

ПРИГЛАШЕННЫЙ ОБЗОР

УДК 535.345

НЕЛИНЕЙНАЯ ОПТИКА ГАЗОВЫХ СРЕД: ПРОРЫВ В ОБЛАСТЬ СВЕРХКОРОТКИХ ИМПУЛЬСОВ И ОСВОЕНИЕ НОВЫХ СПЕКТРАЛЬНЫХ ДИАПАЗОНОВ**А. М. Желтиков***(кафедра общей физики и волновых процессов)*

E-mail: zheltikov@top.phys.msu.su

Обсуждаются новые направления исследований, которые сформировались в современной физике благодаря идейному и техническому прогрессу, достигнутому на основе изучения и использования нелинейно-оптических процессов в возбужденных и ионизованных газовых средах. Дан обзор достижений и перспектив, связанных с использованием этих процессов для преобразования частоты, генерации сверхкоротких импульсов и развития новых методов нелинейной спектроскопии и нелинейно-оптического анализа.

Введение

Постоянно растущий интерес к исследованию когерентных нелинейно-оптических взаимодействий в возбужденных и ионизованных газовых средах неразрывно связан с основными тенденциями развития современной физики. Нелинейная оптика возбужденных газов и плазмы позволяет получить ответы на ряд фундаментальных вопросов физики взаимодействия излучения с веществом и предлагает богатый арсенал средств для решения актуальных прикладных задач.

Среди основных фундаментальных проблем, решаемых в нелинейной оптике возбужденного и ионизованного газа, следует назвать задачи, которые связаны с исследованием взаимодействия атомарной системы со сверхсильным световым полем [1–3] и изучением нелинейных процессов высокого порядка. Эти задачи часто требуют выхода за рамки применимости теории возмущений и во многих ситуациях демонстрируют несостоятельность описания нелинейно-оптических явлений в терминах нелинейно-оптических восприимчивостей. Перечень прикладных направлений нелинейной оптики возбужденного и ионизованного газа чрезвычайно велик [4–9]. Он включает в себя количественный и качественный анализ газов и газовых смесей, исследование химических реакций в газовой фазе, диагностику пламени, измерение параметров газа в двигателях внутреннего сгорания, дистанционный локальный контроль температуры и плотности газовых смесей, исследование параметров плазмы и т. д.

Использование оптических нелинейностей возбужденных и ионизованных газов для получения когерентного коротковолнового излучения вместе с применением современных средств лазерного экспе-

римента в последнее десятилетие привело к формированию нового направления [10], в котором проблемы фундаментальной физики самым тесным образом переплетаются с актуальными приложениями. Эти приложения связаны, прежде всего, с разработкой новых схем генерации световых импульсов высокой интенсивности и предельно короткой длительности в широкой спектральной области: от ИК до рентгеновского диапазона. Подобными возможностями не обладает ни один из имеющихся или проектируемых лазеров и источников на основе нелинейно-оптических кристаллов.

Исследования нелинейно-оптических явлений и путей формирования коротких импульсов в возбужденных и ионизованных газовых средах ведутся в настоящее время в таких масштабах и с такой интенсивностью, что не представляется возможным даже просто перечислить последние публикации, посвященные этой теме. Поэтому в настоящем обзоре обсуждаются лишь новые направления исследований в современной физике, сформировавшиеся благодаря идейному и техническому прогрессу, к которому привело изучение нелинейно-оптических процессов в возбужденных и ионизованных газовых средах. Наиболее важны три активно развивающихся направления: 1) использование нелинейно-оптических процессов в газовых средах для преобразования частоты и создания на этой основе источников когерентного коротковолнового излучения; 2) генерация сверхкоротких импульсов методами нелинейной оптики газовых сред; 3) разработка новых методов нелинейной спектроскопии и нелинейно-оптического анализа газовых сред. В соответствии с этим обзор содержит три раздела. В первом разделе рассмотрены вопросы, связанные с нелинейно-опти-

За работу «Когерентные нелинейно-оптические взаимодействия в возбужденных и ионизованных средах» А. М. Желтикову в 2000 г. присуждена премия им. И. И. Шувалова 2-й степени.

ческим преобразованием частоты на основе нелинейностей возбужденных и ионизованных газовых сред, и дан краткий обзор стремительного продвижения в область коротких длин волн, включая область водяного окна прозрачности, достигнутого в последние несколько лет на основе нелинейно-оптических процессов высокого порядка. Во втором разделе представлена проблематика, относящаяся к генерации сверхкоротких импульсов, в частности таких световых импульсов, длительность которых соответствует нескольким осцилляциям светового поля. Также кратко охарактеризованы возможности прорыва за пределы фемтосекундного диапазона длительностей и обсуждены методы генерации субфемтосекундных и аттосекундных импульсов. В третьем разделе дан обзор новых методов и подходов, определивших в последние годы существенный прогресс в области нелинейно-оптической диагностики возбужденных и ионизованных газовых сред.

1. Нелинейно-оптическое преобразование частоты в возбужденных и ионизованных газах

Особенности нелинейно-оптических процессов, происходящих в условиях взаимодействия мощного лазерного излучения с возбужденными и ионизованными газовыми средами, связаны с тем, что световые поля, даже весьма умеренной интенсивности по обычной лазерной шкале, оказываются того же порядка, что и характерные электростатические внутриатомные поля, действующие на возбужденный оптический электрон со стороны ионного остатка. По этой причине многие эффекты, наблюдаемые в режиме «сверхсильного» светового поля, могут проявляться при относительно невысоких интенсивностях лазерного излучения. Анализ таких явлений часто не может быть выполнен в рамках стандартного для классической нелинейной оптики подхода [11, 12], который основан на применении теории возмущений по световому полю E и приводит к представлению нелинейной поляризации P_{nl} , наводимой в среде, в виде ряда

$$P_{nl} = \chi^{(1)} E + \chi^{(2)} E \cdot E + \chi^{(3)} E \cdot E \cdot E + \dots, \quad (1)$$

где $\chi^{(1)}$, $\chi^{(2)}$, $\chi^{(3)}$ — нелинейно-оптические восприимчивости. Начало исследованиям, направленным на разработку методов описания нелинейно-оптических эффектов в сильных световых полях, было положено классическими работами Келдыша [13] и Бункина и Федорова [14], выполненными еще в 1960-х гг. В последнее десятилетие активно развиваются адекватные методы описания нелинейно-оптического отклика возбужденного и ионизованного газа на мощные короткие импульсы лазерного излучения, а также проводится анализ эффектов рас-

пространения коротких световых импульсов, взаимодействующих в подобных средах.

В данном разделе дается краткий обзор основных результатов исследования генерации оптических гармоник и преобразования частоты в возбужденных и ионизованных газовых средах в поле мощного лазерного излучения. Подобный анализ позволяет глубже понять значение и перспективность новых схем когерентного преобразования частоты и генерации сверхкоротких световых импульсов.

1.1. Генерация гармоник в струях инертных газов

Развитие лазерной техники за последние несколько лет привело к появлению нового поколения лазеров, генерирующих мощные сверхкороткие световые импульсы. Использование подобных импульсов позволило существенно расширить горизонты оптики многофотонных процессов, на качественно новом уровне решить традиционные задачи нелинейной оптики, выйти за рамки режима слабых оптических полей, описываемого в терминах нелинейно-оптических восприимчивостей в классической нелинейной оптике [11, 12]. Генерация оптических гармоник высокого порядка на протяжении последнего десятилетия остается одним из основных направлений этой чрезвычайно динамично развивающейся и перспективной области нелинейной оптики. Всесторонний анализ экспериментальных и теоретических исследований по генерации гармоник, выполненных к началу 1980-х гг. с использованием лазерного излучения сравнительно низкой интенсивности (см., напр., [15–21]), приводится в книге Райнтжеса [22]. Обзор основных результатов, полученных на раннем этапе исследований генерации гармоник высокого порядка (в основном в 1980-х гг.), дан в работах [23, 24].

Эксперименты, выполненные в начале 1990-х гг. [25–31], продемонстрировали новые возможности для получения оптических гармоник высоких порядков в газовых струях и генерации коротковолнового излучения. Это стимулировало интенсивные исследования в области использования мощных коротких лазерных импульсов для генерации оптических гармоник высокого порядка, что привело к быстрому росту числа публикаций по данной теме. Различные аспекты теоретического анализа генерации гармоник высокого порядка в инертных газах в поле мощных сверхкоротких лазерных импульсов, включая фазовые эффекты, эффекты распространения и пространственное распределение поля гармоник высокого порядка, систематизированы в обзоре Платоненко и Стрелкова [32].

На начальной стадии исследования генерации гармоник в инертных газах эксперименты, как правило, выполнялись с использованием лазеров сравнительно малой мощности, что позволило наблюдать лишь низкие порядки гармоник [33]. По мере

совершенствования экспериментальной техники и появления мощных лазеров удалось зарегистрировать гармоники более высоких порядков [34–36]. Были достигнуты впечатляющие результаты по генерации гармоник очень высоких порядков. В частности, излучение с длиной волны 9.9 нм, соответствовавшее 25-й гармонике субпикосекундного KrF-лазера (248 нм), было зарегистрировано в экспериментах Сарукуры с соавторами [26]. Оптические гармоники высоких порядков были зарегистрированы в работах Маклина с соавторами [27] (109-я гармоника лазерного излучения с длиной волны 806 нм), Л’Уиллие и Балкоу [31] (135-я гармоника излучения, 1053 нм) и Перри и Моуроу [37] (143-я гармоника, 1053 нм). Стремительный прогресс лазерной техники в последние годы привел к тому, что эти результаты были существенно улучшены [38]. В работах [39, 40] наблюдались гармоники вплоть до 300-го порядка, возникающие в поле сверхкоротких импульсов излучения лазера на сапфире с титаном. При этом гармонике максимального номера соответствовала длина волны 2.4 нм, лежащая в области водяного окна прозрачности.

