / вклад соискателя 40%.
  27. Fedotov A.B. Powerful wavelength-tunable ultrashort solitons in a solid-core photonic-crystal fiber / Voronin A.A., Fedotov I.V., Ivanov A.A., Zheltikov A.M. // *Optics Letters*. – 2009. – Т. 34. – № 6. – С. 851–853. JIF WoS: 4.350 / 0,35 п.л. / вклад соискателя 50%.
  28. Fedotov A.B. Spectral transformation of femtosecond cr:forsterite laser pulses in a flint-glass photonic-crystal fiber / Serebryannikov E.E., Ivanov A.A., Zheltikov A.M. // *Applied optics*. – 2006. – Т. 45. – № 26. – С. 6823–6830. JIF WoS: 2.117 / 0,92 п.л. / вклад соискателя 60%.
  29. Fedotov A.B. Soft-glass photonic-crystal fibers for frequency shifting and white-light spectral superbroadening of femtosecond cr:forsterite laser pulses / Sidorov-Biryukov D.A., Ivanov A.A., Alfimov M.V., Beloglazov V.I., Skibina N.B., Sun C.-K., Zheltikov A.M. // *Journal of the Optical Society of America B: Optical Physics*. – 2006. – Т. 23. – № 7. – С. 1471–1477. JIF WoS: 2.486 / 0,81 п.л. / вклад соискателя 60%.
  30. Ivanov A.A. Wavelength-tunable parametric third-harmonic generation in a photonic-crystal fiber / Sidorov-Biryukov D.A., Fedotov A.B., Serebryannikov E.E., Zheltikov A.M. // *Journal of the Optical Society of America B: Optical Physics*. – 2007. – Т. 24. – № 3. – С. 571–575. JIF WoS: 2.594 / 0,58 п.л. / вклад соискателя 60%.
  31. Fedotov A.B. Multifrequency third-harmonic generation by red-shifting solitons in a multimode photonic-crystal fiber / Voronin A.A., Serebryannikov E.E., Fedotov I.V., Mitrofanov A.V., Ivanov A.A., Sidorov-Biryukov D.A., Zheltikov A.M. // *Physical Review E – Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics*. – 2007. – Т. 75. – № 1. – С. 016614–016620. JIF WoS: 2.623 / 0,81 п.л. / вклад соискателя 60%.
  32. Коноров С.О. Изменение спектров пропускания и оптических потерь полых фотонно-кристаллических волноводов при заполнении их жидкостью / Серебрянников Е.Е., Желтикова Д.А., Митрохин В.П., Сидоров-Бирюков Д.А., Федотов А.Б., Килин С.Я., Желтиков А.М. // *Квантовая электроника*. – 2005. – Т. 35. – № 9. – С. 839–843. ИФ РИНЦ: 0.902 / 0,58 п.л. / вклад соискателя 20%.
  33. Serebryannikov E.E. Third-harmonic generation by raman-shifted solitons in a photonic-crystal fiber / Fedotov A.B., Zheltikov A.M., Ivanov A.A., Alfimov M.V., Beloglazov V.I., Skibina N.B., Skryabin D.V., Yulin A.V., Knight J.C. // *Journal of the Optical Society of*

- America B: Optical Physics. – 2006. – Т. 23. – № 9. – С. 1975–1980. JIF WoS: 2.486 / 0,69 п.л. / вклад соискателя 60%.
34. Fedotov A.B. Generation of a cross-phase-modulated third harmonic with unamplified femtosecond cr:forsterite laser pulses in a holey fiber / Yakovlev V.V., Zheltikov A.M. // Laser Physics. – 2002. – Т. 12. – № 2. – С. 268–272. JIF WoS: 0.857 / 0,58 п.л. / вклад соискателя 70%.
  35. Федотов А.Б. Преобразование частоты сверхкоротких лазерных импульсов в наноструктурированных световодах / Серебрянников Е.Е., Иванов А.А., Сидоров-Бирюков Д.А., Щербаков А.В., Мельников Л.А., Алфимов М.В., Желтиков А.М. // Российские нанотехнологии. – 2006. – Т. 1. – С. 240–243. ИФ РИИЦ: 0.886 / 0,46 п.л. / вклад соискателя 40%.
  36. Fedotov A.B. Spectral compression of frequency-shifting solitons in a photonic-crystal fiber / Voronin A.A., Fedotov I.V., Ivanov A.A., Zheltikov A.M. // Optics Letters. – 2009. – Т. 34. – № 5. – С. 662–664. JIF WoS: 4.350 / 0,35 п.л. / вклад соискателя 40%.
  37. Voronin A.A. Spectral interference of frequency-shifted solitons in a photonic-crystal fiber / Fedotov I.V., Fedotov A.B., Zheltikov A.M. // Optics Letters. – 2009. – Т. 34. – № 5. – С. 569–571. JIF WoS: 4.350 / 0,35 п.л. / вклад соискателя 40%.
  38. Fedotov I.V. Generation of 20 fs, 20 mw pulses in the near-infrared by pulse compression using a large-mode-area all-silica photonic band-gap fiber / Lanin A.A., Voronin A.A., Fedotov A.B., Zheltikov A.M., Egorova O.N., Semjonov S.L., Pryamikov A.D., Dianov E.M. // Journal of Modern Optics. – 2010. – Т. 57. – № 19. – С. 1867–1870. JIF WoS: 1.042 / 0,46 п.л. / вклад соискателя 40%.
  39. Fedotov I.V. Multisoliton supercontinuum from a photonic-crystal fibre as a source of frequency-tunable megawatt femtosecond pulses in the infrared / Voronin A.A., Fedotov A.B., Shevandin V.S., Dukelskii K.V., Zheltikov A.M. // Quantum Electronics. – 2009. – Т. 39. – № 7. – С. 634–637. JIF WoS: 0.882 / 0,46 п.л. / вклад соискателя 40%.
  40. Mitrokhin V.P. Spectral transformation of megawatt femtosecond optical pulses in large-mode-area high-index-step photonic-crystal fibers / Ivanov A.A., Fedotov A.B., Alifimov M.V., Dukelskii K.V., Khokhlov A.V., Shevandin V.S., Kondratev Yu.N., Podshivalov A.A., Zheltikov A.M. // Laser Physics Letters. – 2007. – Т. 4. – № 7. – С. 529–533. JIF WoS: 1.647 / 0,58 п.л. / вклад соискателя 40%.
  41. Kondratev Yu.N. Microstructured lightguides with a quartz core for obtaining a spectral supercontinuum in the femtosecond range / Khokhlov A.V., Shevandin V.S., Zheltikov A.M., Konorov S.O., Serebryannikov E.E., Sidorov-Biryukov D.A., Fedotov A.B., Semenov S.L. // Journal of Optical Technology. – 2005. – Т. 72. – № 7. – С. 548–550. JIF WoS: 0.192 / 0,35 п.л. / вклад соискателя 40%.
  42. Fedotov A.B. Ionization-induced blueshift of high-peak-power guided-wave ultrashort laser pulses in hollow-core photonic-crystal fibers / Serebryannikov E.E., Zheltikov A.M. // Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics. – 2007. – Т. 76. – № 5. – 053811. JIF WoS: 3.093 / 0,58 п.л. / вклад соискателя 50%.
  43. Konorov S.O. Transmission of ultrashort pulses through hollow photonic-crystal fibers with passbands in the visible and infrared spectral ranges / Fedotov A.B., Beloglazov V.I., Skibina N.B., Scalora M., Vaselli M., Zheltikov A.M. // Laser Physics. – 2004. – Т. 14. – № 5. – С. 780–784. JIF WoS: 0.857 / 0,58 п.л. / вклад соискателя 30%.
  44. Konorov S.O. Laser breakdown with millijoule trains of picosecond pulses transmitted through a hollow-core photonic-crystal fiber / Fedotov A.B., Beloglazov V.I., Skibina N.B., Shcherbakov A.V., Wintner E., Zheltikov A.M. // Laser Physics. – 2003. – Т. 13. – № 4. – С. 652–656. JIF WoS: 0.791 / 0,58 п.л. / вклад соискателя 50%.
  45. Konorov S.O. Guiding femtosecond second-harmonic pulses of a cr: Forsterite laser through hollow-core photonic-crystal fibers / Fedotov A.B., Ivanov A.A., Alifimov M.V., Beloglazov V.I., Skibina N.B., Podshivalov A.A., Petrov A.N., Shcherbakov A.V.,

- Zheltikov A.M. // *Laser Physics*. – 2003. – Т. 13. – № 7. – С. 1046–1049. JIF WoS: 0.791 / 0,46 п.л. / вклад соискателя 20%.
46. Konorov S.O. Laser breakdown with millijoule trains of picosecond pulses transmitted through a hollow-core photonic-crystal fibre / Fedotov A.B., Kolevatova O.A., Beloglazov V.I., Skibina N.B., Shcherbakov A.V., Wintner E., Zheltikov A.M. // *Journal of Physics D - Applied Physics*. – 2003. – Т. 36. – № 12. – С. 1375–1381. JIF WoS: 1.397 / 0,81 п.л. / вклад соискателя 40%.
  47. Konorov S.O. Waveguide modes and dispersion properties of hollow-core photonic-crystal and aperiodic-cladding fibers / Fedotov A.B., Kolevatova O.A., Serebryannikov E.E., Sidorov-Biryukov D.A., Mikhailova J.M., Naumov A.N., Beloglazov V.I., Skibina N.B., Melnikov L.A., Shcherbakov A.V., Zheltikov A.M. // *Laser Physics*. – 2003. – Т. 13. – № 2. – С. 148–160. JIF WoS: 0.791 / 1,50 п.л. / вклад соискателя 30%.
  48. Konorov S.O. Large-core-area hollow photonic-crystal fibers / Fedotov A.B., Melnikov L.A., Shcherbakov A.V., Zheltikov A.M. // *Laser Physics Letters*. – 2004. – Т. 1. – № 11. – С. 548–550. JIF WoS: 1.226 / 0,35 п.л. / вклад соискателя 30%.
  49. Konorov S.O. Laser ablation of dental tissues with picosecond pulses of 1.06- $\mu\text{m}$  radiation transmitted through a hollow-core photonic-crystal fiber / Mitrokhin V.P., Fedotov A.B., Sidorov-Biryukov D.A., Beloglazov V.I., Skibina N.B., Shcherbakov A.V., Wintner E., Scalora M., Zheltikov A.M. // *Applied optics*. – 2004. – Т. 43. – № 11. – С. 2251–2256. JIF WoS: 1.925 / 0,69 п.л. / вклад соискателя 30%.
  50. Konorov S.O. Hollow-core photonic-crystal fibres for laser dentistry / Mitrokhin V.P., Fedotov A.B., Sidorov-Biryukov D.A., Beloglazov V.I., Skibina N.B., Wintner E., Scalora M., Zheltikov A.M. // *Physics in Medicine and Biology*. – 2004. – Т. 49. – № 7. – С. 1359–1368. JIF WoS: 2.627 / 1,16 п.л. / вклад соискателя 40%.
  51. Федотов А.Б. Полые фотонно-кристаллические волокна для передачи мегаваттных фемтосекундных импульсов в солитонном режиме / Сидоров-Бирюков Д.А., Иванов А.А., Алфимов М.В., Желтиков А.М. // *Российские нанотехнологии*. – 2007. – Т. 2. – № 3-4. – С. 134–139. ИФ РИНЦ: 0.886 / 0,69 п.л. / вклад соискателя 40%.
  52. Lanin A.A. Air-guided photonic-crystal-fiber pulse-compression delivery of multimewatt femtosecond laser output for nonlinear-optical imaging and neurosurgery / Fedotov I.V., Sidorov-Biryukov D.A., Doronina-Amitonova L.V., Ivashkina O.I., Zots M.A., Sun C.K., Ilday F.O., Fedotov A.B., Anokhin K.V., Zheltikov A.M. // *Applied Physics Letters*. – 2012. – Т. 100. – № 10. – С. 101104. JIF WoS: 4.246 / 0,46 п.л. / вклад соискателя 30%.
  53. Voronin A.A. Understanding the nonlinear-optical response of a liquid-core photonic-crystal fiber / Mitrokhin V.P., Ivanov A.A., Fedotov A.B., Sidorov-Biryukov D.A., Beloglazov V.I., Alfimov M.V., Ludvigsen H., Zheltikov A.M. // *Laser Physics Letters*. – 2010. – Т. 7. – № 1. – С. 46–49. JIF WoS: 6.184 / 0,46 п.л. / вклад соискателя 20%.
  54. Savitsky I.V. Single-cycle, multigigawatt carrier-envelope-phase-tailored near-to-mid-infrared driver for strong-field nonlinear optics / Stepanov E.A., Lanin A.A., Fedotov A.B., Zheltikov A.M. // *ACS Photonics*. – 2022. – Т. 9. – № 5. – С. 1679–1690. JIF WoS: 7.213 / 1,39 п.л. / вклад соискателя 30%.
  55. Savitsky I.V. Sub-cycle pulse revealed with carrier-envelope phase control of soliton self-compression in anti-resonant hollow-core fiber / Voronin A.A., Stepanov E.A., Lanin A.A., Fedotov A.B. // *Optics Letters*. – 2023. – Т. 48. – № 17. – С. 4468–4471. JIF WoS: 3.266 / 0,46 п.л. / вклад соискателя 30%.
  56. Stepanov E.A. Multioctave supercontinua from shock-coupled soliton self-compression / Voronin A.A., Meng F., Mitrofanov A.V., Sidorov-Biryukov D.A., Rozhko M.V., Glek P.B., Li Y., Fedotov A.B., Pugžlys A., Baltuška A., Liu B., Gao S., Wang Y., Wang P., Hu M., Zheltikov A.M. // *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics*. – 2019. – Т. 99. – № 3. – С. 033855. JIF WoS: 2.937 / 0,81 п.л. / вклад соискателя 30%.