Для спектра гармоник высокого порядка, наблюдаемого в подобных экспериментах, характерно наличие трех участков: быстрого спада, плато и отсечки. Максимальный номер гармоники, соответствующий частоте отсечки, как правило, может быть найден из следующего выражения:

$$N_{\max} \approx (I_p + 3U_p)/\omega, \quad (2)$$

где I_p — потенциал ионизации атома, $U_p = E^2/4\omega^2$ — пондеромоторная энергия, соответствующая лазерному полю с амплитудой E и частотой ω .

Наглядную физическую интерпретацию выражения (2) дал Коркум [41], который рассмотрел классическую модель движения электрона в атоме в присутствии сильного поля и предположил, что основной вклад в генерацию гармоник вносят электроны, возвращающиеся к родительскому иону (см. также [42]).

Важным свойством спектра гармоник является примерное равенство амплитуд большого их числа. В настоящее время интенсивно исследуются пути использования этого свойства для получения субфемтосекундных и аттосекундных импульсов (подробнее — см. раздел 2).

Несмотря на впечатляющие результаты по генерации гармоник высокого порядка и когерентного коротковолнового излучения в струе инертного газа, данный экспериментальный подход не позволяет достичь высоких эффективностей преобразования частоты даже для гармоник низкого порядка. Существенное возрастание эффективности генерации оптических гармоник и параметрического взаимодействия может быть получено за счет использова-

ния техники полых волноводов, позволяющей увеличить длину нелинейно-оптического взаимодействия и уменьшить благодаря дисперсии волноводных мод фазовую расстройку. Данная техника будет подробно рассмотрена в разделе 2 в связи с обсуждением возможностей генерации предельно коротких импульсов. Проблема эффективного преобразования частоты, по крайней мере для нелинейно-оптических процессов низкого порядка, с гораздо большим успехом решается при использовании экспериментальных схем, основанных на генерации гармоник и смешении частот в низкотемпературной лазерной плазме.

1.2. Генерация оптических гармоник и смешение частот в лазерной плазме

Исследование генерации оптических гармоник в плазме имеет богатую историю, ведущую свой отсчет с 1960-х гг., когда были теоретически предсказаны основные нелинейно-оптические эффекты [43–47]. Генерация гармоник в высокотемпературной плотной лазерной плазме, возникающей при фокусировке интенсивного лазерного излучения на твердую мишень, исследовалась в работах [48–54]. Эффект вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) экспериментально изучался в работах [55–58]. Теория ВКР в плотной лазерной плазме (плазма с плотностью, близкой к критической) развивалась в [59, 60]. Результаты экспериментального исследования процесса вынужденного рассеяния Мандельштама–Бриллюэна в плотной лазерной плазме приводятся в работах [61, 62]. Многочисленные экспериментальные работы (см., напр., [63–67]) посвящены исследованию гармоники $3\omega/2$, возникающей благодаря комбинационному рассеянию лазерного излучения с частотой ω на продольных плазменных волнах с частотой $\omega/2$. Детальный последовательный теоретический анализ нелинейных эффектов генерации целых и полужелых гармоник, ВКР, имеющих место в плотной лазерной плазме, проведен в работах [68–73].

До середины 1980-х гг. наибольшей эффективности преобразования излучения накачки в гармоники удалось добиться в условиях оптического пробоя твердой мишени мощным лазерным излучением [74–77]. Образующаяся при этом высокотемпературная плазма имеет высокую плотность и непрозрачна для излучения накачки, а генерируемые гармоники имеют низкую степень пространственной когерентности. В результате серии экспериментальных и теоретических исследований, выполненных за последние полтора десятилетия, сформировалось новое направление в области нелинейно-оптического преобразования частоты в плазме, которое характеризуется использованием в качестве нелинейной среды плазмы оптического пробоя, создаваемой излучением умеренной энергии в газах при дав-

лениях не выше атмосферного. Возникающая при таких условиях плазма практически прозрачна для излучения накачки, и процессы генерации гармоник и смещения частоты могут быть реализованы в когерентном режиме в коллинеарном излучении накачки направлении, что дает возможность достигать рекордно высоких эффективностей преобразования частоты лазерного излучения. Характерные особенности такого режима нелинейно-оптических процессов в плазме связаны с тем, что излучение взаимодействует с плазмой уже не как с коллективом частиц, а скорее как с образующими ее отдельными возбужденными атомами и ионами. В дисперсионные свойства нелинейной среды, однако, дают вклад как связанные состояния атомов и ионов, так и свободные электроны.

Исторически идея использования низкотемпературной плазмы оптического пробоя в качестве нелинейной среды для получения когерентного коротковолнового излучения методом генерации оптических гармоник и смещения частоты сформировалась в русле исследования явления возрастания эффективности четырехфотонных процессов (когерентного антистоксова рассеяния света и генерации третьей гармоники) в условиях оптического пробоя. Это возрастание наблюдалось авторами работ [78–80] при использовании наносекундных импульсов. Следует отметить, что возможность использования ионизованных газов в качестве нелинейной среды для генерации коротковолнового излучения обсуждалась еще в 1973 г. в работе Харриса [16]. Серия экспериментальных и теоретических исследований, выполненная в конце 1980-х гг. [81, 82], показала, что использование нелинейностей низкотемпературной лазерной плазмы позволяет достичь высоких эффективностей когерентной генерации третьей гармоники. Впоследствии данный подход был с успехом применен для получения коротковолнового излучения как за счет нелинейностей более высокого порядка [83–90], так и за счет использования более коротких (пико- и фемтосекундных) импульсов накачки, в том числе следующих с высокой частотой повторения [91–94].

Генерация оптических гармоник в данной схеме наблюдается в когерентном режиме в низкотемпературной плазме (электронная температура $T_e = 1 \div 20$ эВ) с плотностью, далекой от критической (плотность электронов $N_e = 10^{17} - 10^{20}$ см $^{-3}$). Такая плазма возникает в результате оптического пробоя при фокусировке в газе либо на поверхности металлической мишени (рис. 1) лазерного излучения умеренной энергии (хотя и достаточно высокой интенсивности: $10^9 \div 10^{12}$ Вт/см 2 на раннем этапе исследований [81, 82] и $10^{13} \div 10^{17}$ Вт/см 2 в более поздних экспериментах [83, 85, 89]). Плазма с такими параметрами характеризуется сильными оптическими нелинейностями, механизмы которых

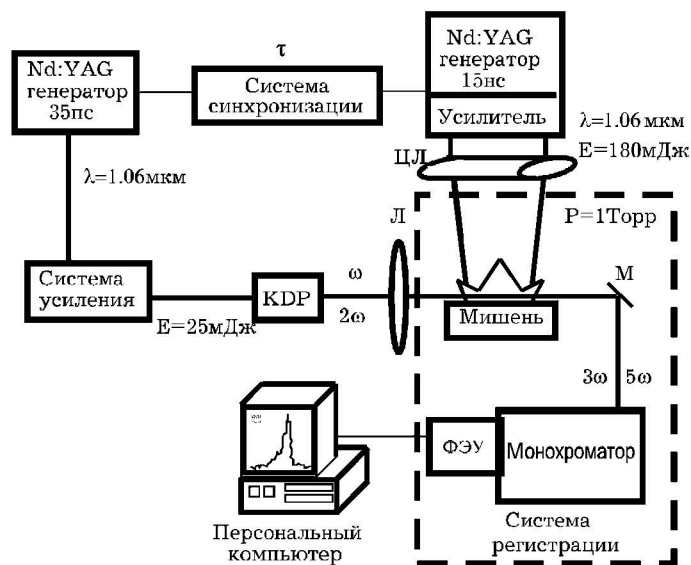


Рис. 1. Схема пикосекундной установки для генерации оптических гармоник и смещения частот в плазме оптического пробоя: ЦЛ — цилиндрическая линза, Л — линза, М — система зеркал

существенно отличаются от механизмов, присущих высокотемпературной плотной лазерной плазме.

Возрастание эффективности нерезонансных нелинейно-оптических процессов в плазме лазерной искры, образующейся в поле сфокусированного излучения лазера на Nd:YAG с импульсами относительно невысокой энергии (до 100 мДж), впервые экспериментально обнаружено в работе [78]. Дальнейшие исследования [79, 81] показали, что возрастание эффективности нелинейно-оптических процессов в низкотемпературной лазерной плазме наблюдается как в молекулярных, так и в атомарных газах в условиях «самопробоя» или пробоя, создаваемого на поверхности металлической мишени с помощью независимого источника. Важным фактором, способствовавшим формированию новой схемы генерации оптических гармоник в плазме оптического пробоя, стало использование независимого лазерного источника для создания плазмы (рис. 1). Введение регулируемой временной задержки между импульсом, генерирующим гармоники (либо парой импульсов в случае двухчастотной накачки), и импульсом, создающим плазму, позволило оптимизировать параметры плазмы и обеспечить наилучшие условия для нелинейно-оптического преобразования частоты. Результаты экспериментальных исследований [83–89] свидетельствуют о том, что плазма, возникающая в результате оптического пробоя, может быть использована в качестве нелинейной среды для эффективной генерации коротковолнового когерентного излучения методом нелинейно-оптического умножения и сложения частот (рис. 2).