57. Савицкий И.В. Модовый состав излучения суперконтинуума предельно коротких импульсов в полых антирезонансных волноводах / Степанов Е.А., Ланин А.А., Федотов А.Б. // Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики. – 2023. – Т. 117. – № 3-4. – С. 285–291. ИФ РИНЦ: 0.818 / 0,81 п.л. / вклад соискателя 30%.
58. Савицкий И.В. Влияние фазы несущей относительно огибающей на генерацию мультиоктавного суперконтинуума и предельно коротких импульсов в полых антирезонансных световодах / Воронин А.А., Степанов Е.А., Ланин А.А., Федотов А.Б. // Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики. – 2023. – Т. 118. – № 7. – С. 493–501. ИФ РИНЦ: 0.818 / 1,04 п.л. / вклад соискателя 30%.
59. Савицкий И.В. Измерение временной структуры поля и фазы несущей однопериодных импульсов ближнего и среднего инфракрасного диапазона / Степанов Е.А., Ланин А.А., Воронин А.А., Серебрянников Е.Е., Иванов А.А., Ху М., Ли Я., Федотов А.Б., Желтиков А.М. // Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики. – 2022. – Т. 115. – № 7. – С. 437–443. ИФ РИНЦ: 0.818 / 0,81 п.л. / вклад соискателя 30%.
60. Акимов Д.А. Фемтосекундная спектроскопия когерентного антистоксова рассеяния света с использованием перестраиваемого излучения, генерируемого в микроструктурированных волокнах / Коноров С.О., Алфимов М.В., Иванов А.А., Белоглазов В.И., Скибина Н.Б., Федотов А.Б., Сидоров-Бирюков Д.А., Петров А.Н., Желтиков А.М. // Квантовая электроника. – 2004. – Т. 34. – № 5. – С. 473–476. ИФ РИНЦ: 0.902 / 0,46 п.л. / вклад соискателя 20%.
61. Fedotov A.B. Supercontinuum-generating holey fibers as new broadband sources for spectroscopic applications / Zheltikov A.M., Ivanov A.A., Alfimov M.V., Chorvat D., Chorvat D. Jr, Beloglazov V.I., Melnikov L.A., Skibina N.B., Tarasevitch A.P., and Von der Linde D. // *Laser Physics*. – 2000. – Т. 10. – № 3. – С. 723–726. JIF WoS: 0.750 / 0,46 п.л. / вклад соискателя 40%.
62. Smirnov M.A. Bright ultra-broadband fiber-based biphoton source / Fedotov I.V., Smirnova A.M., Khairullin A.F., Moiseev S.A. // *Optics Letters*. – 2024. – Т. 49. – № 14. – С. 3838–3841. JIF WoS: 3.266 / 0,46 п.л. / вклад соискателя 20%.
63. Konorov S.O. Hollow-core photonic-crystal fibers optimized for four-wave mixing and coherent anti-stokes raman scattering / Fedotov A.B., Sidorov-Biryukov D.A., Beloglazov V.I., Skibina N.B., Shcherbakov A.V., Zheltikov A.M. // *Journal of Raman Spectroscopy*. – 2003. – Т. 34. – № 9. – С. 688–692. JIF WoS: 1.359 / 0,58 п.л. / вклад соискателя 30%.
64. Mitrofanov A.V. Highly birefringent silicate glass photonic-crystal fiber with polarization-controlled frequency-shifted output: A promising fiber light source for nonlinear raman microspectroscopy / Linik Y.M., Buczynski R., Pysz D., Lorenc D., Bugar I., Ivanov A.A., Alfimov M.V., Fedotov A.B., Zheltikov A.M. // *Optics Express*. – 2006. – Т. 14. – № 22. – С. 10645–10651. JIF WoS: 5.352 / 0,81 п.л. / вклад соискателя 20%.
65. Fedotov A.B. Four-wave mixing of picosecond pulses in hollow fibers: expanding the possibilities of gas-phase analysis / Giammanco F., Naumov A.N., Marsili P., Ruffini A., Sidorov-Biryukov D.A., Zheltikov A.M. // *Applied Physics B: Lasers and Optics*. – 2001. – Т. 72. – № 5. – С. 575–582. JIF WoS: 2.277 / 0,92 п.л. / вклад соискателя 40%.
66. Коноров С.О. Четырехволновое взаимодействие в полых фотонно-кристаллических волокнах / Федотов А.Б., Желтиков А.М. // Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики. – 2003. – Т. 77. – № 4. – С. 471–475. ИФ РИНЦ: 0.818 / 0,58 п.л. / вклад соискателя 50%.
67. Fedotov A.B. Coherent anti-stokes raman scattering in isolated air-guided modes of a hollow-core photonic-crystal fiber / Konorov S.O., Mitrokhin V.P., Serebryannikov E.E., Zheltikov A.M. // *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics*. – 2004. – Т. 70. – № 4. – 045802. JIF WoS: 1.664 / 0,46 п.л. / вклад соискателя 40%.

68. Konorov S.O. Phase-matched waveguide four-wave mixing scaled to higher peak powers with large-core-area hollow photonic-crystal fibers / Serebryannikov E.E., Fedotov A.B., Miles R.B., Zheltikov A.M. // *Physical Review E - Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics*. – 2005. – Т. 71. – № 5. – 057603. JIF WoS: 1.453 / 0,46 п.л. / вклад соискателя 40%.
69. Kondratev Yu.N. Hollow-core photonic-crystal lightguide for nonlinear spectroscopy of gaseous media / Khokhlov A.V., Shevandin V.S., Zheltikov A.M., Konorov S.O., Fedotov A.B. // *Journal of Optical Technology*. – 2005. – Т. 72. – № 7. – С. 551–553. JIF WoS: 0.192 / 0,35 п.л. / вклад соискателя 40%.
70. Konorov S.O. Phase-matched coherent anti-stokes raman scattering in isolated air-guided modes of hollow photonic-crystal fibers / Fedotov A.B., Serebryannikov E.E., Mitrokhin V.P., Sidorov-Biryukov D.A., Zheltikov A.M. // *Journal of Raman Spectroscopy*. – 2005. – Т. 36. – № 2. – С. 129–133. JIF WoS: 1.974 / 0,58 п.л. / вклад соискателя 40%.
71. Konorov S.O. Enhanced four-wave mixing in a hollow-core photonic-crystal fiber / Fedotov A.B., Zheltikov A.M. // *Optics Letters*. – 2003. – Т. 28. – № 16. – С. 1448–1450. JIF WoS: 4.389 / 0,35 п.л. / вклад соискателя 40%.
72. Konorov S.O. Phase-matched four-wave mixing and sensing of water molecules by coherent anti-stokes raman scattering in large-core-area hollow photonic-crystal fibers / Fedotov A.B., Zheltikov A.M., Miles R.B. // *Journal of the Optical Society of America B: Optical Physics*. – 2005. – Т. 22. – № 9. – С. 2049–2053. JIF WoS: 3.024 / 0,58 п.л. / вклад соискателя 40%.
73. Fedotov I.V. Raman-resonance-enhanced composite nonlinearity of air-guided modes in hollow photonic-crystal fibers / Fedotov A.B., Zheltikov A.M. // *Optics Letters*. – 2006. – Т. 31. – № 17. – С. 2604–2606. JIF WoS: 4.786 / 0,35 п.л. / вклад соискателя 40%.
74. Федотов И.В. Нелинейно-оптическая спектронаноскопия световодных микроструктур / Федотов А.Б., Кондратьев Ю.Н., Шевандин В.С., Дукельский К.В., Хохлов А.В., Желтиков А.М. // *Российские нанотехнологии*. – 2007. – Т. 2. – № 1-2. – С. 140–144. ИФ РИНЦ: 0.886 / 0,58 п.л. / вклад соискателя 40%.
75. Fedotov I.V. Spectronanoscopia of photonic wires and supercontinuum generation by parametrically coupled raman sidebands / Fedotov A.B., Sidorov-Biryukov D.A., Dukelskii K.V., Shevandin V.S., Zheltikov A.M. // *Optics Letters*. – 2008. – Т. 33. – № 8. – С. 800–802. JIF WoS: 4.323 / 0,35 п.л. / вклад соискателя 40%.
76. Федотов И.В. Нелинейно-оптическое преобразование наносекундных лазерных импульсов и управляемая генерация суперконтинуума в микроструктурированных световодах / Федотов А.Б., Желтиков А.М. // *Журнал экспериментальной и теоретической физики*. – 2007. – Т. 132. – № 5. – С. 1017–1025. ИФ РИНЦ: 0.916 / 1,04 п.л. / вклад соискателя 40%.
77. Mitrokhin V.P. Coherent anti-stokes raman scattering microspectroscopy of silicon components with a photonic-crystal fiber frequency shifter / Fedotov A.B., Ivanov A.A., Alifimov M.V., Zheltikov A.M. // *Optics Letters*. – 2007. – Т. 32. – № 23. – С. 3471–3473. JIF WoS: 4.935 / 0,35 п.л. / вклад соискателя 40%.
78. Mitrokhin V.P. Two-photon absorption-induced effects in femtosecond coherent anti-stokes raman-scattering microspectroscopy of silicon photonic components / Fedotov A.B., Ivanov A.A., Podshivalov A.A., Kashkarov P.K., Alifimov M.V., Sakoda K., Zheltikov A.M. // *Laser Physics*. – 2008. – Т. 18. – № 12. – С. 1411–1415. JIF WoS: 0.747 / 0,58 п.л. / вклад соискателя 40%.
79. Lanin A.A. Ultrafast three-dimensional submicrometer-resolution readout of coherent optical-phonon oscillations with shaped unamplified laser pulses at 20 MHz / Fedotov A.B., Zheltikov A.M. // *Optics Letters*. – 2012. – Т. 37. – № 9. – С. 1508–1510. JIF WoS: 4.287 / 0,35 п.л. / вклад соискателя 40%.
80. Lanin A.A. Broadly wavelength- and pulse width-tunable high-repetition rate light pulses from soliton self-frequency shifting photonic crystal fiber integrated with a frequency

- doubling crystal // Fedotov A.B., Zheltikov A.M. // *Optics Letters*. – 2012. – Т. 37. – № 17. – С. 3618–3620. JIF WoS: 4.287 / 0,35 п.л. / вклад соискателя 40%.
81. Ivanov A.A. Pulse-width-tunable 0.7 W mode-locked Cr: forsterite laser / Voronin A.A., Lanin A.A., Sidorov-Biryukov D.A., Fedotov A.B., Zheltikov A.M. // *Optics Letters*. – 2014. – Т. 39. – № 2. – С. 205–208. JIF WoS: 4.282 / 0,46 п.л. / вклад соискателя 40%.
  82. Savvin A.D. Coherent anti-stokes raman metrology of phonons powered by photonic-crystal fibers / Lanin A.A., Voronin A.A., Fedotov A.B., Zheltikov A.M. // *Optics Letters*. – 2010. – Т. 35. – № 7. – С. 919–921. JIF WoS: 4.093 / 0,35 п.л. / вклад соискателя 30%.
  83. Doronina-Amitonova L.V. Nonlinear-optical brain anatomy by harmonic-generation and coherent raman microscopy on a compact femtosecond laser platform / Lanin A.A., Ivashkina O.I., Zots M.A., Fedotov A.B., Anokhin K.V., Zheltikov A.M. // *Applied Physics Letters*. – 2011. – Т. 99. – № 23. – 231109. JIF WoS: 4.364 / 0,35 п.л. / вклад соискателя 20%.
  84. Voronin A.A. Ionization penalty in nonlinear raman neuroimaging / Fedotov I.V., Amitonova L.V., Ivashkina O.I., Zots M.A., Fedotov A.B., Anokhin K.V., Zheltikov A.M. // *Optics Letters*. – 2011. – Т. 36. – № 4. – С. 508–510. JIF WoS: 4.425 / 0,35 п.л. / вклад соискателя 20%.
  85. Doronina L.V. Tailoring the soliton output of a photonic crystal fiber for enhanced two-photon excited luminescence response from fluorescent protein biomarkers and neuron activity reporters / Fedotov I.V., Voronin A.A., Ivashkina O.I., Zots M.A., Anokhin K.V., E. V. Rostova, Fedotov A.B., Zheltikov A.M. // *Optics Letters*. – 2009. – Т. 34. – № 21. – С. 3373–3375. JIF WoS: 4.350 / 0,35 п.л. / вклад соискателя 20%.
  86. Доронина-Амитонова Л.В. Нейрофотоника: оптические методы исследования и управления мозгом / Федотов И.В., Федотов А.Б., Анохин К.В., Желтиков А.М. // *Успехи физических наук*. – 2015. – Т. 185. – № 4. – С. 371–392. ИФ РИИЦ: 1.947 / 2,54 п.л. / вклад соискателя 20%.
  87. Chebotarev A.S. Ultrafast supercontinuum sculpting for two-photon spectroscopy and microscopy of ratiometric fluorescent indicators / Raevsky R.I., Linovsky G.N., Kostyuk A.I., Belousov V.V., Fedotov A.B., Bilan D.S., Lanin A.A. // *Applied Physics Letters*. – 2024. – Т. 124. – № 24. – 243704. JIF WoS: 3.462 / 0,81 п.л. / вклад соискателя 10%.
  88. Chebotarev A.S. Multiphoton tools for hydrogen peroxide imaging in vivo with subcellular resolution / Kelmanson I.V., Ivanova A.D., Khramova Y.V., Katrukha V.A., Kotova D.A., Raevskii R.I., Moschenko A.A., Linovsky G.N., Fedotov A.B., Belousov V.V., Bilan D.S., Lanin A.A. // *Sensors and Actuators B: Chemical*. – 2024. – Т. 410. – 135646. JIF WoS: 8.464 / 1,27 п.л. / вклад соискателя 10%.
  89. Chebotarev A.S. Single-beam dual-color alternate-pathway two-photon spectroscopy: Toward an optical toolbox for redox biology / Lanin A.A., Raevskii R.I., Kostyuk A.I., Smolyarova D.D., Bilan D.S., Savitskii I.V., Fedotov A.B., Belousov V.V., Zheltikov A.M. // *Journal of Raman Spectroscopy*. – 2021. – Т. 52. – № 9. – С. 1552–1560. JIF WoS: 2.561 / 1,04 п.л. / вклад соискателя 10%.
  90. Petrov N.L. High-brightness photon pairs and strongly antibunching heralded single photons from a highly nonlinear optical fiber / Fedotov A.B., Zheltikov A.M. // *Optics Communications*. – 2019. – Т. 450. – № 1. – С. 304–307. JIF WoS: 2.417 / 0,46 п.л. / вклад соискателя 40%.
  91. Petrov N.L. Polarization map of correlated sideband generation in vectorial four-wave mixing / Voronin A.A., Fedotov A.B., Zheltikov A.M. // *Applied Physics Letters*. – 2017. – Т. 110. – № 18. – 181108. JIF WoS: 3.684 / 0,46 п.л. / вклад соискателя 20%.
  92. Petrov N.L. Entropy- and purity-tailored broadband entanglement from vectorial four-wave mixing: Insights from pulse modes and classical-field dynamics / Voronin A.A., Fedotov A.B., Zheltikov A.M. // *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics*. – 2019. – Т. 100. – № 3. – 033837. JIF WoS: 2.937 / 0,81 п.л. / вклад соискателя 30%.

93. Petrov N.L. Ultrahigh-contrast cross-polarized entangled photon pairs from a strongly birefringent photonic-crystal fiber / Voronin A.A., Fedotov A.B., Zheltikov A.M. // Applied Physics B. – 2019. – Т. 125. – 54. JIF WoS: 2.573 / 0,69 п.л. / вклад соискателя 30%.
94. Petrovniin K.V. Broadband quantum light on a fiber-optic platform: from biphotons and heralded single photons to bright squeezed vacuum / Smirnov M.A., Fedotov I.V., Voronin A.A., Latypov I.Z., Shmelev A.G., Talipov A.A., Matveeva T.V., Fedotov A.B., Moiseev S.A., Zheltikov A.M. // Laser Physics Letters. – 2019. – Т. 16. – № 7. – 075401. JIF WoS: 2.221 / 0,58 п.л. / вклад соискателя 20%.
95. Хайруллин А.Ф. Источник междипазонных фотонных пар на основе фотонно-кристаллического волокна с непрерывной накачкой / Смирнова А.М., Арсланов Н.М., Федотов А.Б., Моисеев С.А., Федотов И.В., Смирнов М.А. // Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики. – 2024. – Т. 119. – № 5. – С. 336–342. ИФ РИНЦ: 0.731 / 0,81 п.л. / вклад соискателя 20%.
96. Старшинов Н.С. Четырехфотонное смещение в фантомной волоконной спектроскопии / Белинский А.В., Федотов А.Б. // Квантовая электроника. – 2023. – Т. 53. – № 9. – С. 725–730. ИФ РИНЦ: 0.906 / 0,69 п.л. / вклад соискателя 50%.

Патент РФ. «Сенсорное устройство на основе планарных и цилиндрических полых световодов с интегрированной интерферометрической системой». Авторы: Федотов А.Б., Желтиков А.М. Номер: 2432568 Дата публикации патента: 27 октября 2011 г.

## СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННЫХ ИСТОЧНИКОВ

1. Agrawal G. Nonlinear Fiber Optics. Fifth Edition. Boston: Academic Press, 2013. 629 p.
2. Knight J.C. et al. All-silica single-mode optical fiber with photonic crystal cladding // Opt. Lett. Optica Publishing Group, 1996. Vol. 21, № 19. P. 1547–1549.
3. Желтиков А.М. Оптика микроструктурированных волокон. Наука. Москва, 2004.
4. Knight J.C. et al. Photonic band gap guidance in optical fibers // Science. 1998. Vol. 282, № 5393. P. 1476–1478.
5. Monro T.M. et al. Holey Optical Fibers: An Efficient Modal Model // J. Light. Technol. IEEE, 1999. Vol. 17, № 6. P. 1093.
6. Russell P. Photonic crystal fibers // Science. 2003. Vol. 299, № 5605. P. 358–362.
7. Knight J.C. Photonic crystal fibres // Nature. Nature Publishing Group, 2003. Vol. 424, № 6950. P. 847–851.
8. Bjarklev A., Broeng J., Bjarklev A.S. Photonic Crystal Fibres. Boston, MA: Springer US, 2003.
9. Желтиков А.М. Дырчатые волноводы // Успехи Физических Наук. 2000. Vol. 170, № 11. P. 1203–1215.
10. Ranka J.K., Windeler R.S., Stentz A.J. Optical properties of high-delta air-silica microstructure optical fibers // Opt. Lett. Optica Publishing Group, 2000. Vol. 25, № 11. P. 796–798.
11. Reeves W.H. et al. Transformation and control of ultra-short pulses in dispersion-engineered photonic crystal fibres // Nature. Nature Publishing Group, 2003. Vol. 424, № 6948. P. 511–515.
12. Ferrando A. et al. Designing the properties of dispersion-flattened photonic crystal fibers // Opt. Express. Optica Publishing Group, 2001. Vol. 9, № 13. P. 687–697.
13. Ferrando A. et al. Nearly zero ultraflattened dispersion in photonic crystal fibers // Opt. Lett. Optica Publishing Group, 2000. Vol. 25, № 11. P. 790–792.
14. Reeves W.H. et al. Demonstration of ultra-flattened dispersion in photonic crystal fibers // Opt. Express. Optica Publishing Group, 2002. Vol. 10, № 14. P. 609–613.
15. Saitoh K., Florous N., Koshiba M. Ultra-flattened chromatic dispersion controllability using a defected-core photonic crystal fiber with low confinement losses // Opt. Express. Optica Publishing Group, 2005. Vol. 13, № 21. P. 8365–8371.
16. Желтиков А.М. Сверхкороткие импульсы и методы нелинейной оптики. Мрсква: Физматлит, 2006. 296 p.
17. Желтиков А.М. Микроструктурированные световоды в оптических технологиях. Москва: Физматлит, 2009. 191 p.
18. Алфимов М.В. et al. Фотонно-кристаллические волноводы с фотонной запрещенной зоной, перестраиваемой в области 930-1030 нм // Письма В ЖЭТФ. 2000. Vol. 71, № 12. P. 714–719.
19. Fedotov A.B. et al. Tuning the photonic band gap of sub-500-nm-pitch holey fibers in the 930–1030-nm range // Laser Phys. 2000. Vol. 10, № 5. P. 1086–1088.
20. Fedotov A.B. et al. Holey fibers with 0.4–32-m-lattice-constant photonic band-gap cladding: Fabrication, characterization, and nonlinear-optical measurements // Laser Phys. 2001. Vol. 11, № 1. P. 138–145.
21. Федотов А.Б. et al. Уширение спектра фемтосекундных лазерных импульсов в волноводах с фотоннокристаллической оболочкой // Письма В ЖЭТФ. 2000. Vol. 71, № 7. P. 407–411.
22. Fedotov A.B. et al. Enhanced spectral broadening of short laser pulses in high-numerical-aperture holey fibers // Appl. Phys. B Lasers Opt. Springer, 2001. Vol. 73. P. 181–184.

23. Alfano R.R., Shapiro S.L. Emission in the Region 4000 to 7000 Å Via Four-Photon Coupling in Glass // *Phys. Rev. Lett. American Physical Society*, 1970. Vol. 24, № 11. P. 584–587.
24. Yu W. et al. Spectral broadening of picosecond 1.06 μ pulse in KBr // *Opt. Commun.* 1975. Vol. 14, № 3. P. 344–347.
25. Werncke W. et al. An anomalous frequency broadening in water // *Opt. Commun.* 1972. Vol. 4, № 6. P. 413–415.
26. Corkum P.B., Rolland C., Srinivasan-Rao T. Supercontinuum Generation in Gases // *Phys. Rev. Lett. American Physical Society*, 1986. Vol. 57, № 18. P. 2268–2271.
27. Lin C., Stolen R.H. New nanosecond continuum for excited-state spectroscopy // *Appl. Phys. Lett.* 1976. Vol. 28, № 4. P. 216–218.
28. Baldeck P., Alfano R. Intensity effects on the stimulated four photon spectra generated by picosecond pulses in optical fibers // *J. Light. Technol.* 1987. Vol. 5, № 12. P. 1712–1715.
29. Yang G., Shen Y.R. Spectral broadening of ultrashort pulses in a nonlinear medium // *Opt. Lett. Optica Publishing Group*, 1984. Vol. 9, № 11. P. 510–512.
30. Becker P.C. et al. GENERATION OF TUNABLE 9 FEMTOSECOND OPTICAL PULSES IN THE NEAR INFRARED // *International Conference on Quantum Electronics (1988)*, paper PD15. *Optica Publishing Group*, 1988. P. PD15.
31. Schoenlein R.W. et al. Generation of Blue-Green 10 fs Pulses using an Excimer-Pumped Dye Amplifier // *Ultrafast Phenomena (1990)*, paper PDP7. *Optica Publishing Group*, 1990. P. PDP7.
32. Morioka T., Mori K., Saruwatari M. More than 100-wavelength-channel picosecond optical pulse generation from single laser source using supercontinuum in optical fibres // *Electron. Lett. IET Digital Library*, 1993. Vol. 29, № 10. P. 862–864.
33. *The Supercontinuum Laser Source: The Ultimate White Light* / ed. Alfano R.R. Cham: Springer International Publishing, 2022.
34. Jones D.J. et al. Carrier-Envelope Phase Control of Femtosecond Mode-Locked Lasers and Direct Optical Frequency Synthesis // *Science. American Association for the Advancement of Science*, 2000. Vol. 288, № 5466. P. 635–639.
35. Holzwarth R. et al. Optical Frequency Synthesizer for Precision Spectroscopy // *Phys. Rev. Lett. American Physical Society*, 2000. Vol. 85, № 11. P. 2264–2267.
36. Dudley J.M., Genty G., Coen S. Supercontinuum generation in photonic crystal fiber // *Rev. Mod. Phys. American Physical Society*, 2006. Vol. 78, № 4. P. 1135–1184.
37. Желтиков А.М. Да будет белый свет: генерация суперконтинуума сверхкороткими лазерными импульсами // *Успехи Физических Наук.* 2006. Vol. 176, № 6. P. 623–649.
38. Дианов Е.М. et al. ВКР-преобразование многосолитонных импульсов в кварцевых волоконных световодах // *Письма В ЖЭТФ.* 1985. Vol. 41. P. 242–244.
39. Mitschke F.M., Mollenauer L.F. Discovery of the soliton self-frequency shift // *Opt. Lett. Optica Publishing Group*, 1986. Vol. 11, № 10. P. 659–661.
40. Wai P.K.A., Chen H.H., Lee Y.C. Radiations by “solitons” at the zero group-dispersion wavelength of single-mode optical fibers // *Phys. Rev. A. American Physical Society*, 1990. Vol. 41, № 1. P. 426–439.
41. Akhmediev N., Karlsson M. Cherenkov radiation emitted by solitons in optical fibers // *Phys. Rev. A. American Physical Society*, 1995. Vol. 51, № 3. P. 2602–2607.
42. Zheltikov A. Multimode guided-wave non-3omega third-harmonic generation by ultrashort laser pulses // *JOSA B. Optica Publishing Group*, 2005. Vol. 22, № 10. P. 2263–2269.
43. Ortigosa-Blanch A. et al. Highly birefringent photonic crystal fibers // *Opt. Lett. Optica Publishing Group*, 2000. Vol. 25, № 18. P. 1325–1327.

44. Apolonski A. et al. Spectral shaping of supercontinuum in a cobweb photonic-crystal fiber with sub-20-fs pulses // *JOSA B. Optica Publishing Group*, 2002. Vol. 19, № 9. P. 2165–2170.
45. Hu M.L. et al. Frequency-tunable anti-Stokes line emission by eigenmodes of a birefringent microstructure fiber // *Opt. Express. Optica Publishing Group*, 2004. Vol. 12, № 9. P. 1932–1937.
46. Hu M.-L. et al. Polarization-demultiplexed two-color frequency conversion of femtosecond pulses in birefringent photonic-crystal fibers // *Opt. Express. Optica Publishing Group*, 2005. Vol. 13, № 16. P. 5947–5952.
47. Федотов А.Б. et al. Модовая структура и спектральные свойства излучения суперконтинуума, генерируемого в микроструктурированных волокнах // *Журнал Экспериментальной И Теоретической Физики*. 2002. Vol. 95, № 5. P. 851–860.
48. Fedotov A. et al. Microstructure-fiber sources of mode-separable supercontinuum emission for wave-mixing spectroscopy // *J. Raman Spectrosc.* 2002. Vol. 33, № 11–12. P. 888–895.
49. Fedotov A.B. et al. Frequency-tunable supercontinuum generation in photonic-crystal fibers by femtosecond pulses of an optical parametric amplifier // *JOSA B. Optica Publishing Group*, 2002. Vol. 19, № 9. P. 2156–2164.
50. Fedotov A.B. et al. Assorted non-linear optics in microchannel waveguides of photonic-crystal fibers // *Opt. Commun.* 2005. Vol. 255, № 4. P. 218–224.
51. Konorov S.O. et al. Anti-Stokes generation in guided modes of photonic-crystal fibers modified with an array of nanoholes // *Laser Phys. Lett. IOP Publishing*, 2004. Vol. 1, № 8. P. 402.
52. Konorov S. et al. Chirp-Controlled Anti-Stokes Frequency Conversion of Femtosecond Pulses in Photonic-Crystal Fibers // *Laser Phys.* 2004. Vol. 14. P. 772–775.
53. Fedotov A.B. et al. Photonic-molecule modes of a microstructure cobweb fiber // *Laser Phys.* 2002. Vol. 12. P. 1363–1367.
54. Федотов А.Б. et al. Локализация света и переключаемая генерация суперконтинуума в модах циклической фотонной молекулы микроструктурированного волокна // *Письма В ЖЭТФ*. 2002. Vol. 75, № 7. P. 374–378.
55. Agrawal G. *Nonlinear Fiber Optics*. Academic Press, 2007. 560 p.
56. Желтиков А.М. Сверхкороткие световые импульсы в полых волноводах // *Успехи Физических Наук*. 2002. Vol. 172, № 7. P. 743–776.
57. Желтиков А.М. Микроструктурированные световоды для нового поколения волоконно-оптических источников и преобразователей световых импульсов // *Успехи Физических Наук*. 2007. Vol. 177, № 7. P. 737–762.
58. Birks T.A., Wadsworth W.J., Russell P.S.J. Supercontinuum generation in tapered fibers // *Opt. Lett. Optica Publishing Group*, 2000. Vol. 25, № 19. P. 1415–1417.
59. Акимов Д.А. et al. Спектральное суживание субнаноджоулевых фемтосекундных импульсов лазера на хром-форстерите в перетянтом волокне // *Письма В ЖЭТФ*. 2001. Vol. 74, № 9. P. 515–519.
60. Akimov D.A. et al. Two-octave spectral broadening of subnanjoule Cr:forsterite femtosecond laser pulses in tapered fibers // *Appl. Phys. B Lasers Opt.* 2002. Vol. 74, № 4–5. P. 307–311.
61. Nisoli M., De Silvestri S., Svelto O. Generation of high energy 10 fs pulses by a new pulse compression technique // *Appl. Phys. Lett.* 1996. Vol. 68, № 20. P. 2793–2795.
62. Nisoli M. et al. Compression of high-energy laser pulses below 5 fs // *Opt. Lett. Optica Publishing Group*, 1997. Vol. 22, № 8. P. 522–524.
63. Sartania S. et al. Generation of 0.1-TW 5-fs optical pulses at a 1-kHz repetition rate // *Opt. Lett. Optica Publishing Group*, 1997. Vol. 22, № 20. P. 1562–1564.

64. Zhavoronkov N., Korn G. Generation of Single Intense Short Optical Pulses by Ultrafast Molecular Phase Modulation // *Phys. Rev. Lett. American Physical Society*, 2002. Vol. 88, № 20. P. 203901.
65. Durfee C.G. et al. Ultrabroadband phase-matched optical parametric generation in the ultraviolet by use of guided waves // *Opt. Lett. Optica Publishing Group*, 1997. Vol. 22, № 20. P. 1565–1567.
66. Koroteev N.I., Zheltikov A.M. Chirp control in third-harmonic generation due to cross-phase modulation // *Appl. Phys. B Lasers Opt.* 1998. Vol. 67, № 1. P. 53–57.
67. Rundquist, A. et al. Phase-Matched Generation of Coherent Soft X-rays // *Science*. 1998. Vol. 280, № 5368. P. 1412–1415.
68. Constant E. et al. Optimizing High Harmonic Generation in Absorbing Gases: Model and Experiment // *Phys. Rev. Lett. American Physical Society*, 1999. Vol. 82, № 8. P. 1668–1671.
69. Miles R.B., Laufer G., Bjorklund G.C. Coherent anti-Stokes Raman scattering in a hollow dielectric waveguide // *Appl. Phys. Lett.* 1977. Vol. 30, № 8. P. 417–419.
70. Cregan R.F. et al. Single-Mode Photonic Band Gap Guidance of Light in Air // *Science. American Association for the Advancement of Science*, 1999. Vol. 285, № 5433. P. 1537–1539.
71. Göbel W., Nimmerjahn A., Helmchen F. Distortion-free delivery of nanojoule femtosecond pulses from a Ti:sapphire laser through a hollow-core photonic crystal fiber // *Opt. Lett. Optica Publishing Group*, 2004. Vol. 29, № 11. P. 1285–1287.
72. Hasegawa A., Matsumoto M. *Optical Solitons in Fibers*. 3d Edition. Springer, 2003.
73. Ouzounov D.G. et al. Generation of Megawatt Optical Solitons in Hollow-Core Photonic Band-Gap Fibers // *Science. American Association for the Advancement of Science*, 2003. Vol. 301, № 5640. P. 1702–1704.
74. Ouzounov D.G. et al. Soliton pulse compression in photonic band-gap fibers. // *Opt. Express. Optica Publishing Group*, 2005. Vol. 13, № 16. P. 6153–6159.
75. Коноров С.О. et al. Самокомпрессия субгигаваттных фемтосекундных лазерных импульсов в полом фотонно-кристаллическом волноводе // *Письма В ЖЭТФ*. 2005. Vol. 81, № 2. P. 65–69.
76. Zheltikova D.A. et al. Switching intense laser pulses guided by Kerr-effect-modified modes of a hollow-core photonic-crystal fiber // *Phys. Rev. E. American Physical Society*, 2005. Vol. 71, № 2. P. 026609.
77. Konorov S.O. et al. Limiting of microjoule femtosecond pulses in air-guided modes of a hollow photonic-crystal fiber // *Phys. Rev. A. American Physical Society*, 2004. Vol. 70, № 2. P. 023807.
78. Konorov S.O. et al. Experimental demonstration of a photonic-crystal-fiber optical diode // *Appl. Phys. B Lasers Opt.* 2004. Vol. 78, № 5. P. 547–550.
79. Konorov S.O. et al. Self-channeling of subgigawatt femtosecond laser pulses in a ground-state waveguide induced in the hollow core of a photonic crystal fiber // *Opt. Lett. Optica Publishing Group*, 2004. Vol. 29, № 13. P. 1521–1523.
80. Ruff Z. et al. Polymer-composite fibers for transmitting high peak power pulses at 1.55 microns // *Opt. Express. Optica Publishing Group*, 2010. Vol. 18, № 15. P. 15697–15703.
81. Stillinger F.H., Herrick D.R. Bound states in the continuum // *Phys. Rev. A. American Physical Society*, 1975. Vol. 11, № 2. P. 446–454.
82. Benabid F. Hollow-core photonic bandgap fibre: new light guidance for new science and technology // *Philos. Trans. R. Soc. Math. Phys. Eng. Sci. Royal Society*, 2006. Vol. 364, № 1849. P. 3439–3462.

83. Im S.-J., Husakou A., Herrmann J. Guiding properties and dispersion control of kagome lattice hollow-core photonic crystal fibers // *Opt. Express*. Optica Publishing Group, 2009. Vol. 17, № 15. P. 13050–13058.
84. Skibina J.S. et al. A chirped photonic-crystal fibre // *Nat. Photonics*. Nature Publishing Group, 2008. Vol. 2, № 11. P. 679–683.
85. Carpeggiani P.A. et al. Extreme Raman red shift: ultrafast multimode nonlinear space-time dynamics, pulse compression, and broadly tunable frequency conversion // *Optica*. Optica Publishing Group, 2020. Vol. 7, № 10. P. 1349–1354.
86. Andriukaitis G. et al. Hollow-fiber compression of 6 mJ pulses from a continuous-wave diode-pumped single-stage Yb,Na:CaF<sub>2</sub> chirped pulse amplifier // *Opt. Lett.* 2011. Vol. 36, № 10. P. 1914–1916.
87. Voronin A.A. et al. Ionization-assisted guided-wave pulse compression to extreme peak powers and single-cycle pulse widths in the mid-infrared // *Opt. Lett.* Optica Publishing Group, 2010. Vol. 35, № 21. P. 3640–3642.
88. Voronin A.A., Zheltikov A.M. Sub-half-cycle field transients from shock-wave-assisted soliton self-compression // *Sci. Rep.* 2020. Vol. 10, № 1. P. 12253.
89. Balciunas T. et al. A strong-field driver in the single-cycle regime based on self-compression in a kagome fibre // *Nat. Commun.* Nature Publishing Group, 2015. Vol. 6, № 1. P. 6117.
90. Voronin A.A., Zheltikov A.M. Subcycle solitonic breathers // *Phys. Rev. A*. 2014. Vol. 90, № 4. P. 043807.
91. Zheltikov A.M. et al. Frequency-Tunable Multigigawatt Sub-Half-Cycle Light Pulses from Coupled-State Dynamics of Optical Solitons and Impulsively Driven Molecular Vibrations // *Phys. Rev. Lett.* American Physical Society, 2010. Vol. 105, № 10. P. 103901.
92. Stepanov E.A. et al. Multioctave supercontinua from shock-coupled soliton self-compression // *Phys. Rev. A*. American Physical Society, 2019. Vol. 99, № 3. P. 033855.
93. Wei C. et al. Negative curvature fibers // *Adv. Opt. Photonics*. Optica Publishing Group, 2017. Vol. 9, № 3. P. 504–561.
94. Yu F., Knight J.C. Negative Curvature Hollow-Core Optical Fiber // *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* 2016. Vol. 22, № 2. P. 146–155.
95. Fedotov A.B. et al. Coherent anti-Stokes Raman scattering in isolated air-guided modes of a hollow-core photonic-crystal fiber // *Phys. Rev. A*. American Physical Society, 2004. Vol. 70, № 4. P. 045802.
96. Benabid F. et al. Ultrahigh Efficiency Laser Wavelength Conversion in a Gas-Filled Hollow Core Photonic Crystal Fiber by Pure Stimulated Rotational Raman Scattering in Molecular Hydrogen // *Phys. Rev. Lett.* American Physical Society, 2004. Vol. 93, № 12. P. 123903.
97. Marty P.T., Morel J., Feurer T. All-Fiber Multi-Purpose Gas Cells and Their Applications in Spectroscopy // *J. Light. Technol.* 2010. Vol. 28, № 8. P. 1236–1240.
98. Konorov S.O., Fedotov A.B., Zheltikov A.M. Enhanced four-wave mixing in a hollow-core photonic-crystal fiber // *Opt. Lett.* Optica Publishing Group, 2003. Vol. 28, № 16. P. 1448–1450.
99. Konorov S.O. et al. Phase-matched four-wave mixing of sub-100-TW/cm<sup>2</sup> femtosecond laser pulses in isolated air-guided modes of a hollow photonic-crystal fiber // *Phys. Rev. E Stat. Nonlin. Soft Matter Phys.* 2004. Vol. 70, № 6 Pt 2. P. 066625.
100. Konorov S.O. et al. Phase-matched waveguide four-wave mixing scaled to higher peak powers with large-core-area hollow photonic-crystal fibers // *Phys. Rev. E*. American Physical Society, 2005. Vol. 71, № 5. P. 057603.
101. Benabid F. et al. Electromagnetically-induced transparency grid in acetylene-filled hollow-core PCF // *Opt. Express*. Optica Publishing Group, 2005. Vol. 13, № 15. P. 5694–5703.

102. Wang Y.Y. et al. Compact and portable multiline UV and visible Raman lasers in hydrogen-filled HC-PCF // *Opt. Lett.* Optica Publishing Group, 2010. Vol. 35, № 8. P. 1127–1129.
103. Benabid F., Knight J.C., Russell P.S.J. Particle levitation and guidance in hollow-core photonic crystal fiber // *Opt. Express.* Optica Publishing Group, 2002. Vol. 10, № 21. P. 1195–1203.
104. Коноров С.О. et al. Собственные моды полых фотонно-кристаллических волокон // *Письма В ЖЭТФ.* 2002. Vol. 76, № 2002. P. 401–405.
105. Федотов А.Б. et al. Волноводные свойства и спектр собственных мод полых фотонно-кристаллических волокон // *Квантовая Электроника.* 2003. Vol. 33, № 3. P. 271–274.
106. Marcuse M. *Theory of dielectric optical waveguides.* 2nd Ed. Boston: Academic Press, 1991.
107. Zhu Z., Brown T.G. Full-vectorial finite-difference analysis of microstructured optical fibers // *Opt. Express.* Optica Publishing Group, 2002. Vol. 10, № 17. P. 853–864.
108. Monro T.M. et al. Sensing with microstructured optical fibres // *Meas. Sci. Technol.* 2001. Vol. 12, № 7. P. 854.
109. Kawanishi T., Izutsu M. Coaxial periodic optical waveguide // *Opt. Express.* Optica Publishing Group, 2000. Vol. 7, № 1. P. 10–22.
110. Ouyang G., Xu Y., Yariv A. Comparative study of air-core and coaxial Bragg fibers: single-mode transmission and dispersion characteristics // *Opt. Express.* Optica Publishing Group, 2001. Vol. 9, № 13. P. 733–747.
111. Broeng J. et al. Analysis of air-guiding photonic bandgap fibers // *Opt. Lett.* Optica Publishing Group, 2000. Vol. 25, № 2. P. 96–98.
112. Saitoh K., Koshiha M. Leakage loss and group velocity dispersion in air-core photonic bandgap fibers // *Opt. Express.* Optica Publishing Group, 2003. Vol. 11, № 23. P. 3100–3109.
113. Johnson S.G., Joannopoulos J.D. Block-iterative frequency-domain methods for Maxwell's equations in a planewave basis // *Opt. Express.* Optica Publishing Group, 2001. Vol. 8, № 3. P. 173–190.
114. Koshiha M. Full-Vector Finite Element Solution of Photonic Crystal Fibers // *Integrated Photonics Research (2002)*, paper IWD1. Optica Publishing Group, 2002. P. IWD1.
115. Modinos A., Stefanou N., Yannopoulos V. Applications of the layer-KKR method to photonic crystals // *Opt. Express.* Optica Publishing Group, 2001. Vol. 8, № 3. P. 197–202.
116. Felbacq D., Tayeb G., Maystre D. Scattering by a random set of parallel cylinders // *JOSA A.* Optica Publishing Group, 1994. Vol. 11, № 9. P. 2526–2538.
117. Leung K.M. Defect modes in photonic band structures: A green's function approach using vector wannier functions // *J. Opt. Soc. Am. B Opt. Phys.* 1993. Vol. 10, № 2. P. 303–306.
118. The Wannier function approach to photonic crystal circuits - IOPscience [Electronic resource]. URL: <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/0953-8984/15/30/201> (accessed: 08.06.2024).
119. Mogilevtsev D., Birks T.A., Russell P.S.J. Localized Function Method for Modeling Defect Modes in 2-D Photonic Crystals // *J. Light. Technol. IEEE,* 1999. Vol. 17, № 11. P. 2078.
120. Meade R.D. et al. Accurate theoretical analysis of photonic band-gap materials // *Phys. Rev. B.* 1993. Vol. 48, № 11. P. 8434–8437.
121. Guo S., Albin S. Simple plane wave implementation for photonic crystal calculations // *Opt. Express.* Optica Publishing Group, 2003. Vol. 11, № 2. P. 167–175.
122. Løkke M. et al. Group-theoretical description of the triangular air-silica photonic crystal - out-of-plane propagation // *Opt. Express.* 2004. Vol. 12, № 25. P. 6299–6312.

123. Pottage J.M. et al. Robust photonic band gaps for hollow core guidance in PCF made from high index glass // *Opt. Express*. Optica Publishing Group, 2003. Vol. 11, № 22. P. 2854–2861.
124. Xu Y., Lee R.K., Yariv A. Asymptotic analysis of Bragg fibers // *Opt. Lett.* Optica Publishing Group, 2000. Vol. 25, № 24. P. 1756–1758.
125. Воронин А.А. Пространственно-временная динамика предельно коротких световых импульсов в системах с комбинированной дисперсией и нелинейностью: Диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук. Москва: МГУ имени М.В.Ломоносова, 2013.
126. Серебрянников Е.Е. Спектрально-временные преобразования сверхкоротких лазерных импульсов в микроструктурированных световодах: Диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук. Москва: МГУ имени М.В.Ломоносова, 2010.
127. Computational Galerkin Methods | SpringerLink [Electronic resource]. URL: <https://link.springer.com/book/10.1007/978-3-642-85949-6> (accessed: 08.06.2024).
128. Szpula M. et al. Comparison of different methods for rigorous modeling of photonic crystal fibers // *Opt. Express*. Optica Publishing Group, 2006. Vol. 14, № 12. P. 5699–5714.
129. Brabec T., Krausz F. Nonlinear Optical Pulse Propagation in the Single-Cycle Regime // *Phys. Rev. Lett.* American Physical Society, 1997. Vol. 78, № 17. P. 3282–3285.
130. Ivanov A.A. et al. High-energy self-mode-locked Cr:forsterite laser near the soliton blowup threshold // *Opt. Lett.* 2020. Vol. 45, № 7. P. 1890.
131. Ivanov A.A. et al. Pulse-width-tunable 0.7 W mode-locked Cr: forsterite laser // *Opt. Lett.* Optica Publishing Group, 2014. Vol. 39, № 2. P. 205–208.
132. Иванов А.А. et al. Стабилизация генерации фемтосекундных импульсов в лазере с пассивной синхронизацией мод на кристалле Mg<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub>:Cr<sup>4+</sup> за счет спектральной разгрузки резонатора в боковые компоненты Келли // *Журнал Экспериментальной И Теоретической Физики*. 2024. Vol. 165, № 2. P. 196–206.
133. Гордиенко В.М. Твердотельная фемтосекундная лазерная система на Cr:forsterite: перспективы использования в фундаментальных исследованиях и в создании критических фемтотехнологий. МГУ, Москва: Препринт физического факультета №13/2000, 2000.
134. Migal E.A., Potemkin F.V., Gordienko V.M. Highly efficient optical parametric amplifier tunable from near- to mid-IR for driving extreme nonlinear optics in solids // *Opt. Lett.* Optica Publishing Group, 2017. Vol. 42, № 24. P. 5218–5221.
135. Chia S.-H. et al. A sub-100fs self-starting Cr:forsterite laser generating 1.4W output power // *Opt. Express*. Optica Publishing Group, 2010. Vol. 18, № 23. P. 24085–24091.
136. Malitson I.H. Interspecimen Comparison of the Refractive Index of Fused Silica\*,† // *JOSA*. Optica Publishing Group, 1965. Vol. 55, № 10. P. 1205–1209.
137. Snyder A.W., Young W.R. Modes of optical waveguides // *JOSA*. Optica Publishing Group, 1978. Vol. 68, № 3. P. 297–309.
138. Snyder A.W. Asymptotic Expressions for Eigenfunctions and Eigenvalues of a Dielectric or Optical Waveguide // *IEEE Trans. Microw. Theory Tech.* 1969. Vol. 17, № 12. P. 1130–1138.
139. Lin Q., Yaman F., Agrawal G.P. Photon-pair generation in optical fibers through four-wave mixing: Role of Raman scattering and pump polarization // *Phys. Rev. A*. American Physical Society, 2007. Vol. 75, № 2. P. 023803.
140. Ortigosa-Blanch A. et al. Ultrahigh birefringent nonlinear microstructured fiber // *IEEE Photonics Technol. Lett.* 2004. Vol. 16, № 7. P. 1667–1669.