Таким образом, на основе выполненных исследований был сформирован новый подход к нелинейно-оптическому преобразованию частоты лазерного излучения путем генерации гармоник и смещения

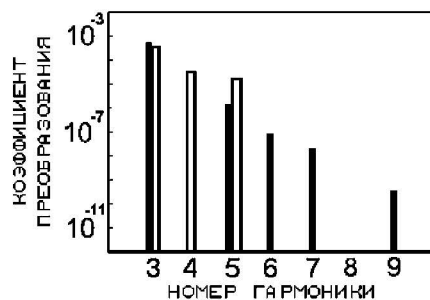


Рис. 2. Диаграмма эффективности генерации оптических гармоник (темные столбцы) и суммарной частоты (светлые столбцы) в плазме оптического пробоя

частот в низкотемпературной плазме оптического пробоя. Отличительные признаки данного подхода сформулированы в работе [10] и заключаются в следующем: 1) в качестве нелинейной среды для преобразования частоты используется плазма, создаваемая в результате оптического пробоя при фокусировке лазерного излучения в газе либо на поверхности металлической мишени (рис. 1); 2) плотность плазмы при этом не превышает 10^{20} см $^{-3}$, так что плазма прозрачна для излучения накачки, и генерация гармоник происходит в когерентном коллинеарном режиме; 3) нелинейно-оптическое преобразование частоты происходит в результате генерации либо оптических гармоник, либо суммарной или разностной частоты в основном за счет нелинейностей атомной и ионной компонент плазмы; 4) для повышения эффективности нелинейно-оптического преобразования частоты используется плазма оптического пробоя, создаваемая дополнительным лазерным источником, который синхронизован по времени с лазерами накачки; 5) введение временной задержки между моментами создания плазмы и реализации нелинейно-оптических взаимодействий в ней позволяет оптимизировать условия для каждого конкретного нелинейно-оптического процесса (рис. 3); 6) оптимальные условия для нелинейно-оптических взаимодействий достигаются при достаточно больших (порядка десятых долей микросекунд) временах задержки импульсов накачки относительно импульсов, создающих плазму (рис. 3, 4); 7) эффективность когерентного преобразования частоты может быть существенно повышена за счет оптимизации условий фазового согласования путем надлежащего выбора геометрии фокусировки, параметров лазера, создающего плазму, и времени задержки (рис. 3–5).

Получение высоких эффективностей генерации третьей гармоники на основе описанной выше схемы стало возможным благодаря использованию коротких (пико- и фемтосекундных) лазерных импульсов. Если в ранних экспериментах, проводившихся в данной постановке с использованием импульсов лазера на гранате с неодимом длительностью 15 нс, максимальная эффективность преобразования энергии излучения основной частоты в энергию третьей

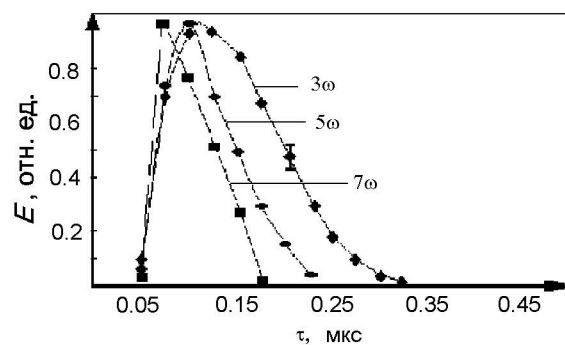


Рис. 3. Зависимость интенсивности третьей, пятой и седьмой гармоник от времени задержки между зондирующим импульсом и импульсом, создающим плазму на поверхности индиевой мишени при остаточном давлении $p < 10^{-4}$ Торр

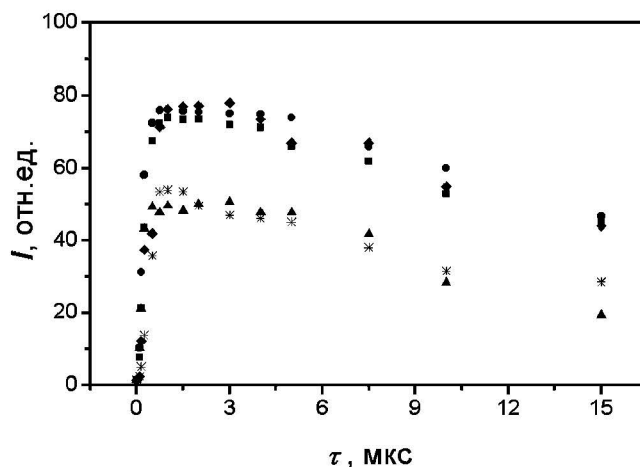


Рис. 4. Зависимость интенсивности третьей гармоники, генерируемой в плазме оптического пробоя в воздухе при атмосферных условиях, от времени задержки между наносекундным импульсом, создающим плазму, и фемтосекундным импульсом, генерирующим третью гармонику, для различных смещений ΔL положения фокуса относительно центра возбуждаемой области: $\Delta L = 0$ (кружки), 3 мм (квадраты), -3 мм (ромбы), 6 мм (звездочки), -6 мм (треугольники)

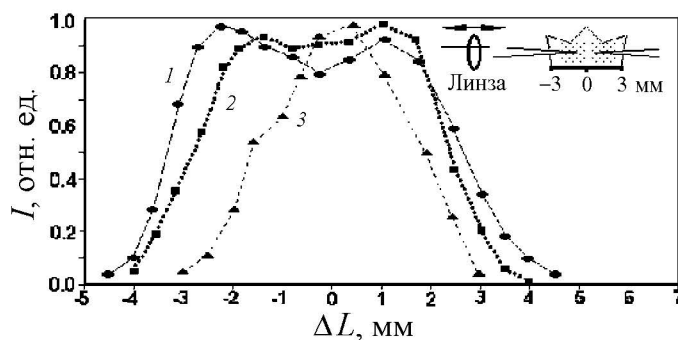


Рис. 5. Зависимость нормированной интенсивности излучения на частоте третьей гармоники от положения фокуса зондирующего излучения при $\tau = 0.25$ мкс (кривая 1), 0.65 мкс (2) и 3.5 мкс (3)

гармоники составила 10^{-8} , то применение импульсов длительностью 35 пс позволило повысить эффективность процесса генерации третьей гармоники до $3 \cdot 10^{-2}$ [82].

Экспериментальные исследования, выполненные по описанной выше схеме нелинейно-оптического преобразования частоты, показали, что плазма оптического пробоя, создаваемого на металлической мишени, может использоваться для эффективно-го преобразования частоты излучения вверх. При этом для достижения высоких эффективностей генерации гармоник требуется тщательная оптимизация экспериментальных условий (материал мишени, время задержки между импульсами, используемыми для создания и зондирования плазмы, расстояние до мишени, геометрия фокусировки и т. д.) [81, 82, 87, 88].

В работе Акиямы с соавторами [83], опубликованной в 1992 г., наблюдалась генерация гармоник высокого порядка за счет нелинейностей ионов щелочных металлов Li, Na и K, создаваемых в лазерной плазме. Аналогично схеме, реализованной в работах [81, 82, 86–88] (см. рис. 1), плазма в этих экспериментах возбуждалась при помощи дополнительного лазерного импульса, синхронизованного во времени с импульсом, генерирующим гармоники. В работе [85] наблюдалась генерация гармоник высокого порядка в лазерной плазме, создаваемой на поверхности мишеней из бора, углерода, титана, меди, вольфрама и свинца. При этом для создания плазмы и генерации гармоник использовались два KrF-лазера (длина волны 248 нм). Импульсы излучения одного из KrF-лазеров с длительностью 20 нс и энергией 200 мДж фокусировались на вращающуюся мишень, помещенную в вакуумной камере. Интенсивность лазерного излучения в фокусе составляла примерно 10^9 Вт/см², а температура лазерной плазмы — примерно 1.5 эВ. Импульсы второго KrF-лазера с длительностью 0.5 пс и энергией 50 мДж фокусировались в плазму ахроматической линзой с фокусным расстоянием 30 см. При этом максимальная интенсивность в фокусе составляла 10^{17} Вт/см². Временная задержка между импульсами варьировалась от нуля до нескольких сотен наносекунд. Гармоники максимального порядка (вплоть до 21-го) наблюдались при использовании свинцовой мишени (минимальная длина волны излучения 11.8 нм).