141. Garay-Palmett K. et al. Photon pair-state preparation with tailored spectral properties by spontaneous four-wave mixing in photonic-crystal fiber // *Opt. Express*. Optica Publishing Group, 2007. Vol. 15, № 22. P. 14870–14886.
142. Fujii T. et al. A fusion-spliced near-field optical fiber probe using photonic crystal fiber for nanoscale thermometry based on fluorescence-lifetime measurement of quantum dots // *Sensors*. 2011. Vol. 11, № 9. P. 8358–8369.
143. Trebino R. et al. Measuring ultrashort laser pulses in the time-frequency domain using frequency-resolved optical gating // *Rev. Sci. Instrum.* 1997. Vol. 68, № 9. P. 3277–3295.
144. Linden S., Kuhl J., Giessen H. Amplitude and phase characterization of weak blue ultrashort pulses by downconversion // *Opt. Lett.* Optica Publishing Group, 1999. Vol. 24, № 8. P. 569–571.
145. Iaconis C., Walmsley I.A. Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses // *Opt. Lett.* Optica Publishing Group, 1998. Vol. 23, № 10. P. 792–794.
146. Fuji T. et al. Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of synchrotron radiation // *Optica*. Optica Publishing Group, 2023. Vol. 10, № 2. P. 302–307.
147. Kosik E.M. et al. Interferometric technique for measuring broadband ultrashort pulses at the sampling limit // *Opt. Lett.* Optica Publishing Group, 2005. Vol. 30, № 3. P. 326–328.
148. Fan G. et al. X-SEA-F-SPIDER characterization of over octave spanning pulses in the infrared range // *Opt. Express*. Optical Society of America, 2016. Vol. 24, № 12. P. 12713–12729.
149. Nomura Y. et al. Phase-stable sub-cycle mid-infrared conical emission from filamentation in gases // *Opt. Express*. 2012. Vol. 20, № 22. P. 24741–24747.
150. Lanin A.A. et al. Time-domain spectroscopy in the mid-infrared // *Sci. Rep.* 2014. Vol. 4. P. 6670.
151. Mitschke F.M., Mollenauer L.F. Discovery of the soliton self-frequency shift // *Opt. Lett.* 1986. Vol. 11, № 10. P. 659–661.
152. Liu X. et al. Soliton self-frequency shift in a short tapered air–silica microstructure fiber // *Opt. Lett.* Optica Publishing Group, 2001. Vol. 26, № 6. P. 358–360.
153. Serebryannikov E.E. et al. Soliton self-frequency shift of 6-fs pulses in photonic-crystal fibers // *Appl. Phys. B*. 2005. Vol. 81, № 5. P. 585–588.
154. Serebryannikov E.E. et al. Nonlinear-optical spectral transformation of few-cycle laser pulses in photonic-crystal fibers // *Phys. Rev. E*. American Physical Society, 2005. Vol. 72, № 5. P. 056603.
155. Teisset C.Y. et al. Soliton-based pump-seed synchronization for few-cycle OPCPA // *Opt. Express*. Optica Publishing Group, 2005. Vol. 13, № 17. P. 6550–6557.
156. Voronin A.A., Zheltikov A.M. Solitons evolving toward few- and single-cycle pulses in photonic-crystal fibers // *Laser Phys.* 2008. Vol. 18, № 12. P. 1416–1419.
157. Voronin A.A., Zheltikov A.M. Soliton-number analysis of soliton-effect pulse compression to single-cycle pulse widths // *Phys. Rev. A*. 2008. Vol. 78, № 6. P. 063834.
158. Liu B.-W. et al. Stabilized soliton self-frequency shift and 0.1-PHz sideband generation in a photonic-crystal fiber with an air-hole-modified core // *Opt. Express*. 2008. Vol. 16, № 19. P. 14987.
159. Voronin A.A., Zheltikov A.M. Sub-half-cycle field transients from shock-wave-assisted soliton self-compression // *Sci. Rep.* 2020. Vol. 10, № 1. P. 12253.
160. Stepanov E.A. et al. Multioctave supercontinua from shock-coupled soliton self-compression // *Phys. Rev. A*. 2019. Vol. 99, № 3. P. 033855.
161. Balciunas T. et al. A strong-field driver in the single-cycle regime based on self-compression in a kagome fibre // *Nat. Commun.* 2015. Vol. 6, № 1. P. 6117.

162. Fang X.-H. et al. An all-photonic-crystal-fiber wavelength-tunable source of high-energy sub-100fs pulses // *Opt. Commun.* 2013. Vol. 289. P. 123–126.
163. Gordon J.P. Theory of the soliton self-frequency shift // *Opt. Lett.* 1986. Vol. 11, № 10. P. 662–664.
164. Voronin A.A., Zheltikov A.M. Soliton self-frequency shift decelerated by self-steepening // *Opt. Lett.* 2008. Vol. 33, № 15. P. 1723–1725.
165. Haus H.A., Fujimoto J.G., Ippen E.P. Structures for additive pulse mode locking // *JOSA B. Optica Publishing Group*, 1991. Vol. 8, № 10. P. 2068–2076.
166. Rozanov N.N. Dissipative optical solitons // *J. Opt. Technol. S.I. Vavilov Optical Institute*, 2009. Vol. 76, № 4. P. 187–198.
167. Турицын С.К. et al. Диссипативные солитоны в волоконных лазерах // *Успехи Физических Наук*. 2016. Vol. 186, № 7. P. 713–742.
168. Fedotov I.V. et al. All-fiber ultralow-energy soliton management at 1.55  $\mu$  m // *Laser Phys. Lett.* 2014. Vol. 11, № 12. P. 125801.
169. Cormack I.G. et al. Observation of soliton self-frequency shift in photonic crystal fibre // *Electron. Lett. IET Digital Library*, 2002. Vol. 38, № 4. P. 167–169.
170. Fedotov I.V. et al. Generation of 20 fs, 20 MW pulses in the near-infrared by pulse compression using a large-mode-area all-silica photonic band-gap fiber // *J. Mod. Opt. Taylor & Francis*, 2010. Vol. 57, № 19. P. 1867–1870.
171. Skryabin D.V. et al. Soliton Self-Frequency Shift Cancellation in Photonic Crystal Fibers // *Science*. 2003. Vol. 301, № 5640. P. 1705–1708.
172. Fedotov I.V. et al. Generation of 20 fs, 20 MW pulses in the near-infrared by pulse compression using a large-mode-area all-silica photonic band-gap fiber // *J. Mod. Opt.* 2010. Vol. 57, № 19. P. 1867–1870.
173. Fedotov A.B. et al. Powerful wavelength-tunable ultrashort solitons in a solid-core photonic-crystal fiber // *Opt. Lett.* 2009. Vol. 34, № 6. P. 851–853.
174. Knight J.C. et al. Large mode area photonic crystal fibre // *Electron. Lett. IET Digital Library*, 1998. Vol. 34, № 13. P. 1347–1348.
175. Furusawa K. et al. Cladding pumped Ytterbium-doped fiber laser with holey inner and outer cladding // *Opt. Express. Optica Publishing Group*, 2001. Vol. 9, № 13. P. 714–720.
176. Südmeyer T. et al. Nonlinear femtosecond pulse compression at high average power levels by use of a large-mode-area holey fiber // *Opt. Lett. Optica Publishing Group*, 2003. Vol. 28, № 20. P. 1951–1953.
177. Mitrofanov A.V. et al. Microjoule supercontinuum generation by stretched megawatt femtosecond laser pulses in a large-mode-area photonic-crystal fiber // *Opt. Commun.* 2007. Vol. 280, № 2. P. 453–456.
178. Poletti F. et al. Inverse design and fabrication tolerances of ultra-flattened dispersion holey fibers // *Opt. Express. Optica Publishing Group*, 2005. Vol. 13, № 10. P. 3728–3736.
179. Musin R.R., Zheltikov A.M. Designing dispersion-compensating photonic-crystal fibers using a genetic algorithm // *Opt. Commun.* 2008. Vol. 281, № 4. P. 567–572.
180. Trebino R. et al. Measuring ultrashort laser pulses in the time-frequency domain using frequency-resolved optical gating // *Rev. Sci. Instrum.* 1997. Vol. 68, № 9. P. 3277–3295.
181. Chan M.-C. et al. 1.2–2.2- $\mu$ m tunable Raman soliton source based on a Cr:Forsterite-laser and a photonic-crystal fiber // 2008 Conference on Lasers and Electro-Optics and 2008 Conference on Quantum Electronics and Laser Science. 2008. P. 1–2.
182. Lanin A.A., Fedotov A.B., Zheltikov A.M. Ultrafast three-dimensional submicrometer-resolution readout of coherent optical-phonon oscillations with shaped unamplified laser pulses at 20 MHz // *Opt. Lett. Optica Publishing Group*, 2012. Vol. 37, № 9. P. 1508–1510.

183. Serebryannikov E.E., Zheltikov A.M. Soliton self-frequency shift with diffraction-suppressed wavelength variance and timing jitter // *J. Opt. Soc. Am. B.* 2006. Vol. 23, № 9. P. 1882–1887.
184. Knight J.C. Photonic crystal fibres // *Nature.* 2003. Vol. 424, № 6950. P. 847–851.
185. Serebryannikov E.E., Zheltikov A.M. Nanomanagement of dispersion, nonlinearity, and gain of photonic-crystal fibers: qualitative arguments of the Gaussian-mode theory and nonperturbative numerical analysis // *JOSA B. Optica Publishing Group,* 2006. Vol. 23, № 8. P. 1700–1707.
186. Zheltikov A.M. Nanomanaging dispersion, nonlinearity, and gain of photonic-crystal fibers // *Appl. Phys. B.* 2006. Vol. 84, № 1–2. P. 69–74.
187. Fedotov A.B. et al. Highly nonlinear photonic-crystal fibers for the spectral transformation of Cr: forsterite laser pulses // *Opt. Commun.* 2006. Vol. 267, № 2. P. 505–510.
188. Fedotov A.B. et al. Dispersion and nonlinearity nanomanagement of highly nonlinear photonic-crystal fibers for the spectral transformation of Cr:forsterite laser pulses // *Laser Phys. Lett.* IOP Publishing, 2006. Vol. 3, № 6. P. 301.
189. Fedotov A.B. et al. Spectral transformation of femtosecond Cr:forsterite laser pulses in a flint-glass photonic-crystal fiber // *Appl. Opt.* Optica Publishing Group, 2006. Vol. 45, № 26. P. 6823–6830.
190. Fedotov A.B., Yakovlev V.V., Zheltikov A.M. Generation of a cross-phase-modulated third harmonic with unamplified femtosecond cr:forsterite laser pulses in a holey fiber // *Laser Phys.* 2002. Vol. 12, № 2. P. 268–272.
191. Akimov D.A. et al. Generation of a spectrally asymmetric third harmonic with unamplified 30-fs Cr:forsterite laser pulses in a tapered fiber // *Appl. Phys. B Lasers Opt.* Springer, 2003. Vol. 76. P. 515–519.
192. Serebryannikov E.E. et al. Third-harmonic generation by Raman-shifted solitons in a photonic-crystal fiber // *JOSA B. Optica Publishing Group,* 2006. Vol. 23, № 9. P. 1975–1980.
193. Fedotov A.B. et al. Multifrequency third-harmonic generation by red-shifting solitons in a multimode photonic-crystal fiber // *Phys. Rev. E. American Physical Society,* 2007. Vol. 75, № 1. P. 016614.
194. Fedotov A.B. et al. Soft-glass photonic-crystal fibers for frequency shifting and white-light spectral superbroadening of femtosecond Cr:forsterite laser pulses // *JOSA B. Optica Publishing Group,* 2006. Vol. 23, № 7. P. 1471–1477.
195. Bugar I. et al. Polarization-controlled dispersive wave redirection in dual-core photonic crystal fiber // *Laser Phys.* 2008. Vol. 18, № 12. P. 1420–1428.
196. Voronin A.A. et al. Spectral interference of frequency-shifted solitons in a photonic-crystal fiber // *Opt. Lett.* Optica Publishing Group, 2009. Vol. 34, № 5. P. 569–571.
197. Ivanov A.A., Podshivalov A.A., Zheltikov A.M. Frequency-shifted megawatt soliton output of a hollow photonic-crystal fiber for time-resolved coherent anti-Stokes Raman scattering microspectroscopy // *Opt. Lett.* Optica Publishing Group, 2006. Vol. 31, № 22. P. 3318–3320.
198. Evans C.L., Xie X.S. Coherent anti-stokes Raman scattering microscopy: chemical imaging for biology and medicine // *Annu. Rev. Anal. Chem. Palo Alto Calif.* 2008. Vol. 1. P. 883–909.
199. Andresen E.R. et al. Tunable light source for coherent anti-Stokes Raman scattering microspectroscopy based on the soliton self-frequency shift // *Opt. Lett.* Optica Publishing Group, 2006. Vol. 31, № 9. P. 1328–1330.
200. Sidorov-Biryukov D.A., Serebryannikov E.E., Zheltikov A.M. Time-resolved coherent anti-Stokes Raman scattering with a femtosecond soliton output of a photonic-crystal fiber // *Opt. Lett.* Optica Publishing Group, 2006. Vol. 31, № 15. P. 2323–2325.

201. Limpert J. et al. SPM-induced spectral compression of picosecond pulses in a single-mode Yb-doped fiber amplifier // *Advanced Solid-State Lasers* (2002), paper MD8. Optica Publishing Group, 2002. P. MD8.
202. Cundiff S.T. et al. Propagation of highly chirped pulses in fiber-optic communications systems // *J. Light. Technol.* 1999. Vol. 17, № 5. P. 811–816.
203. Planas S.A. et al. Spectral narrowing in the propagation of chirped pulses in single-mode fibers // *Opt. Lett.* 1993. Vol. 18, № 9. P. 699–701.
204. Washburn B.R., Buck J.A., Ralph S.E. Transform-limited spectral compression due to self-phase modulation in fibers // *Opt. Lett.* 2000. Vol. 25, № 7. P. 445–447.
205. Oberthaler M., Höpfel R.A. Spectral narrowing of ultrashort laser pulses by self-phase modulation in optical fibers // *Appl. Phys. Lett.* 1993. Vol. 63, № 8. P. 1017–1019.
206. Andresen E.R., Thøgersen J., Keiding S.R. Spectral compression of femtosecond pulses in photonic crystal fibers // *Opt. Lett.* 2005. Vol. 30, № 15. P. 2025–2027.
207. Sidorov-Biryukov D.A. et al. Spectral narrowing of chirp-free light pulses in anomalously dispersive, highly nonlinear photonic-crystal fibers // *Opt. Express*. Optica Publishing Group, 2008. Vol. 16, № 4. P. 2502–2507.
208. Rusu M., Okhotnikov O.G. All-fiber picosecond laser source based on nonlinear spectral compression // *Appl. Phys. Lett.* 2006. Vol. 89, № 9. P. 091118.
209. Lucek J.K., Blow K.J. Soliton self-frequency shift in telecommunications fiber // *Phys. Rev. A*. American Physical Society, 1992. Vol. 45, № 9. P. 6666–6674.
210. Ahmad I. et al. Frontend light source for short-pulse pumped OPCPA system // *Appl. Phys. B*. 2009. Vol. 97, № 3. P. 529–536.
211. Fedotov A.B. et al. Spectral compression of frequency-shifting solitons in a photonic-crystal fiber // *Opt. Lett.* 2009. Vol. 34, № 5. P. 662–664.
212. Mitrokhin V.P. et al. Spectral transformation of megawatt femtosecond optical pulses in large-mode-area high-index-step photonic-crystal fibers // *Laser Phys. Lett.* IOP Publishing, 2007. Vol. 4, № 7. P. 529.
213. Hell S.W. Toward fluorescence nanoscopy // *Nat. Biotechnol.* 2003. Vol. 21, № 11. P. 1347–1355.
214. Ахманов С.А., Коротеев Н.И. Методы нелинейной оптики в спектроскопии рассеяния света. Наука. Москва, 1981. 543 p.
215. Krishnamachari V.V., Potma E.O. Detecting lateral interfaces with focus-engineered coherent anti-Stokes Raman scattering microscopy // *J. Raman Spectrosc.* 2008. Vol. 39, № 5. P. 593–598.
216. Luan F. et al. All-solid photonic bandgap fiber // *Opt. Lett.* Optica Publishing Group, 2004. Vol. 29, № 20. P. 2369–2371.
217. Egorova O.N. et al. Single-mode all-silica photonic bandgap fiber with 20- $\mu\text{m}$  mode-field diameter // *Opt. Express*. Optica Publishing Group, 2008. Vol. 16, № 16. P. 11735–11740.
218. Marcatili E.A.J., Schmeltzer R.A. Hollow metallic and dielectric waveguides for long distance optical transmission and lasers // *Bell Syst. Tech. J.* 1964. Vol. 43, № 4. P. 1783–1809.
219. Желтиков А.М. Нелинейная оптика микроструктурированных волокон // *Успехи Физических Наук*. 2004. Vol. 174, № 1. P. 73–105.
220. Konorov S.O. et al. Laser ablation of dental tissues with picosecond pulses of 1.06- $\mu\text{m}$  radiation transmitted through a hollow-core photonic-crystal fiber // *Appl. Opt.* Optica Publishing Group, 2004. Vol. 43, № 11. P. 2251–2256.
221. Konorov S.O. et al. Hollow-core photonic-crystal fibres for laser dentistry // *Phys. Med. Biol.* 2004. Vol. 49, № 7. P. 1359–1368.