Аналогичная схема экспериментов использовалась авторами работы [89] для генерации оптических гармоник излучения лазера на сапфире с титаном в лазерной плазме, создаваемой на поверхности мишеней из щелочных металлов Na и K. В этих экспериментах плазма создавалась импульсами излучения лазера на гранате с неодимом (с длиной волны 1064 нм) длительностью 100 пс. Импульсы лазера на сапфире с титаном, работавшего на длине волны 794 нм, имели длительность 150 фс. Интенсивность излучения в фокусе составляла примерно $5 \cdot 10^{14}$ Вт/см². Наивысшая зарегистрированная гармоника для мишеней обоих типов соответствовала

27-му порядку и имела длину волны 29.4 нм. Авторами [89] отмечены также эффекты, связанные с дефокусировкой основного излучения в результате изменения показателя преломления среды за счет образования свободных электронов.

В экспериментах [86–88] наблюдались гармоники излучения лазера на гранате с неодимом вплоть до 9-го порядка и нелинейно-оптические процессы смешения частот различных порядков в присутствии основного излучения и второй гармоники лазера на гранате с неодимом. Лазерная плазма в этих экспериментах создавалась на поверхности мишеней из свинца, алюминия и индия, помещенных в вакуумную камеру. Для генерации гармоник и смешения частот использовались импульсы основной частоты лазера на гранате с неодимом длительностью 35 пс и энергией около 25 мДж (интенсивность в фокусе достигала 10^{13} Вт/см²), а также импульсы второй гармоники этого лазера с энергией до 6 мДж. Изучалась генерация оптических гармоник высокого порядка; кроме того, была продемонстрирована возможность управления спектром излучения на выходе из плазмы путем изменения условий нелинейно-оптического взаимодействия с использованием двухчастотной накачки.

Для понимания возможностей оптического преобразования частоты в низкотемпературной лазерной плазме важными представляются также эксперименты [90], в которых наблюдалась генерация гармоник высокого порядка (вплоть до 13-й гармоники) излучения KrF-лазера. Для создания плазмы использовались импульсы излучения KrF-лазера с длительностью 25 нс. С помощью двух цилиндрических линз это лазерное излучение фокусировалось на поверхность углеродной мишени (интенсивность излучения в фокусе достигала 10^8 Вт/см²). Для генерации гармоник использовались импульсы излучения субпикосекундного KrF-лазера с длительностью 0.7 пс и энергией 20 мДж (интенсивность субпикосекундного излучения в фокусе составляла $6 \cdot 10^{15}$ Вт/см²). Как и в работах [81, 82, 86–88], в работе [90] были экспериментально исследованы зависимости интенсивностей оптических гармоник от времени задержки между субпикосекундными и наносекундными импульсами, которые также свидетельствуют о влиянии эффектов фазового рассогласования на процесс генерации гармоник.

Как показали эксперименты [86–88], эффективность и свойства нелинейно-оптического преобразования частоты в низкотемпературной лазерной плазме существенно зависят от условий фазового согласования. Подробному экспериментальному и теоретическому исследованию этой зависимости посвящены также работы [95–97]. В работе [98] обсуждается и экспериментально демонстрируется идея использования дисперсии плазмы для «инженерии оптических гармоник», т.е. активного фор-

мирования спектра гармоник (аналогичные предложения выдвигались ранее в теоретических работах [99–101], а также в работе [24] на основании анализа экспериментальных данных по генерации третьей гармоники в плазме оптического пробоя).

Интенсивные исследования группы Джиаимманко [102, 103] способствовали пониманию ряда важных закономерностей генерации оптических гармоник и смещения частот в условиях ионизации в газе, включая влияние плотности газа, интенсивностей пучков двухчастотной накачки, геометрии эксперимента, а также эффектов фазовой расстройки. В частности, в этих работах была исследована роль плазменных эффектов при генерации гармоник высокого порядка и смещении частоты при различных плотностях газов. В работе [104] сообщается о наблюдении временной корреляции оптических гармоник и выхода ионов, образующихся под действием мощного излучения накачки.

В работах Ганеева с соавторами [105, 106] для генерации оптических гармоник в лазерной плазме по схеме [81, 82, 86–88] предложено использовать цуг пикосекундных импульсов. При таком подходе для одного из импульсов цуга автоматически достигаются оптимальные условия генерации гармоник.

Важным шагом в направлении упрощения схемы генерации оптических гармоник в плазме оптического пробоя стали эксперименты [91–94]. В этих экспериментах демонстрировалась практическая применимость данной схемы с использованием фемтосекундных лазерных импульсов с высокой частотой повторения, получаемых при помощи стандартных современных лазерных систем: наблюдалось эффективное преобразование излучения фемтосекундных импульсов лазера на сапфире с титаном в условиях самопробоя инертных газов и воздуха. Существенным обстоятельством для практических приложений является то, что в достаточно широком диапазоне интенсивностей излучения накачки пучок третьей гармоники сохраняет гладкий профиль, что позволяет передавать его на большие расстояния и использовать в реальных спектроскопических экспериментах. Демонстрация возможности применения возбужденных газовых сред для эффективной генерации третьей гармоники лазерных импульсов с длительностью менее 100 фс имеет принципиальное значение, так как использование кристаллов для этих целей затруднено в связи с конечной шириной спектральной области фазового синхронизма, а также с существенным влиянием эффектов групповой дисперсии и группового запаздывания.

Эксперименты [107, 108] продемонстрировали высокую эффективность генерации гармоник высокого порядка в лазерной плазме, создаваемой на поверхности твердотельной мишени, и, по сути, привели к формированию нового направления в

области генерации гармоник в лазерной плазме. Для этого направления характерно использование мощных коротких лазерных импульсов, создающих лазерную плазму на поверхности твердотельной мишени. В настоящее время широко обсуждаются возможности генерации аттосекундных импульсов с помощью этого подхода [109].

1.3. Физические факторы, ограничивающие эффективность преобразования частоты коротких световых импульсов

Большинство экспериментов по генерации гармоник как в инертных газах, так и в лазерной плазме проводится с использованием мощных импульсных лазерных систем, работающих, как правило, с низкой частотой повторения. Между тем для различных спектроскопических приложений несомненный интерес представляет возможность генерации гармоник лазерными импульсами с высокой частотой повторения. В последнее время различными научными группами был выполнен ряд экспериментов, результаты которых позволяют заключить, что плазма оптического пробоя может с успехом использоваться для получения коротких импульсов третьей гармоники с высокой частотой повторения (см. [91–94]). Данный экспериментальный подход дает возможность получить высокую эффективность преобразования частоты излучения для стандартных коммерческих лазерных систем путем использования оптических нелинейностей возбужденного и ионизованного газа.

В работах [92, 93] процессы генерации второй и третьей гармоник наблюдались в условиях пробоя воздуха импульсами лазера на сапфире с титаном (рис. 6) с длительностью 80–90 фс и энергией до 1 мДж. Результаты этих экспериментов показывают, что одним из основных механизмов, ограничивающих эффективность генерации третьей гармоники в поле фемтосекундных импульсов, является самовоздействие пучка накачки в условиях оптического пробоя. Максимальная эффективность преобразования мощности излучения основной частоты в излучение третьей гармоники в этих экспериментах составила $1.7 \cdot 10^{-3}$.

При рассмотрении самовоздействия света в лазерной плазме необходимо принимать во внимание конкуренцию процессов самофокусировки за счет керровской нелинейности атомов и ионов и самодифокусировки, связанной с генерацией электронов в присутствии сильного поля лазерного излучения. Совместное действие этих явлений широко обсуждается в литературе, посвященной уширению спектров мощных коротких лазерных импульсов и генерации суперконтинуума в газах [110, 111]. Для выполнения строгого численного анализа самовоздействия света в плазме в условиях светоиндуцированного пробоя требуется совместный учет временного эффекта фазовой самомоду-

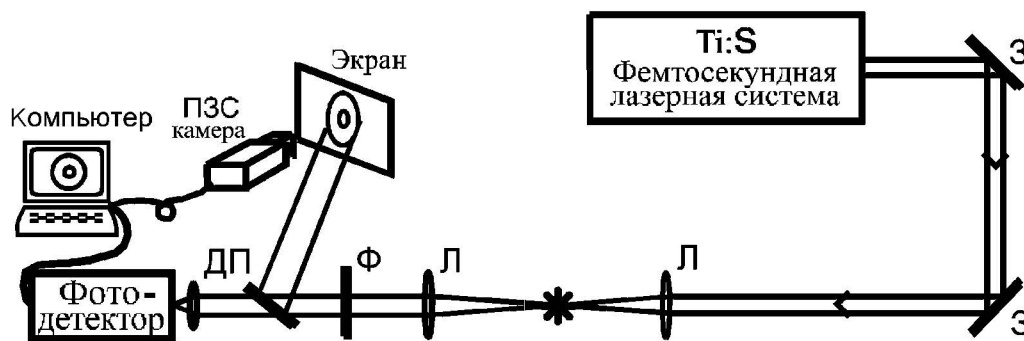


Рис. 6. Схема экспериментальной установки для исследования генерации оптических гармоник в плазме оптического пробоя воздуха с использованием фемтосекундных импульсов: ДП — светоделительная пластинка, Ф — фильтр, Л — линзы, З — зеркала

ляции и пространственной самофокусировки светового пучка [112]. В общем случае теоретическое описание генерации третьей гармоники в условиях самовоздействия света связано с необходимостью решения нелинейного уравнения Шрёдингера [113, 114] для поля основного излучения совместно с соответствующим связанным уравнением для поля третьей гармоники с учетом пространственного самовоздействия и фазовой самомодуляции основной волны, а также явлений фазовой кросс-модуляции и кросс-фокусировки (или кросс-дефокусировки) пучка третьей гармоники за счет влияния волны накачки. Такая система уравнений с учетом пространственного самовоздействия света, обусловленного керровской нелинейностью среды, исследовалась в работах [115–118]. Даже в рамках этого приближения эффективность генерации третьей гармоники описывается довольно сложной функцией, которая зависит от кубических восприимчивостей, ответственных за пространственное самовоздействие и кросс-взаимодействие световых волн, участвующих в нелинейно-оптическом взаимодействии, а также от соответствующей фазовой расстройки. Наконец, необходимо отметить, что точный анализ генерации гармоник в условиях пространственного и временного самовоздействия света в плазме должен выполняться с учетом нестационарных эффектов, таких, как движущиеся фокусы, которые также приводят к изменению спектров мощных световых импульсов (см., напр., [22]).

Ввиду того что строгий анализ совместного влияния эффектов пространственного и временного самовоздействия света на генерацию третьей гармоники затруднен вследствие необходимости учета большого количества разнообразных факторов, сделаем простые оценки, позволяющие качественно понять картину генерации третьей гармоники в условиях описанных выше экспериментов и определить механизмы, ограничивающие эффективность преобразования частоты. Изменение показателя преломления воздуха за счет кубической оптической нелинейности $n_2 = 5 \cdot 10^{19} \text{ см}^2/\text{Вт}$ [119] для интенсивности излучения накачки, равной $3 \cdot 10^{15} \text{ Вт/см}^2$, состав-

ляет примерно $1.5 \cdot 10^{-3}$. В условиях, когда частота столкновений в плазме много меньше частоты оптического излучения, выражение для нелинейной добавки к показателю преломления газа, связанной с генерацией электронов, может быть записано в следующем виде:

$$\Delta n = -\frac{\omega_p^2}{2\omega^2}, \quad (3)$$

где $\omega_p^2 = \frac{4\pi e^2 N_e}{m}$ — плазменная частота, e — заряд электрона, N_e — электронная плотность плазмы, m — масса электрона.

Таким образом, для компенсации самофокусировки за счет кубической оптической нелинейности достаточно генерации плотности плазменных электронов $N_e = 6 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ (что соответствует примерно 50%-й ионизации воздуха при атмосферном давлении). Очевидно, мы нашли грубую оценку для разности электронной плотности, которая необходима для того, чтобы компенсировать самофокусирующее действие кубической нелинейности. Ионизация среды значительно снижает вклад кубической нелинейности в самовоздействие света. С другой стороны, заселение возбужденных состояний атомов и ионов в плазме может существенно увеличивать влияние самофокусировки за счет оптической нелинейности третьего порядка [120]. Конкуренция этих двух механизмов может приводить к достаточно сложному соотношению между обусловленными ими нелинейными добавками к показателю преломления газа, которые дают вклад в пространственное и временное самовоздействие света.

Как следует из выражения (3), добавка к показателю преломления вследствие образования плазмы на частоте третьей гармоники почти на порядок меньше, чем соответствующая добавка на основной частоте, что может быть причиной меньшей выраженности наблюдаемых в эксперименте пространственных структур в распределении интенсивности третьей гармоники, чем в распределении интенсивности основного излучения.

При условии, что плотность плазмы мала по сравнению с критической плотностью, набег фазы светового импульса, распространяющегося вдоль оси x , за счет генерации свободных электронов можно оценить следующим образом:

$$\delta\phi = \frac{\pi n_0}{\lambda N_c} \int N_e(x) dx, \quad (4)$$

где n_0 — показатель преломления газа в отсутствие плазмы, λ — длина волны падающего излучения, $N_c = \frac{\omega^2 m n_0^2}{4\pi e^2}$ — критическая плотность электронов в плазме, интегрирование выполняется по оптическому пути, проходимому световым пучком в нелинейной среде.

Воспользуемся формулой (4), чтобы оценить интегральную плотность плазмы, которая может обеспечить набег фазы 2π , необходимый для формирования кольцевой структуры в пространственном распределении поля, аналогичной приведенной на рис. 7. Приравнявая $\delta\phi = 2\pi$, находим $\int N_e(x) dx = 1.6 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-2}$. Для плазменной области длиной 2 мм данная оценка соответствует средней плотности электронов $8 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$, что представляется довольно реалистичным для описанных выше экспериментальных условий.

Для оценки сдвига частоты, вызванного образованием плазмы, воспользуемся приближенной формулой

$$\Delta\omega = \frac{\pi n_0}{\lambda N_c} \int N_e(x) dx, \quad (5)$$

которую удобно записать для относительной ширины спектра:

$$\frac{\Delta\omega}{\omega} = \frac{n_0}{2cN_c} \frac{d}{dt} \int N_e(x) dx, \quad (6)$$

где c — скорость света в вакууме.

Для того чтобы оценить изменение электронной плотности, возьмем в качестве грубой оценки характерного времени нарастания плотности плазмы половину длительности импульса (что по порядку величины соответствует результатам численных модельных расчетов [121]). Тогда при $\Delta\omega/\omega = 0.1$ формула (6) дает $\int N_e(x) dx = 2.4 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-2}$. Это согласуется с оценкой величины интегральной плотности плазмы, которая необходима, чтобы обеспечить выраженную модуляцию пространственного распределения интенсивности излучения на основной частоте. Важно отметить, что, как следует из формул (5) и (6), зависимость ширины спектра основного излучения и излучения третьей гармоники от интенсивности падающего излучения (рис. 8) может содержать ценную информацию относительно динамики ионизации в плазме.

Механизм самодефокусировки лазерных импульсов, возникающей вследствие отрицательной добавки к показателю преломления газовой среды за счет генерации электронов, может быть причиной уширения спектров и пространственного самовоздействия лазерных импульсов, наблюдаемых в экспериментах по генерации второй и третьей

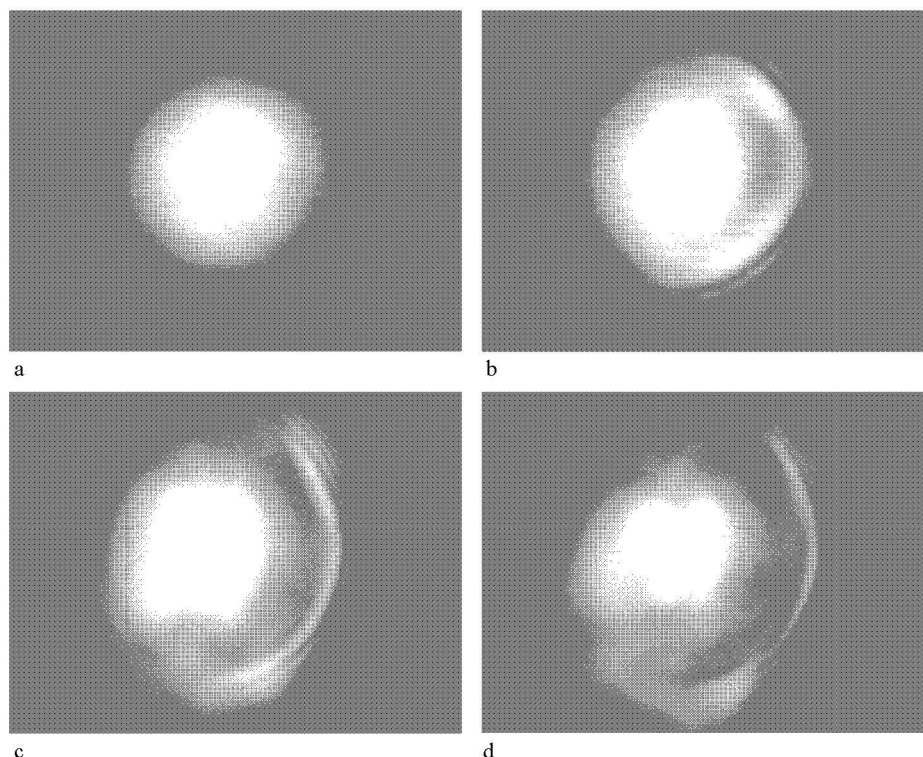


Рис. 7. Пространственное распределение профиля пучка лазерного излучения, прошедшего через лазерную плазму самопробоя для различных энергий излучения накачки: 80 (а), 200 (б), 500 (в) и 800 мкДж (г)