222. Four-harmonic database of laser-damage testing [Electronic resource]. URL: [https://www.spiedigitallibrary.org/conference-proceedings-of-spie/1624/1/Four-harmonic-database-of-laser-damage-testing/10.1117/12.60128.full#\\_=\\_](https://www.spiedigitallibrary.org/conference-proceedings-of-spie/1624/1/Four-harmonic-database-of-laser-damage-testing/10.1117/12.60128.full#_=_) (accessed: 04.06.2024).
223. Shephard J.D. et al. High energy nanosecond laser pulses delivered single-mode through hollow-core PBG fibers // *Opt. Express*. Optica Publishing Group, 2004. Vol. 12, № 4. P. 717–723.
224. Tauer J. et al. High-throughput of single high-power laser pulses by hollow photonic band gap fibers // *Laser Phys. Lett.* IOP Publishing, 2007. Vol. 4, № 6. P. 444.
225. Fu L. et al. Nonlinear optical endoscopy based on a double-clad photonic crystal fiber and a MEMS mirror // *Opt. Express*. Optica Publishing Group, 2006. Vol. 14, № 3. P. 1027–1032.
226. Flusberg B.A. et al. In vivo brain imaging using a portable 3.9 gram two-photon fluorescence microendoscope // *Opt. Lett.* Optica Publishing Group, 2005. Vol. 30, № 17. P. 2272–2274.
227. Lanin A.A. et al. Air-guided photonic-crystal-fiber pulse-compression delivery of multimegawatt femtosecond laser output for nonlinear-optical imaging and neurosurgery // *Appl. Phys. Lett.* 2012. Vol. 100, № 10. P. 101104.
228. Lenzner M. et al. Femtosecond Optical Breakdown in Dielectrics // *Phys. Rev. Lett.* American Physical Society, 1998. Vol. 80, № 18. P. 4076–4079.
229. Chen H. et al. A multimodal platform for nonlinear optical microscopy and microspectroscopy // *Opt. Express*. Optica Publishing Group, 2009. Vol. 17, № 3. P. 1282–1290.
230. Denk W., Strickler J.H., Webb W.W. Two-Photon Laser Scanning Fluorescence Microscopy // *Science*. American Association for the Advancement of Science, 1990. Vol. 248, № 4951. P. 73–76.
231. Wang B.-G. et al. In-vivo intratissue ablation by nanojoule near-infrared femtosecond laser pulses // *Cell Tissue Res.* 2007. Vol. 328, № 3. P. 515–520.
232. Chung S.H., Mazur E. Surgical applications of femtosecond lasers // *J. Biophotonics*. 2009. Vol. 2, № 10. P. 557–572.
233. Baumgart J. et al. Quantified femtosecond laser based opto-perforation of living GFSHR-17 and MTH53 a cells // *Opt. Express*. 2008. Vol. 16, № 5. P. 3021–3031.
234. Iwanaga S. et al. Slow  $\text{Ca}^{2+}$  wave stimulation using low repetition rate femtosecond pulsed irradiation // *Opt. Express*. Optica Publishing Group, 2006. Vol. 14, № 2. P. 717–725.
235. Fedotov A.B., Serebryannikov E.E., Zheltikov A.M. Ionization-induced blueshift of high-peak-power guided-wave ultrashort laser pulses in hollow-core photonic-crystal fibers // *Phys. Rev. A*. 2007. Vol. 76, № 5. P. 053811.
236. Федотов А.Б. et al. Полые фотонно-кристаллические волокна для передачи мегаваттных фемтосекундных импульсов в солитонном режиме // *Российские Нанотехнологии*. 2007. Vol. 2, № 3–4. P. 134–139.
237. Poladian L., Issa N.A., Monro T.M. Fourier decomposition algorithm for leaky modes of fibres with arbitrary geometry // *Opt. Express*. Optica Publishing Group, 2002. Vol. 10, № 10. P. 449–454.
238. Bessonov A.D., Zheltikov A.M. Pulse compression and multimegawatt optical solitons in hollow photonic-crystal fibers // *Phys. Rev. E*. American Physical Society, 2006. Vol. 73, № 6. P. 066618.
239. Pryamikov A.D. et al. Demonstration of a waveguide regime for a silica hollow - core microstructured optical fiber with a negative curvature of the core boundary in the spectral region > 3.5  $\mu\text{m}$  // *Opt. Express*. 2011. Vol. 19, № 2. P. 1441–1448.
240. Степанов Е.А. Формирование предельно коротких импульсов среднего инфракрасного диапазона и их применение для нелинейной спектроскопии

- полупроводников на основе генерации высших оптических гармоник: Диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук. Москва: МГУ имени М.В.Ломоносова, 2022.
241. Zeisberger M., Schmidt M.A. Analytic model for the complex effective index of the leaky modes of tube-type anti-resonant hollow core fibers // *Sci. Rep.* 2017. Vol. 7, № 1. P. 1–13.
  242. Peck E.R., Fisher D.J. Dispersion of Argon // *J Opt Soc Am. OSA*, 1964. Vol. 54, № 11. P. 1362–1364.
  243. Brée C., Demircan A., Steinmeyer G. Saturation of the All-Optical Kerr Effect // *Phys. Rev. Lett.* 2011. Vol. 106, № 18. P. 183902.
  244. Serebryannikov E.E., Zheltikov A.M. Quantum and Semiclassical Physics behind Ultrafast Optical Nonlinearity in the Midinfrared: The Role of Ionization Dynamics within the Field Half Cycle // *Phys. Rev. Lett.* 2014. Vol. 113, № 4. P. 043901.
  245. Желтиков А.М. Теория фотоионизации Келдыша: через барьеры // *Успехи Физических Наук.* 2017. Vol. 187, № 11. P. 1169–1204.
  246. Herrmann J. et al. Experimental Evidence for Supercontinuum Generation by Fission of Higher-Order Solitons in Photonic Fibers // *Phys. Rev. Lett.* 2002. Vol. 88, № 17. P. 173901.
  247. Hölzer P. et al. Femtosecond Nonlinear Fiber Optics in the Ionization Regime // *Phys. Rev. Lett.* 2011. Vol. 107, № 20. P. 203901.
  248. Chang W. et al. Influence of ionization on ultrafast gas-based nonlinear fiber optics // *Opt. Express.* 2011. Vol. 19, № 21. P. 21018–21027.
  249. Habib M.S. et al. Soliton-plasma nonlinear dynamics in mid-IR gas-filled hollow-core fibers // *Opt. Lett.* 2017. Vol. 42, № 11. P. 2232–2235.
  250. Zheltikov A. Phase-matched four-wave mixing of guided and leaky modes in an optical fiber // *Opt. Lett.* 2008. Vol. 33, № 8. P. 839–841.
  251. Tani F. et al. Effect of anti-crossings with cladding resonances on ultrafast nonlinear dynamics in gas-filled photonic crystal fibers // *Photonics Res.* 2018. Vol. 6, № 2. P. 84–88.
  252. Uebel P. et al. Broadband robustly single-mode hollow-core PCF by resonant filtering of higher-order modes // *Opt. Lett.* 2016. Vol. 41, № 9. P. 1961–1964.
  253. Elu Etxano U. et al. High average power and single-cycle pulses from a mid-IR optical parametric chirped pulse amplifier // *Optica.* 2017. Vol. 4. P. 1024.
  254. Savitsky I.V. et al. Single-Cycle, Multigigawatt Carrier–Envelope-Phase-Tailored Near-to-Mid-Infrared Driver for Strong-Field Nonlinear Optics // *ACS Photonics.* 2022.
  255. Savitsky I.V. et al. Sub-cycle pulse revealed with carrier-envelope phase control of soliton self-compression in anti-resonant hollow-core fiber // *Opt. Lett. Optica Publishing Group*, 2023. Vol. 48, № 17. P. 4468–4471.
  256. Савицкий И.В. et al. Модовый состав излучения суперконтинуума предельно коротких импульсов в полых антирезонансных волноводах: 3-4 (2) // *Письма В Журнал Экспериментальной И Теоретической Физики.* 2023. Vol. 117, № 3-4 (2). P. 285–291.
  257. Савицкий И.В. et al. Измерение временной структуры поля и фазы несущей однопериодных импульсов ближнего и среднего инфракрасного диапазона // *Письма В ЖЭТФ.* 2022. Vol. 115, № 7. P. 437–443.
  258. Eesley G.L. *Coherent Raman Spectroscopy.* Pergamon Press, 1981. 142 p.
  259. Eckbreth A.C. *Laser Diagnostics for Temperature and Species in Unsteady Combustion // Unsteady Combustion / ed. Culick F., Heitor M.V., Whitelaw J.H. Dordrecht: Springer Netherlands, 1996. P. 393–410.*
  260. Наумов А.Н. et al. Влияние высших волноводных мод на процессы когерентного четырехволнового взаимодействия в полых волноводах // *Письма В ЖЭТФ.* 2001. Vol. 73, № 6. P. 300–304.

261. Fedotov A.B. et al. Four-wave mixing of picosecond pulses in hollow fibers: expanding the possibilities of gas-phase analysis // *Appl. Phys. B*. 2001. Vol. 72, № 5. P. 575–582.
262. Potma E.O. et al. High-sensitivity coherent anti-Stokes Raman scattering microscopy with two tightly synchronized picosecond lasers // *Opt. Lett.* Optica Publishing Group, 2002. Vol. 27, № 13. P. 1168–1170.
263. Ganikhanov F. et al. Broadly tunable dual-wavelength light source for coherent anti-Stokes Raman scattering microscopy // *Opt. Lett.* Optica Publishing Group, 2006. Vol. 31, № 9. P. 1292–1294.
264. Paulsen H.N. et al. Coherent anti-Stokes Raman scattering microscopy with a photonic crystal fiber based light source // *Opt. Lett.* Optica Publishing Group, 2003. Vol. 28, № 13. P. 1123–1125.
265. Konorov S.O. et al. Cross-correlation frequency-resolved optical gating coherent anti-Stokes Raman scattering with frequency-converting photonic-crystal fibers // *Phys. Rev. E*. American Physical Society, 2004. Vol. 70, № 5. P. 057601.
266. Andresen E.R. et al. Broadband multiplex coherent anti-Stokes Raman scattering microscopy employing photonic-crystal fibers // *JOSA B*. Optica Publishing Group, 2005. Vol. 22, № 9. P. 1934–1938.
267. Fedotov A. et al. Supercontinuum-Generating Holey Fibers as New Broadband Sources for Spectroscopic Applications // *Laser Phys.* 2000. Vol. 10. P. 723–726.
268. Акимов Д.А. et al. Фемтосекундная спектроскопия когерентного антистоксова рассеяния света с использованием перестраиваемого излучения, генерируемого в микроструктурированных волокнах // *Квантовая Электроника*. 2004. Vol. 34. P. 473–481.
269. Konorov S. et al. Coherent anti-Stokes Raman scattering of slow light in a hollow planar photonic band-gap waveguide // *Laser Phys.* 2002. Vol. 12. P. 818–824.
270. Konorov S.O. et al. Hollow-core photonic-crystal fibers optimized for four-wave mixing and coherent anti-Stokes Raman scattering // *J. Raman Spectrosc.* 2003. Vol. 34, № 9. P. 688–692.
271. Mitrofanov A.V. et al. Highly birefringent silicate glass photonic-crystal fiber with polarization-controlled frequency-shifted output: A promising fiber light source for nonlinear Raman microspectroscopy // *Opt. Express*. Optica Publishing Group, 2006. Vol. 14, № 22. P. 10645–10651.
272. Xu C. et al. Multiphoton fluorescence excitation: new spectral windows for biological nonlinear microscopy // *Proc. Natl. Acad. Sci.* 1996. Vol. 93, № 20. P. 10763–10768.
273. Zipfel W.R., Williams R.M., Webb W.W. Nonlinear magic: multiphoton microscopy in the biosciences // *Nat. Biotechnol.* 2003. Vol. 21, № 11. P. 1369–1377.
274. Helmchen F., Denk W. Deep tissue two-photon microscopy // *Nat. Methods*. 2005. Vol. 2, № 12. P. 932–940.
275. Horton N.G. et al. In vivo three-photon microscopy of subcortical structures within an intact mouse brain // *Nat. Photonics*. 2013. Vol. 7, № 3. P. 205–209.
276. Campagnola P.J., Loew L.M. Second-harmonic imaging microscopy for visualizing biomolecular arrays in cells, tissues and organisms // *Nat. Biotechnol.* 2003. Vol. 21, № 11. P. 1356.
277. Weigelin B., Bakker G.-J., Friedl P. Third harmonic generation microscopy of cells and tissue organization // *J. Cell Sci.* 2016. Vol. 129, № 2. P. 245–255.
278. Campagnola P.J., Loew L.M. Second-harmonic imaging microscopy for visualizing biomolecular arrays in cells, tissues and organisms // *Nat. Biotechnol.* 2003. Vol. 21, № 11. P. 1356–1360.
279. Weigelin B., Bakker G.-J., Friedl P. Third harmonic generation microscopy of cells and tissue organization // *J. Cell Sci.* 2016. Vol. 129, № 2. P. 245–255.

280. Freudiger C.W. et al. Label-free biomedical imaging with high sensitivity by stimulated Raman scattering microscopy // *Science*. 2008. Vol. 322, № 5909. P. 1857–1861.
281. Cheng J.-X., Xie X.S. Coherent Anti-Stokes Raman Scattering Microscopy: Instrumentation, Theory, and Applications // *J. Phys. Chem. B. American Chemical Society*, 2004. Vol. 108, № 3. P. 827–840.
282. Шен И.П. Принципы нелинейной оптики. Наука. Москва, 1989. 557 p.
283. Fedotov A.V. et al. Short-Pulse Four-Wave Mixing Enhanced in Hollow Fibers as a Method of Highly Sensitive Gas-Phase Analysis // *Laser Phys*. 2001. Vol. 11, № 4. P. 515–521.
284. Benabid F. et al. Stimulated Raman Scattering in Hydrogen-Filled Hollow-Core Photonic Crystal Fiber // *Science*. 2002. Vol. 298, № 5592. P. 399–402.
285. Konorov S.O. et al. Phase-matched four-wave mixing and sensing of water molecules by coherent anti-Stokes Raman scattering in large-core-area hollow photonic-crystal fibers // *JOSA B. Optica Publishing Group*, 2005. Vol. 22, № 9. P. 2049–2053.
286. Коноров С.О., Федотов А.Б., Желтиков А.М. Четырехволновое взаимодействие в полых фотонно-кристаллических волокнах // *Письма В ЖЭТФ*. 2003. Vol. 77, № 8. P. 471–474.
287. Митрохин В.П. Микро- и наноструктуры для нелинейно-оптических преобразований и спектроскопии когерентного антистоксова рассеяния света: Диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук. Москва: МГУ имени М.В.Ломоносова, 2009.
288. Konorov S.O. et al. Phase-matched coherent anti-Stokes Raman scattering in isolated air-guided modes of hollow photonic-crystal fibers // *J. Raman Spectrosc*. 2005. Vol. 36, № 2. P. 129–133.
289. Kondrat'ev Y.N. et al. Hollow-core photonic-crystal lightguide for nonlinear spectroscopy of gaseous media // *J. Opt. Technol*. 2005. Vol. 72, № 7. P. 551–553.
290. Johnson S.G. et al. Low-loss asymptotically single-mode propagation in large-core OmniGuide fibers // *Opt. Express. Optica Publishing Group*, 2001. Vol. 9, № 13. P. 748–779.
291. Ахманов С.А., Коротеев Н.И. Методы нелинейной оптики в спектроскопии рассеяния света: активная спектроскопия рассеяния света. Москва: Наука, 1981. 544 p.
292. Lægsgaard J. et al. Material effects in air-guiding photonic bandgap fibers // *JOSA B. Optica Publishing Group*, 2003. Vol. 20, № 10. P. 2046–2051.
293. Fedotov I.V., Fedotov A.B., Zheltikov A.M. Raman-resonance-enhanced composite nonlinearity of air-guided modes in hollow photonic-crystal fibers // *Opt. Lett*. 2006. Vol. 31, № 17. P. 2604–2606.
294. Федотов И.В. Микроструктурированные световоды для генерации перестраиваемых по частоте сверхкоротких лазерных импульсов и элементов волоконно-оптических сенсоров: Ученая степень кандидата физико-математических наук. Москва: МГУ имени М.В.Ломоносова, 2011.
295. Федотов И.В. et al. Нелинейно-оптическая спектроноскопия световодных микроструктур // *Российские Нанотехнологии*. 2007. Vol. 2, № 1–2. P. 140–144.
296. Fedotov I.V. et al. Spectronanoscopia of photonic wires and supercontinuum generation by parametrically coupled Raman sidebands // *Opt. Lett. Optica Publishing Group*, 2008. Vol. 33, № 8. P. 800–802.
297. Федотов И.В., Федотов А.Б., Желтиков А.М. Нелинейно-оптическое преобразование наносекундных лазерных импульсов и управляемая генерация суперконтинуума в микроструктурированных световодах // *Журнал Экспериментальной И Теоретической Физики*. 2007. Vol. 132, № 5. P. 1017–1025.