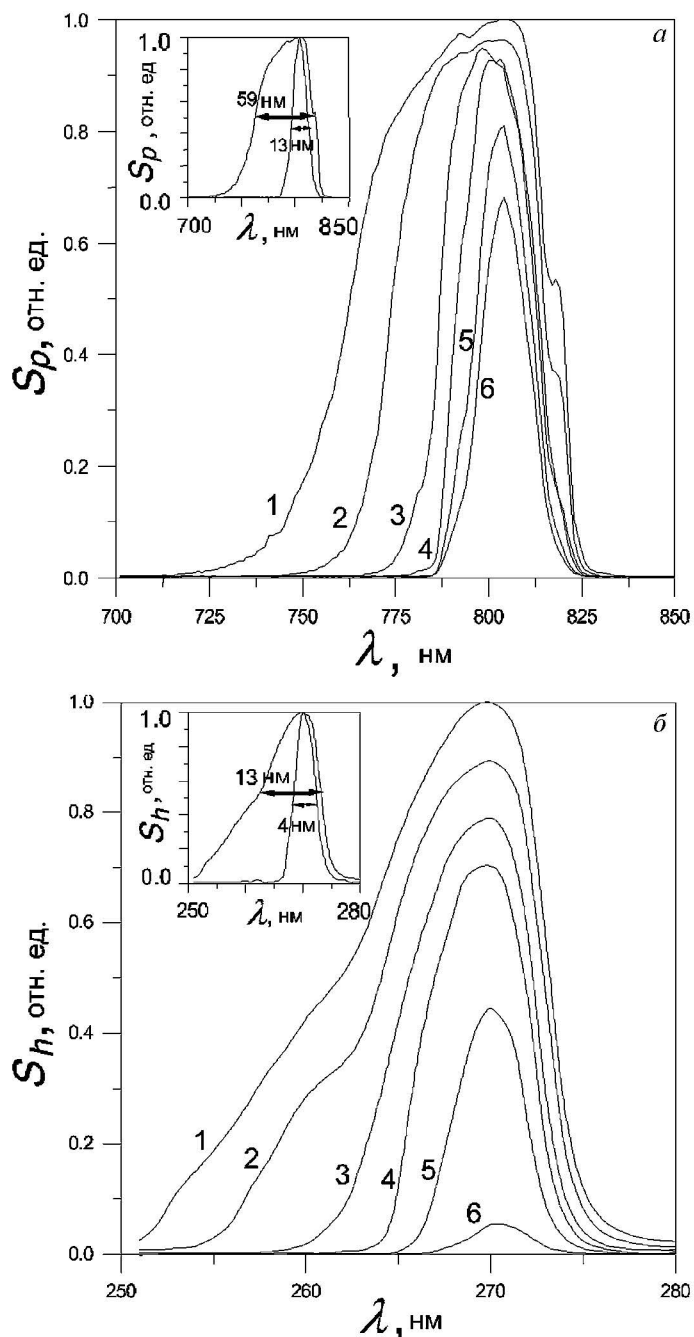


Рис. 8. Спектры основного излучения (а) и третьей гармоники (б) для различных значений энергии падающего излучения: 0.800 (1), 0.500 (2), 0.320 (3), 0.200 (4), 0.125 (5) и 0.080 мДж (6)

оптических гармоник в лазерной плазме (рис. 7, 8). Исследования, выполненные в работах [92, 93], демонстрируют высокую эффективность генерации третьей гармоники в плазме оптического пробоя при использовании фемтосекундных импульсов с высокой частотой повторения, получаемых с помощью стандартных систем на основе лазеров на сапфире с титаном. Световые импульсы с длительностью 80 фс и энергией 1 мДж позволяют реализовать генерацию третьей гармоники с эффективностью до 0.17%. Генерация третьей гармоники в поле сильных сверхкоротких импульсов сопровождается пространственным самовоздействием и уширением

спектра импульсов основного излучения и этой гармоники. Пространственное и временное самовоздействие света оказывает существенное влияние на зависимость эффективности генерации третьей гармоники от энергии основного излучения и является основным фактором, ограничивающим эту эффективность в плазме оптического пробоя атмосферного воздуха в сильных полях сверхкоротких импульсов. Оценки, сделанные на основе результатов экспериментальных измерений, подтверждают, что пространственное и временное самовоздействие мощных коротких световых импульсов в плазме оптического пробоя может быть объяснено влиянием отрицательной добавки к показателю преломления газа, связанной с генерацией электронов в поле пучка накачки.

2. Генерация сверхкоротких импульсов методами нелинейной оптики газовых сред

Благодаря интенсивному развитию элементной базы твердотельных фемтосекундных лазеров, включая создание и совершенствование различных типов многослойных и чирпированных диэлектрических зеркал, к настоящему времени созданы полностью твердотельные и достаточно компактные лазерные системы, позволяющие получать импульсы длительностью менее 10 фс [122]. В последнее время подобные импульсы становятся рутинным средством лазерного эксперимента. Однако исследование нелинейно-оптических процессов в газовых средах остается одним из основных направлений оптики сверхкоротких импульсов благодаря возможности получения импульсов высокой энергии и перспективам продвижения в аттосекундный диапазон длительностей. Остановимся на этой активно развивающейся области исследований.

2.1. Полые волноводы

Многие значительные достижения нелинейной оптики и оптики сверхкоротких лазерных импульсов в последние пять лет связаны с использованием заполненных газом полых диэлектрических волноводов. Ввиду того что величина порога оптического пробоя для газа, заполняющего волновод, существенно выше, чем для обычных оптических волокон, полые волноводы (ПВ) позволяют получать достаточно мощные сверхкороткие лазерные импульсы, содержащие несколько осцилляций светового поля. Явление фазовой самомодуляции в наполненных газом ПВ активно используется в последнее время в связи с возможностями получения коротких мощных световых импульсов. В частности, авторами [123, 124] было показано, что использование ПВ дает возможность генерировать импульсы с длительностью менее 5 фс и энергией несколько десятков микроджоулей. Схема компрессии световых импульсов, предложенная и реализованная в

работах [123, 124], в настоящее время широко используется в фемтосекундных лазерных системах [122], что позволяет достичь высоких эффективностей нелинейно-оптических процессов (включая нелинейно-оптические процессы высоких порядков [39, 125]) и рекордного временного разрешения при исследовании сверхбыстрых процессов [126].

Волноводным модам ПВ присущи оптические потери, связанные с характером распространения оптического излучения в подобных волокнах. Анализ влияния оптических потерь при нелинейно-оптических взаимодействиях в ПВ представляется исключительно важным для оптимизации параметров таких волноводов, используемых для получения сверхкоротких импульсов. В работах [127, 128] исследовано уравнение фазовой самомодуляции короткого лазерного импульса в наполненном газом ПВ с потерями. Полученное простое аналитическое решение этого уравнения позволяет определить основные характеристики процесса и учесть влияние оптических потерь волноводных мод при оптимизации параметров компрессоров импульсов на основе наполненных газом ПВ.

Так как техника ПВ позволяет использовать мощные лазерные импульсы, данный подход также весьма перспективен для оптического преобразования частоты методами параметрического взаимодействия световых волн и генерации гармоник. Эксперименты [129] показали, что использование техники ПВ позволяет достичь высоких эффективностей преобразования частоты лазерного излучения при генерации третьей гармоники (0.2%) и параметрическом четырехволновом взаимодействии (13%). Авторы [129] также экспериментально продемонстрировали, что фазовое рассогласование при нелинейно-оптическом взаимодействии, связанное с дисперсией газа, может быть компенсировано за счет дисперсии волноводных мод. Эффективность нелинейно-оптического взаимодействия при этом существенно возрастает, открывая возможности повышения энергии излучения на частоте высоких гармоник и управления параметрами гармоник путем изменения характеристик излучения накачки [130–132].

Последующие интенсивные исследования нелинейно-оптических процессов преобразования частоты в ПВ [133–136] показали, что путем компенсации фазовой расстройки в ПВ удастся увеличить эффективность преобразования частоты при генерации гармоник вплоть до 45-го порядка в $100 \div 1000$ раз по сравнению с экспериментами в газовых струях [27–31]. Как показывают экспериментальные исследования [137–139], ПВ также обеспечивают увеличение чувствительности и расширяют возможности методов когерентной четырехфотонной спектроскопии. Результаты теоретического анализа [140, 141] позволяют заключить, что процессы последо-

вательной генерации гармоник высокого порядка в ПВ дают возможность дополнительного увеличения энергии излучения гармоник по сравнению со случаем прямого процесса. Наполненный газом ПВ при этом может быть использован в качестве эффективного многочастотного источника когерентного коротковолнового излучения.

Использование ПВ в ряде случаев позволяет успешно решить проблему фазового рассогласования волн накачки и сигнала, генерируемого в результате невырожденного по частоте нелинейно-оптического процесса. Путем выбора параметров ПВ, давления газа и возбуждения соответствующих волноводных мод удается обеспечить условия, при которых волноводная составляющая фазовой расстройки компенсирует фазовую расстройку, связанную с дисперсией газа [129, 131, 136]. При выполнении этих условий возможно повышение энергии сигнала, генерируемого в результате нелинейно-оптического процесса, путем увеличения длины полового волновода.

2.2. Управление сверхкороткими световыми импульсами

Управление параметрами коротких импульсов коротковолнового излучения, получаемого в результате нелинейно-оптических процессов в ПВ, может осуществляться за счет эффекта фазовой кросс-модуляции [130–132]. В частности, в случае генерации третьей гармоники в ПВ импульс основного излучения эффективно взаимодействует с импульсом третьей гармоники и в то же время испытывает, согласно [123, 124], достаточно сильную фазовую самомодуляцию. Можно предположить, что третья гармоника также должна быть промодулирована по фазе благодаря эффекту фазовой кросс-модуляции [130, 131]. Аналогичные явления, связанные с фазовой само- и кросс-модуляцией, наблюдались в экспериментах по генерации третьей гармоники в поле сверхкоротких лазерных импульсов при оптическом пробое воздуха [92, 93] в условиях, когда временное самовоздействие световых импульсов сопровождалось самодефокусировкой основного излучения вследствие наведенного профиля плотности плазменных электронов. Согласно результатам теоретического анализа [142], эффект фазовой самомодуляции, обусловленной плазменной нелинейностью в условиях ионизации в ПВ, позволяет получать импульсы с линейным чирпом, который может быть эффективно компенсирован при помощи дисперсионной линии задержки (анализу эффектов ионизации при генерации гармоник в ПВ также посвящена работа [143]).

Рассмотрим процесс генерации третьей гармоники в ПВ, заполненном газовой средой с нелинейностью третьего порядка. При анализе данного явления будем использовать приближение медленно

меняющихся амплитуд, предполагая, что длительность световых импульсов велика по сравнению с периодом светового поля. Наглядные аналитические выражения, описывающие процесс генерации третьей гармоники в ПВ с учетом влияния само- и кросс-модуляции, могут быть получены в случае, когда можно ограничиться рассмотрением эффектов дисперсии первого порядка.

Представим электрическое поле импульсов основного излучения (накачки) и третьей гармоники, распространяющихся вдоль оси z в ПВ, заполненном газом с безынерционной керровской нелинейностью, в следующем виде:

$$\mathbf{E}_p = (1/2) f_p^{n'n}(\rho) \mathbf{e}_p^{n'n} A^{n'n}(t, z) \times \exp[-i(\omega t - K_p^{n'n} z)] + \text{к. с.}, \quad (7)$$

$$\mathbf{E}_h = (1/2) f_h^{m'm}(\rho) \mathbf{e}_h^{m'm} B^{m'm}(t, z) \times \exp[-i(3\omega t - K_h^{m'm} z)] + \text{к. с.}, \quad (8)$$

где ω — центральная частота основного излучения; индексы p и h относятся к импульсам накачки и третьей гармоники соответственно; $f_p^{n'n}(\rho)$ и $f_h^{m'm}(\rho)$ — поперечные распределения поля основного излучения и третьей гармоники в ПВ, соответствующие собственным модам ПВ с индексами n', n и m', m соответственно; ρ — радиус-вектор в поперечном сечении ПВ; $K_p^{n'n}$ и $K_h^{m'm}$ — константы распространения импульсов накачки и третьей гармоники, соответствующие собственным модам ПВ [144]; $A^{n'n}(t, z)$ — медленно меняющаяся амплитуда импульса основного излучения (предполагается, что возбуждена вполне определенная волноводная мода на частоте основного излучения); $B^{m'm}(t, z)$ — медленно меняющаяся амплитуда импульса третьей гармоники (индексы, соответствующие поперечной моде волны накачки, опущены для простоты записи); $\mathbf{e}_p^{n'n}$ и $\mathbf{e}_h^{m'm}$ — единичные векторы поляризации импульсов основного излучения и третьей гармоники соответственно.

При выполнении неравенств

$$\frac{\omega_l a}{c} \gg 1, \quad (9)$$

$$\left| \frac{K_l^{m'm} c}{\omega_l n_1(\omega_l)} - 1 \right| \ll 1, \quad (10)$$

где $l = p$ или h , $n_1(\omega_l)$ — показатель преломления газа в ПВ для излучения с частотой ω_l , a — внутренний радиус ПВ, можно воспользоваться приближенными аналитическими решениями для поперечного распределения поля и постоянных распространения электромагнитного поля в ПВ [144]. В частности, для EH_{1m} мод ПВ имеем

$$f_l^{1m}(\rho) \equiv f_l^m(\rho) = J_0 \left(\frac{u_l^m \rho}{a} \right), \quad (11)$$

где $J_0(x)$ — функция Бесселя нулевого порядка, u_l^m — собственное значение моды EH_{1m} ,

$$K_l^{1m} \equiv K_l^m \approx \frac{\omega_l n_1(\omega_l)}{c} \times \left[1 - \left(\frac{u_l^m c}{a \omega_l n_1(\omega_l)} \right)^2 \left(\frac{1}{2} + \frac{\text{Im}(\mu(\omega_l))}{a \omega_l} c \right) \right], \quad (12)$$

$\mu(\omega_l) = \frac{(\varepsilon_2(\omega_l) + n_1^2(\omega_l))}{2n_1^2(\omega_l)(\varepsilon_2(\omega_l) - n_1^2(\omega_l))^{1/2}}$ для ЕН мод, $\varepsilon_2(\omega_l)$ — диэлектрическая проницаемость стенок волновода на частоте ω_l .

Используя процедуру, подобную описанной в работе [131], получим уравнения для медленно меняющихся амплитуд импульсов накачки $A^n(z, t) \equiv A^{1n}(z, t)$ и третьей гармоники $B^m(z, t) \equiv B^{1m}(z, t)$:

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + \frac{1}{v_p^n} \frac{\partial}{\partial z} \right) A^n = i \tilde{\gamma}_1^n A^n |A^n|^2, \quad (13)$$

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + \frac{1}{v_h^m} \frac{\partial}{\partial z} \right) B^m = i \tilde{\beta}^{mn} (A^n)^3 \times \exp(i \Delta k^{mn} z) + 2i \tilde{\gamma}_2^{mn} B^m |A^n|^2. \quad (14)$$

Здесь v_p^n и v_h^m — групповые скорости импульсов накачки и третьей гармоники;

$$\Delta k^{mn} = K_h^m - 3K_p^n \approx \Delta k_0 + \Delta k_w^{mn} \quad (15)$$

— фазовая расстройка с учетом дисперсии волновода, где $\Delta k_0 = \frac{\omega_h}{c} [n_1(\omega_h) - n_1(\omega_p)]$ и $\Delta k_w^{mn} = \frac{c}{\omega_p} \left[3 \left(\frac{u_p^n}{a} \right)^2 - \frac{1}{3} \left(\frac{u_h^m}{a} \right)^2 \right]$ — компоненты фазовой расстройки за счет дисперсии газа и волновода соответственно (полная фазовая расстройка может быть представлена в виде суммы двух компонент в случае, когда выполняется неравенство $n_1(\omega_l) - 1 \ll 1$); нелинейные коэффициенты $\tilde{\gamma}_1^m$, $\tilde{\gamma}_2^{mn}$, $\tilde{\beta}^{mn}$ могут быть выражены через нелинейно-оптические кубические восприимчивости с соответствующими частотными аргументами:

$$\tilde{\gamma}_1^n = \frac{3\pi\omega^2}{2K_p^n c^2} \mathbf{e}_p^{n*} \chi^{(3)}(\omega; \omega, -\omega, \omega) \mathbf{e}_p^n \mathbf{e}_p^{n*} \times \frac{\int \int [f_p^n(\rho)]^4 \rho d\rho d\theta}{\int \int [f_p^n(\rho)]^2 \rho d\rho d\theta}, \quad (16)$$

$$\tilde{\gamma}_2^{mn} = \frac{27\pi\omega^2}{2K_h^m c^2} \mathbf{e}_h^{m*} \hat{\chi}^{(3)}(3\omega; 3\omega, -\omega, \omega) \mathbf{e}_h^m \mathbf{e}_p^{n*} \mathbf{e}_p^n \times$$

$$\times \frac{\iint [f_h^m(\rho)]^2 [f_p^n(\rho)]^2 \rho d\rho d\theta}{\iint [f_h^m(\rho)]^2 \rho d\rho d\theta}, \quad (17)$$

$$\tilde{\beta}^{mn} = \frac{9\pi\omega^2}{2K_h^m c^2} \mathbf{e}_h^{m*} \hat{\chi}^{(3)}(3\omega; \omega, \omega, \omega) \mathbf{e}_p \mathbf{e}_p \mathbf{e}_p \times$$

$$\times \frac{\iint f_h^m(\rho) [f_p^n(\rho)]^3 \rho d\rho d\theta}{\iint [f_h^m(\rho)]^2 \rho d\rho d\theta}. \quad (18)$$

Уравнения (13) и (14) аналогичны уравнениям, описывающим генерацию третьей гармоники в газовой среде с учетом эффектов фазовой само- и кросс-модуляции в приближении плоских волн. Нелинейное слагаемое в правой части уравнения (13) соответствует эффекту фазовой самомодуляции. Первое слагаемое в правой части уравнения (14) описывает нелинейную поляризацию среды третьего порядка, ответственную за генерацию и фазовую кросс-модуляцию третьей гармоники за счет фазовой самомодуляции импульса основного излучения. Второе слагаемое в правой части этого уравнения отвечает за фазовую кросс-модуляцию, возникающую вследствие модуляции показателя преломления на частоте третьей гармоники импульсом основного излучения. При записи уравнения (14) предполагалось, что импульс третьей гармоники имеет достаточно малую интенсивность и фазовой самомодуляцией этого импульса можно пренебречь. Однако, в отличие от приближения плоских волн, уравнения (13) и (14) учитывают влияние волновода посредством констант распространения (12), групповых скоростей накачки и третьей гармоники, а также нелинейных коэффициентов (16)–(18), записанных с учетом поперечных распределений полей накачки и третьей гармоники для соответствующих мод волновода. В частности, расстройка волновых векторов, входящая в уравнение (14) и определяющая эффективность генерации третьей гармоники, зависит не только от дисперсии газа, но и от дисперсии волноводных мод. Данное обстоятельство, как было отмечено в работах [129–131], дает возможность улучшить условия фазового согласования для определенной пары поперечных мод излучения накачки и третьей гармоники.