298. Bridges T.J. et al. Broadband infrared generation in liquid-bromine-core optical fibers // *Opt. Lett.* Optica Publishing Group, 1982. Vol. 7, № 11. P. 566–568.
299. McMorro D., Lotshaw W.T., Kenney-Wallace G.A. Femtosecond optical Kerr studies on the origin of the nonlinear responses in simple liquids // *IEEE J. Quantum Electron.* IEEE, 1988. Vol. 24. P. 443–454.
300. Heisler I.A. et al. Time-resolved optical Kerr-effect investigation on CS<sub>2</sub>/polystyrene mixtures // *J. Chem. Phys.* 2005. Vol. 123, № 5. P. 054509.
301. He G.S., Burzynski R., Prasad. A novel nonlinear optical effect: Stimulated Raman–Kerr scattering in a benzene liquid-core fiber // *J. Chem. Phys.* 1900. Vol. 93. P. 7647–7655.
302. Yiou S. et al. Stimulated Raman scattering in an ethanol core microstructured optical fiber // *Opt. Express.* Optica Publishing Group, 2005. Vol. 13, № 12. P. 4786–4791.
303. Zhang R., Teipel J., Giessen H. Theoretical design of a liquid-core photonic crystal fiber for supercontinuum generation // *Opt. Express.* Optica Publishing Group, 2006. Vol. 14, № 15. P. 6800–6812.
304. Xu Y., Chen X., Zhu Y. Modeling of micro-diameter-scale liquid core optical fiber filled with various liquids // *Opt. Express.* Optica Publishing Group, 2008. Vol. 16, № 12. P. 9205–9212.
305. Voronin A.A. et al. Understanding the nonlinear-optical response of a liquid-core photonic-crystal fiber // *Laser Phys. Lett.* 2010. Vol. 7, № 1. P. 46–49.
306. Желтиков А.М. Цвета тонких пленок, антирезонансные явления в оптических системах и предельные потери собственных мод полых световодов // *Успехи Физических Наук.* 2008. Vol. 178, № 6. P. 619–629.
307. Желтиков А.М., Федотов А.Б. Сенсорное устройство на основе планарных и цилиндрических полых световодов с интегрированной интерферометрической системой: pat. 2432568 USA.
308. Федотов А.Б., Белоглазов В.И., Желтиков А.М. Структурно интегрируемые системы полых световодов и сенсорные устройства на их основе // *Российские Нанотехнологии.* 2008. Vol. 3, № 1–2. P. 61–67.
309. Mitrokhin V.P. et al. Coherent anti-Stokes Raman scattering microspectroscopy of silicon components with a photonic-crystal fiber frequency shifter // *Opt. Lett.* 2007. Vol. 32, № 23. P. 3471–3473.
310. Mitrokhin V.P. et al. Two-photon absorption-induced effects in femtosecond coherent anti-Stokes Raman-scattering microspectroscopy of silicon photonic components // *Laser Phys.* 2008. Vol. 18, № 12. P. 1411–1415.
311. Cho S.H. et al. Low-repetition-rate high-peak-power Kerr-lens mode-locked TiAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub> laser with a multiple-pass cavity // *Opt. Lett.* 1999. Vol. 24, № 6. P. 417–419.
312. Cho S.H. et al. Generation of 90-nJ pulses with a 4-MHz repetition-rate Kerr-lens mode-locked Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> laser operating with net positive and negative intracavity dispersion // *Opt. Lett.* 2001. Vol. 26, № 8. P. 560–562.
313. Lanin A.A., Fedotov A.B., Zheltikov A.M. Broadly wavelength- and pulse width-tunable high-repetition rate light pulses from soliton self-frequency shifting photonic crystal fiber integrated with a frequency doubling crystal // *Opt. Lett.* Optica Publishing Group, 2012. Vol. 37, № 17. P. 3618–3620.
314. Ланин А.А. Когерентные взаимодействия сверхкоротких импульсов ближнего и среднего инфракрасного диапазонов в задачах микроспектроскопии и дистанционного зондирования: Диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук. Москва: МГУ имени М.В.Ломоносова, 2014.
315. Chu S.-W. et al. Multimodal nonlinear spectral microscopy based on a femtosecond Cr:forsterite laser // *Opt. Lett.* 2001. Vol. 26, № 23. P. 1909–1911.

316. Sun C.-K. Higher Harmonic Generation Microscopy // *Microscopy Techniques* / ed. Rietdorf J. Springer Berlin Heidelberg, 2005. P. 17–56.
317. Lanin A.A. et al. The phase-controlled Raman effect // *Sci. Rep.* Nature Publishing Group, 2013. Vol. 3, № 1. P. 1842.
318. Marangoni M.A. et al. Narrow-bandwidth picosecond pulses by spectral compression of femtosecond pulses in second-order nonlinear crystals // *Opt. Express*. 2007. Vol. 15, № 14. P. 8884–8891.
319. Akhmanov S.A., Sukhorukov A.P., Chirkin A.S. Nonstationary phenomena and space-time analogy in nonlinear optics // *Sov Phys JETP*. 1969. Vol. 28. P. 748–757.
320. Ахманов С.А., Выслоух В.А., Чиркин А.С. Оптика фемтосекундных лазерных импульсов. Москва: Наука, 1988. 312 p.
321. Austin D.R. et al. Dispersive wave blue-shift in supercontinuum generation // *Opt. Express*. 2006. Vol. 14, № 25. P. 11997–12007.
322. Naumov A., Zheltikov A. Asymmetric spectral broadening and temporal evolution of cross-phase-modulated third harmonic pulses // *Opt. Express*. 2002. Vol. 10, № 2. P. 122–127.
323. Pestov D. et al. Optimizing the Laser-Pulse Configuration for Coherent Raman Spectroscopy // *Science*. 2007. Vol. 316, № 5822. P. 265–268.
324. Duncan M.D., Reintjes J., Manuccia T.J. Scanning coherent anti-Stokes Raman microscope // *Opt. Lett.* Optica Publishing Group, 1982. Vol. 7, № 8. P. 350–352.
325. Volkmer A. Vibrational imaging and microspectroscopies based on coherent anti-Stokes Raman scattering microscopy // *J. Phys. Appl. Phys.* 2005. Vol. 38, № 5. P. R59.
326. Savvin A.D. et al. Coherent anti-Stokes Raman metrology of phonons powered by photonic-crystal fibers // *Opt. Lett.* Optica Publishing Group, 2010. Vol. 35, № 7. P. 919–921.
327. Hay S.O., Roman W.C., Colket M.B. CVD diamond deposition processes investigation: CARS diagnostics/modeling // *J. Mater. Res.* 1990. Vol. 5, № 11. P. 2387–2397.
328. Bühler J., Prior Y. Back-scattering CARS diagnostics on CVD diamond // *Diam. Relat. Mater.* 1999. Vol. 8, № 2–5. P. 673–676.
329. Solin S.A., Ramdas A.K. Raman Spectrum of Diamond // *Phys. Rev. B*. 1970. Vol. 1, № 4. P. 1687–1698.
330. Evans C.L., Xie X.S. Coherent anti-Stokes Raman scattering microscopy: chemical imaging for biology and medicine // *Annu Rev Anal Chem.* 2008. Vol. 1. P. 883–909.
331. Palero J.A. et al. Short-wavelength two-photon excitation fluorescence microscopy of tryptophan with a photonic crystal fiber based light source // *Opt. Express*. Optica Publishing Group, 2005. Vol. 13, № 14. P. 5363–5368.
332. Isobe K. et al. Multi-Spectral Two-Photon Excited Fluorescence Microscopy Using Supercontinuum Light Source // *Jpn. J. Appl. Phys.* IOP Publishing, 2005. Vol. 44, № 1L. P. L167.
333. McConnell G., Riis E. Two-photon laser scanning fluorescence microscopy using photonic crystal fiber // *J. Biomed. Opt.* 2004. Vol. 9, № 5. P. 922–927.
334. Kano H., Hamaguchi H. In-vivo multi-nonlinear optical imaging of a living cell using a supercontinuum light source generated from a photonic crystal fiber // *Opt. Express*. Optica Publishing Group, 2006. Vol. 14, № 7. P. 2798–2804.
335. Kano H., Hamaguchi H. Supercontinuum dynamically visualizes a dividing single cell // *Anal. Chem.* 2007. Vol. 79, № 23. P. 8967–8973.
336. Yoneyama H. et al. Invited Article: CARS molecular fingerprinting using sub-100-ps microchip laser source with fiber amplifier // *APL Photonics*. 2018. Vol. 3, № 9. P. 092408.
337. Lefort C. et al. Multicolor multiphoton microscopy based on a nanosecond supercontinuum laser source // *J. Biophotonics*. 2016. Vol. 9, № 7. P. 709–714.

338. Liu Y. et al. Multimodal Nonlinear Microscopy by Shaping a Fiber Supercontinuum From 900 to 1160 nm // *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron. Publ. IEEE Lasers Electro-Opt. Soc.* 2012. Vol. 18, № 3.
339. Tu H. et al. Stain-free histopathology by programmable supercontinuum pulses // *Nat. Photonics.* 2016. Vol. 10, № 8. P. 534–540.
340. Cheng J.-X., Xie X.S. Coherent Anti-Stokes Raman Scattering Microscopy: Instrumentation, Theory, and Applications // *J. Phys. Chem. B.* 2004. Vol. 108, № 3. P. 827–840.
341. Evans C.L. et al. Chemical imaging of tissue in vivo with video-rate coherent anti-Stokes Raman scattering microscopy // *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* 2005. Vol. 102, № 46. P. 16807–16812.
342. Volkmer A., Book L.D., Xie X.S. Time-resolved coherent anti-Stokes Raman scattering microscopy: Imaging based on Raman free induction decay // *Appl. Phys. Lett.* 2002. Vol. 80, № 9. P. 1505–1507.
343. Rodriguez L.G., Lockett S.J., Holtom G.R. Coherent anti-stokes Raman scattering microscopy: a biological review // *Cytom. Part J. Int. Soc. Anal. Cytol.* 2006. Vol. 69, № 8. P. 779–791.
344. Potma E.O., Xie X.S. CARS Microscopy for Biology and Medicine // *Opt. Photonics News. Optica Publishing Group,* 2004. Vol. 15, № 11. P. 40–45.
345. Potma E.O. et al. Real-time visualization of intracellular hydrodynamics in single living cells // *Proc. Natl. Acad. Sci. Proceedings of the National Academy of Sciences,* 2001. Vol. 98, № 4. P. 1577–1582.
346. Nan X., Potma E.O., Xie X.S. Nonperturbative Chemical Imaging of Organelle Transport in Living Cells with Coherent Anti-Stokes Raman Scattering Microscopy // *Biophys. J.* 2006. Vol. 91, № 2. P. 728–735.
347. Djaker N. et al. Coherent anti-Stokes Raman scattering microscopy (CARS): Instrumentation and applications // *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. Accel. Spectrometers Detect. Assoc. Equip.* 2007. Vol. 571, № 1. P. 177–181.
348. Hayazawa N. et al. Amplification of coherent anti-Stokes Raman scattering by a metallic nanostructure for a high resolution vibration microscopy // *J. Appl. Phys.* 2004. Vol. 95, № 5. P. 2676–2681.
349. Baltog I., Baibarac M., Lefrant S. Coherent anti-Stokes Raman scattering on single-walled carbon nanotube thin films excited through surface plasmons // *Phys. Rev. B. American Physical Society,* 2005. Vol. 72, № 24. P. 245402.
350. Le T.T., Huff T.B., Cheng J.-X. Coherent anti-Stokes Raman scattering imaging of lipids in cancer metastasis // *BMC Cancer.* 2009. Vol. 9, № 1. P. 42.
351. Zumbusch A., Langbein W., Borri P. Nonlinear vibrational microscopy applied to lipid biology // *Prog. Lipid Res.* 2013. Vol. 52, № 4. P. 615–632.
352. Hellerer T. et al. Monitoring of lipid storage in *Caenorhabditis elegans* using coherent anti-Stokes Raman scattering (CARS) microscopy // *Proc. Natl. Acad. Sci.* 2007. Vol. 104, № 37. P. 14658–14663.
353. Doronina-Amitonova L.V. et al. Nonlinear-optical brain anatomy by harmonic-generation and coherent Raman microscopy on a compact femtosecond laser platform // *Appl. Phys. Lett.* 2011. Vol. 99, № 23. P. 231109.
354. Wang H. et al. Coherent anti-stokes Raman scattering imaging of axonal myelin in live spinal tissues // *Biophys. J.* 2005. Vol. 89, № 1. P. 581–591.
355. Svoboda K., Yasuda R. Principles of Two-Photon Excitation Microscopy and Its Applications to Neuroscience // *Neuron.* 2006. Vol. 50, № 6. P. 823–839.
356. Vogel A. et al. Mechanisms of femtosecond laser nanosurgery of cells and tissues // *Appl. Phys. B.* 2005. Vol. 81, № 8. P. 1015–1047.

357. Vogel A., Venugopalan V. Mechanisms of pulsed laser ablation of biological tissues // Chem. Rev. 2003. Vol. 103, № 2. P. 577–644.
358. Arnold C.L. et al. Computational model for nonlinear plasma formation in high NA micromachining of transparent materials and biological cells // Opt. Express. Optica Publishing Group, 2007. Vol. 15, № 16. P. 10303–10317.
359. Voronin A.A., Zheltikov A.M. Ionization penalty in nonlinear optical bioimaging // Phys. Rev. E. American Physical Society, 2010. Vol. 81, № 5. P. 051918.
360. Rau B. et al. Spectroscopy of short, intense laser pulses due to gas ionization effects // JOSA B. Optica Publishing Group, 1997. Vol. 14, № 3. P. 643–649.
361. Verhoef A.J. et al. Plasma-blueshift spectral shear interferometry for characterization of ultimately short optical pulses // Opt. Lett. Optica Publishing Group, 2009. Vol. 34, № 1. P. 82–84.
362. Berge L. et al. Ultrashort filaments of light in weakly-ionized, optically-transparent media // Rep. Prog. Phys. 2007. Vol. 70, № 10. P. 1633–1713.
363. Couairon A., Mysyrowicz A. Femtosecond filamentation in transparent media // Phys. Rep. 2007. Vol. 441, № 2. P. 47–189.
364. Voronin A.A. et al. Ionization penalty in nonlinear Raman neuroimaging // Opt. Lett. Optica Publishing Group, 2011. Vol. 36, № 4. P. 508–510.
365. Evans C.L. et al. Chemically-selective imaging of brain structures with CARS microscopy // Opt. Express. Optica Publishing Group, 2007. Vol. 15, № 19. P. 12076–12087.
366. Cheng J.-X. et al. Multiplex Coherent Anti-Stokes Raman Scattering Microspectroscopy and Study of Lipid Vesicles // J. Phys. Chem. B. 2002. Vol. 106, № 34. P. 8493–8498.
367. Келдыш Л.В. Ионизация в поле сильной электромагнитной волны // Журнал Экспериментальной И Теоретической Физики. 1964. Vol. 47. P. 1945–1957.
368. Flusberg B.A. et al. Fiber-optic fluorescence imaging // Nat. Methods. Nature Publishing Group, 2005. Vol. 2, № 12. P. 941–950.
369. Doronina L.V. et al. Tailoring the soliton output of a photonic crystal fiber for enhanced two-photon excited luminescence response from fluorescent protein biomarkers and neuron activity reporters // Opt. Lett. Optica Publishing Group, 2009. Vol. 34, № 21. P. 3373–3375.
370. Fedotov I.V. et al. Enhancement of guided-wave two-photon-excited luminescence response with a photonic-crystal fiber // Appl. Opt. 2009. Vol. 48, № 28. P. 5274–5279.
371. Liu B.-W. et al. Stabilized soliton self-frequency shift and 0.1-PHz sideband generation in a photonic-crystal fiber with an air-hole-modified core // Opt. Express. Optica Publishing Group, 2008. Vol. 16, № 19. P. 14987–14996.
372. Myaing M.T. et al. Enhanced two-photon biosensing with double-clad photonic crystal fibers // Opt. Lett. Optica Publishing Group, 2003. Vol. 28, № 14. P. 1224–1226.
373. Chebotarev A.S. et al. Single-beam dual-color alternate-pathway two-photon spectroscopy: Toward an optical toolbox for redox biology // J. Raman Spectrosc. 2021. Vol. 52, № 9. P. 1552–1560.
374. Chebotarev A.S. et al. Multiphoton tools for hydrogen peroxide imaging *in vivo* with subcellular resolution // Sens. Actuators B Chem. 2024. Vol. 410. P. 135646.
375. Chebotarev A.S. et al. Ultrafast supercontinuum sculpting for two-photon spectroscopy and microscopy of ratiometric fluorescent indicators // Appl. Phys. Lett. AIP Publishing, 2024. Vol. 124, № 24.
376. Tu H. et al. Stain-free histopathology by programmable supercontinuum pulses: 8 // Nat. Photonics. Nature Publishing Group, 2016. Vol. 10, № 8. P. 534.
377. Knill E., Laflamme R., Milburn G.J. A scheme for efficient quantum computation with linear optics // Nature. Nature Publishing Group, 2001. Vol. 409, № 6816. P. 46–52.

378. Ekert A., Knight P.L. Entangled quantum systems and the Schmidt decomposition // *Am. J. Phys.* 1995. Vol. 63, № 5. P. 415–423.
379. Bouwmeester D. et al. Experimental quantum teleportation // *Nature*. Nature Publishing Group, 1997. Vol. 390, № 6660. P. 575–579.
380. Dowling J.P. Quantum Optical Metrology -- The Lowdown on High-N00N States // *Contemp. Phys.* 2008. Vol. 49, № 2. P. 125–143.
381. Klyshko D.N. Coherent Photon Decay in a Nonlinear Medium. 1967.
382. Wang L.J., Hong C.K., Friberg S.R. Generation of correlated photons via four-wave mixing in optical fibres // *J. Opt. B Quantum Semiclassical Opt.* 2001. Vol. 3, № 5. P. 346.
383. Fan J., Migdall A., Wang L.J. Efficient generation of correlated photon pairs in a microstructure fiber // *Opt. Lett.* Optica Publishing Group, 2005. Vol. 30, № 24. P. 3368–3370.
384. Goldschmidt E.A. et al. Spectrally bright and broad fiber-based heralded single-photon source // *Phys. Rev. A*. American Physical Society, 2008. Vol. 78, № 1. P. 013844.
385. Fan J., Migdall A. A broadband high spectral brightness fiber-based two-photon source // *Opt. Express*. Optica Publishing Group, 2007. Vol. 15, № 6. P. 2915–2920.
386. Söller C. et al. High-performance single-photon generation with commercial-grade optical fiber // *Phys. Rev. A*. American Physical Society, 2011. Vol. 83, № 3. P. 031806.
387. Slater J.A. et al. Microstructured fiber source of photon pairs at widely separated wavelengths // *Opt. Lett.* Optica Publishing Group, 2010. Vol. 35, № 4. P. 499–501.
388. Li X. et al. All-fiber photon-pair source for quantum communications: Improved generation of correlated photons // *Opt. Express*. Optica Publishing Group, 2004. Vol. 12, № 16. P. 3737–3744.
389. Almeida Á. et al. Polarization-entangled photon pairs using spontaneous four-wave mixing in a fiber loop. 2011. P. 1–4.
390. Fulconis J. et al. High brightness single mode source of correlated photon pairs using a photonic crystal fiber // *Opt. Express*. Optica Publishing Group, 2005. Vol. 13, № 19. P. 7572–7582.
391. Rarity J. et al. Photonic crystal fiber source of correlated photon pairs // *Opt. Express*. 2005. Vol. 13, № 2. P. 534–544.
392. Halder M. et al. Nonclassical 2-photon interference with separate intrinsically narrowband fibre sources // *Opt. Express*. Optica Publishing Group, 2009. Vol. 17, № 6. P. 4670–4676.
393. Ling A. et al. Mode expansion and Bragg filtering for a high-fidelity fiber-based photon-pair source // *Opt. Express*. Optica Publishing Group, 2009. Vol. 17, № 23. P. 21302–21312.
394. Cohen O. et al. Tailored Photon-Pair Generation in Optical Fibers // *Phys. Rev. Lett.* American Physical Society, 2009. Vol. 102, № 12. P. 123603.
395. Hong C.K., Ou Z.Y., Mandel L. Measurement of subpicosecond time intervals between two photons by interference // *Phys. Rev. Lett.* American Physical Society, 1987. Vol. 59, № 18. P. 2044–2046.
396. Alibart O. et al. Photon pair generation using four-wave mixing in a microstructured fibre: theory versus experiment // *New J. Phys.* 2006. Vol. 8, № 5. P. 67.
397. Shukhin A.A. et al. Heralded single-photon and correlated-photon-pair generation via spontaneous four-wave mixing in tapered optical fibers // *Phys. Rev. A*. American Physical Society, 2020. Vol. 101, № 5. P. 053822.
398. Shmakova A.L., Latypov I.Z., Kalachev A.A. Correlated-photon-pair generation via SFWM in tapered optical fibers with femtosecond laser pump // *Laser Phys. Lett.* 2024. Vol. 21, № 1. P. 015201 (1-5).
399. *Single-Photon Generation and Detection* /ed. Migdall A. et al. Elsevier, 2013. Vol. 45. 562 p.

400. Garay-Palmett K. et al. Fiber-based photon-pair generation: tutorial // *JOSA B. Optica Publishing Group*, 2023. Vol. 40, № 3. P. 469–490.
401. Petrov N.L. et al. Polarization map of correlated sideband generation in vectorial four-wave mixing // *Appl. Phys. Lett.* 2017. Vol. 110, № 18. P. 181108.
402. Petrov N.L., Fedotov A.B., Zheltikov A.M. High-brightness photon pairs and strongly antibunching heralded single photons from a highly nonlinear optical fiber // *Opt. Commun.* 2019. Vol. 450. P. 304–307.
403. Petrov N.L. et al. Entropy- and purity-tailored broadband entanglement from vectorial four-wave mixing: Insights from pulse modes and classical-field dynamics // *Phys. Rev. A. American Physical Society*, 2019. Vol. 100, № 3. P. 033837.
404. Petrovkin K.V. et al. Broadband quantum light on a fiber-optic platform: from biphotons and heralded single photons to bright squeezed vacuum // *Laser Phys. Lett. IOP Publishing*, 2019. Vol. 16, № 7. P. 075401.
405. Petrov N.L. et al. Ultrahigh-contrast cross-polarized entangled photon pairs from a strongly birefringent photonic-crystal fiber // *Appl. Phys. B.* 2019. Vol. 125, № 3. P. 54.
406. Клышко Д.Н. Квантовая оптика: квантовые, классические и метафизические аспекты // *Успехи Физических Наук.* 1994. Vol. 164, № 11. P. 1187-1214.
407. Xie Z. et al. Harnessing high-dimensional hyperentanglement through a biphoton frequency comb // *Nat. Photonics. Nature Publishing Group*, 2015. Vol. 9, № 8. P. 536–542.
408. Dada A.C. et al. Experimental high-dimensional two-photon entanglement and violations of generalized Bell inequalities // *Nat. Phys. Nature Publishing Group*, 2011. Vol. 7, № 9. P. 677–680.
409. Molina-Terriza G., Torres J.P., Torner L. Twisted photons // *Nat. Phys. Nature Publishing Group*, 2007. Vol. 3, № 5. P. 305–310.
410. Steinlechner F. et al. Distribution of high-dimensional entanglement via an intra-city free-space link // *Nat. Commun. Nature Publishing Group*, 2017. Vol. 8, № 1. P. 15971.
411. Kues M. et al. On-chip generation of high-dimensional entangled quantum states and their coherent control // *Nature. Nature Publishing Group*, 2017. Vol. 546, № 7660. P. 622–626.
412. Barreiro J.T., Wei T.-C., Kwiat P.G. Beating the channel capacity limit for linear photonic superdense coding // *Nat. Phys. Nature Publishing Group*, 2008. Vol. 4, № 4. P. 282–286.
413. Lanyon B.P. et al. Simplifying quantum logic using higher-dimensional Hilbert spaces // *Nat. Phys. Nature Publishing Group*, 2009. Vol. 5, № 2. P. 134–140.
414. Gao W.-B. et al. Experimental demonstration of a hyper-entangled ten-qubit Schrödinger cat state // *Nat. Phys. Nature Publishing Group*, 2010. Vol. 6, № 5. P. 331–335.
415. Lloyd S. Enhanced Sensitivity of Photodetection via Quantum Illumination // *Science. American Association for the Advancement of Science*, 2008. Vol. 321, № 5895. P. 1463–1465.
416. Zhang Z. et al. Entanglement’s Benefit Survives an Entanglement-Breaking Channel // *Phys. Rev. Lett. American Physical Society*, 2013. Vol. 111, № 1. P. 010501.
417. Huber M., Pawłowski M. Weak randomness in device-independent quantum key distribution and the advantage of using high-dimensional entanglement // *Phys. Rev. A. American Physical Society*, 2013. Vol. 88, № 3. P. 032309.
418. Sharping J.E. et al. Quantum-correlated twin photons from microstructure fiber // *Opt. Express. Optica Publishing Group*, 2004. Vol. 12, № 14. P. 3086–3094.
419. Fulconis J. et al. Nonclassical Interference and Entanglement Generation Using a Photonic Crystal Fiber Pair Photon Source // *Phys. Rev. Lett. American Physical Society*, 2007. Vol. 99, № 12. P. 120501.
420. Drummond P.D. et al. Quantum solitons in optical fibres // *Nature.* 1993. Vol. 365, № 6444. P. 307–313.

421. Mosley P.J. et al. Heralded Generation of Ultrafast Single Photons in Pure Quantum States // *Phys. Rev. Lett.* American Physical Society, 2008. Vol. 100, № 13. P. 133601.
422. Javid U.A. et al. Ultrabroadband Entangled Photons on a Nanophotonic Chip // *Phys. Rev. Lett.* American Physical Society, 2021. Vol. 127, № 18. P. 183601.
423. Chekhova M.V. et al. Broadband bright twin beams and their upconversion // *Opt. Lett.* Optica Publishing Group, 2018. Vol. 43, № 3. P. 375–378.
424. Nasr M.B. et al. Ultrabroadband Biphotons Generated via Chirped Quasi-Phase-Matched Optical Parametric Down-Conversion // *Phys. Rev. Lett.* American Physical Society, 2008. Vol. 100, № 18. P. 183601.
425. Dayan B. et al. Nonlinear Interactions with an Ultrahigh Flux of Broadband Entangled Photons // *Phys. Rev. Lett.* American Physical Society, 2005. Vol. 94, № 4. P. 043602.
426. Dorfman K.E., Schlawin F., Mukamel S. Nonlinear optical signals and spectroscopy with quantum light // *Rev. Mod. Phys.* American Physical Society, 2016. Vol. 88, № 4. P. 045008.
427. Tabakaev D. et al. Energy-time-entangled two-photon molecular absorption // *Phys. Rev. A.* American Physical Society, 2021. Vol. 103, № 3. P. 033701.
428. Nasr M.B. et al. Demonstration of Dispersion-Canceled Quantum-Optical Coherence Tomography // *Phys. Rev. Lett.* American Physical Society, 2003. Vol. 91, № 8. P. 083601.
429. Okano M. et al. 0.54  $\mu\text{m}$  resolution two-photon interference with dispersion cancellation for quantum optical coherence tomography // *Sci. Rep.* Nature Publishing Group, 2015. Vol. 5, № 1. P. 18042.
430. Vallés A. et al. Optical sectioning in induced coherence tomography with frequency-entangled photons // *Phys. Rev. A.* American Physical Society, 2018. Vol. 97, № 2. P. 023824.
431. Lopez-Huidobro S. et al. Fiber-based biphoton source with ultrabroad frequency tunability // *Opt. Lett.* Optica Publishing Group, 2021. Vol. 46, № 16. P. 4033–4036.
432. Smirnov M.A. et al. Bright ultra-broadband fiber-based biphoton source // *Opt. Lett.* Optica Publishing Group, 2024. Vol. 49, № 14. P. 3838–3841.
433. Хайруллин А.Ф. et al. Источник междиапазонных фотонных пар на основе фотонно-кристаллического волокна с непрерывной накачкой // *Письма В ЖЭТФ.* 2024. Vol. 119, № 5. P. 336–342.
434. Hammer J. et al. Broadly tunable photon-pair generation in a suspended-core fiber // *Phys. Rev. Res.* American Physical Society, 2020. Vol. 2, № 1. P. 012079.
435. Yabushita A., Kobayashi T. Spectroscopy by frequency entangled photon pairs // *Phys. Rev. A.* 2003. Vol. 69. P. 013806.
436. Javanainen J., Gould P.L. Linear intensity dependence of a two-photon transition rate // *Phys. Rev. A.* American Physical Society, 1990. Vol. 41, № 9. P. 5088–5091.
437. Старшинов Н.С., Белинский А.В., Федотов А.Б. Четырехфотонное смешение в фантомной волоконной спектроскопии // *Квантовая Электроника.* 2023. Vol. 53, № 9. P. 725–730.
438. Старшинов Н.С., Белинский А.В., Федотов А.Б. Двухфотонная интерференция спектрально запутанных пар, генерируемых в фотонно-кристаллическом волокне. // *Вестник Московского Университета Серия 3 Физика Астрономия.* 2021. № 2. P. 3–13.