Решая систему уравнений (13) и (14), получаем следующие выражения для амплитуд импульсов основного излучения и третьей гармоники:

$$A^n(\eta_p^n, z) = A_0^n(\eta_p^n) \exp \left[i\tilde{\gamma}_1^n |A_0^n(\eta_p^n)|^2 z \right], \quad (19)$$

$$B^m(\eta_h^m, z) =$$

$$= i\tilde{\beta}^{mn} \exp \left[2i\tilde{\gamma}_2^{mn} \int_0^z |A_0^n(\eta_h^m + \zeta^{mn} z')|^2 dz' \right] \times$$

$$\times \int_0^z dz' (A_0^n(\eta_h^m + \zeta^{mn} z'))^3 \times$$

$$\times \exp \left[-i\Delta k^{mn} z' + 3i\tilde{\gamma}_1^m |A_0^n(\eta_h^m + \zeta^{mn} z')|^2 z' - \right.$$

$$\left. - 2i\tilde{\gamma}_2^{mn} \int_0^{z'} |A_0^n(\eta_h^m + \zeta^{mn} z'')|^2 dz'' \right], \quad (20)$$

где $\eta_l^m = (t - z/v_l^m)/\tau$ — время в системе координат, распространяющейся с одним из импульсов ($l = p, h$), нормированное на длительность импульса τ падающего излучения; $\zeta^{mn} = (1/v_h^m - 1/v_p^n)/\tau$. Вследствие того что мы ограничили наше рассмотрение первым порядком теории дисперсии, импульс основного излучения (19) распространяется в среде без изменения формы огибающей, $A^n(\eta_p^n, z) = A_0^n(\eta_p^n)$, где $A_0^n(\eta_p^n)$ — форма огибающей на входе в среду. Нелинейный набег фазы импульса основной частоты за счет фазовой самомодуляции может быть записан в виде

$$\Phi_{SPM} = \tilde{\gamma}_1^n A_0^n(\eta_p^n)^2 z. \quad (21)$$

Подобно решениям уравнений (13) и (14), решения для импульсов накачки и третьей гармоники формально аналогичны выражениям, полученным в приближении плоских волн [130], но, в отличие от них, учитывают дисперсию волноводных мод и поперечные распределения интенсивности импульса накачки и третьей гармоники.

Результаты численных расчетов, представленные на рис. 9, свидетельствуют о том, что импульс третьей гармоники оказывается промодулированным по фазе вследствие эффектов фазовой кросс-модуляции, а его спектр значительно уширен даже по сравнению со спектром импульса накачки, испытывающим влияние фазовой самомодуляции. Благодаря этому импульс третьей гармоники может быть эффективно сжат путем компенсации линейного chirpa (рис. 10).

Идея генерации сверхкоротких световых импульсов коротковолнового излучения с помощью фазовой кросс-модуляции при нелинейно-оптическом взаимодействии в ПВ была реализована в работе [132]. В экспериментах [132] исследовался процесс генерации разностной частоты, идущий по схеме $3\omega = 2\omega + 2\omega - \omega$, где ω — частота основного излучения лазера на сапфире с титаном (длина волны 800 нм), 2ω — частота второй гармоники этого лазера (длина волны 400 нм). Энергия импульса с частотой 3ω (длина волны 270 нм) на выходе волновода достигала 10 мкДж. Коэффициент

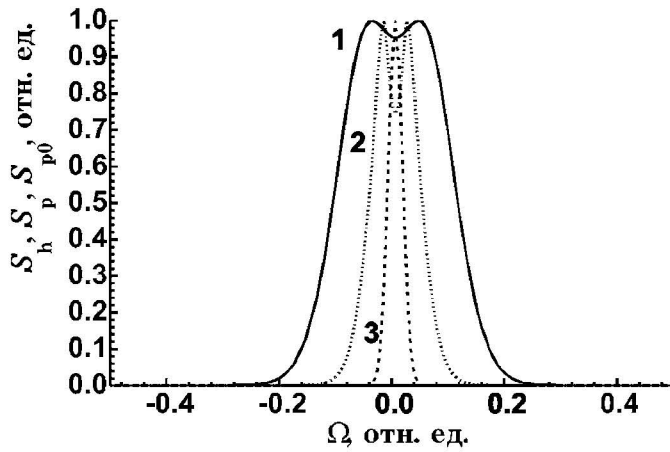


Рис. 9. Модуль амплитуды спектра моды EH_{11} импульса третьей гармоники $S_h = \left| \frac{1}{2\pi} \int B^1(\eta, L) \exp(i\Omega\eta) d\eta \right|$ (1) и импульса накачки на выходе из волновода: $S_p = \left| \frac{1}{2\pi} \int A^1(\eta, L) \exp(i\Omega\eta) d\eta \right|$ (2) и на входе в волновод: $S_{p0} = \left| \frac{1}{2\pi} \int A^1(\eta, 0) \exp(i\Omega\eta) d\eta \right|$ (3) при $p = 0.536$ атм, $P_{p0} = 2$ ГВт

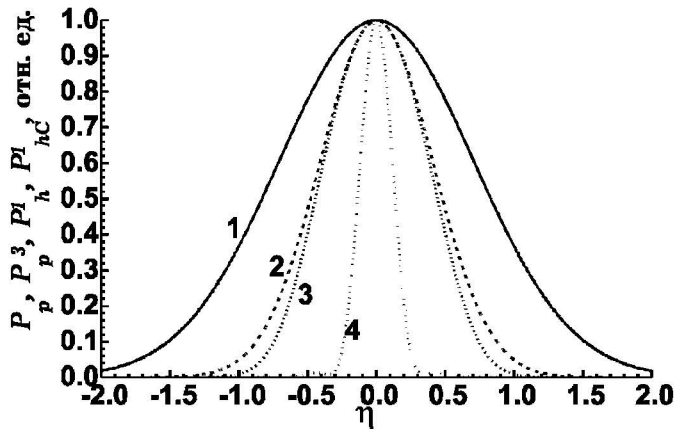


Рис. 10. Зависимость нормированных мощности импульса накачки P_p (1), P_p^3 (2) и мощности EH_{11} моды импульса третьей гармоники на выходе из волновода P_h^1 (3) и после компенсации линейного chirpa $P_h^1_{hc}$ (4) от бегущего времени η при $p = 0.536$ атм, $P_{p0} = 2$ ГВт

преобразования энергии второй гармоники в излучение частоты 3ω превышал 20%. Длительность импульса основного излучения составляла 35 фс. При малых мощностях основного излучения длительность импульса частоты 3ω составляла примерно 20 фс, а при увеличении мощности спектр импульса частоты 3ω испытывал значительное уширение за счет эффекта фазовой кросс-модуляции. Использование призмного компрессора позволило авторам [132] получить импульсы излучения 3ω с длительностью 8 фс и временным профилем достаточно высокого качества. Согласно оценкам [132], наблюдавшееся спектральное уширение третьей гармоники дает возможность получить импульсы длительностью менее 3 фс.

Важно отметить, что задача создания источников сверхкоротких световых импульсов в ультрафиолетовом спектральном диапазоне актуальна для многих практических задач, включая спектроско-

пию высокого временного разрешения атомарных и молекулярных систем, для изучения быстропротекающих процессов в твердом теле, а также для медицинских и биологических приложений. При этом экспериментальные схемы, позволяющие генерировать сверхкороткие импульсы излучения в ультрафиолетовом спектральном диапазоне, во многих отношениях предпочтительнее схем, в которых сначала получается сверхкороткий импульс основного излучения, а затем осуществляется преобразование

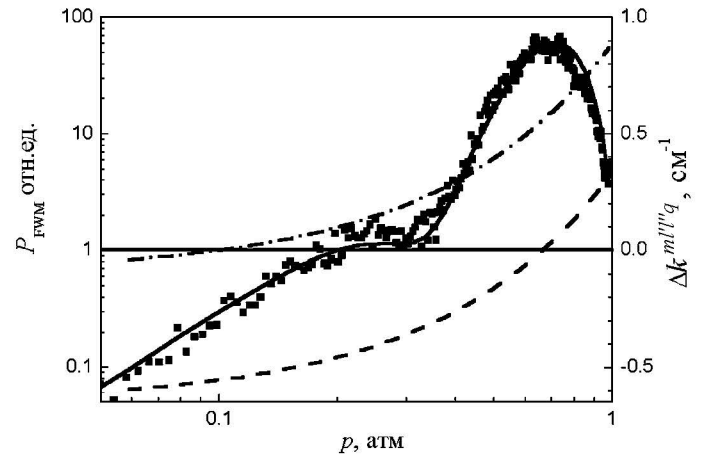


Рис. 11. Зависимости мощности сигнала четырехволнового взаимодействия (ЧВВ) (квадраты — экспериментальные данные, сплошная линия — расчет) и фазовой расстройки для ЧВВ-процесса $3\omega = 2\omega + 2\omega - \omega$, идущего в основной волноводной моде EH_{11} (штриховая линия) и с участием EH_{12} моды основного излучения, EH_{11} и EH_{13} мод второй гармоники и EH_{12} моды ЧВВ-сигнала (штрих-пунктирная линия) в полом волноводе, наполненном аргоном, от давления аргона p . Параметры полого волновода: длина 17.4 см, внутренний диаметр 100 мкм

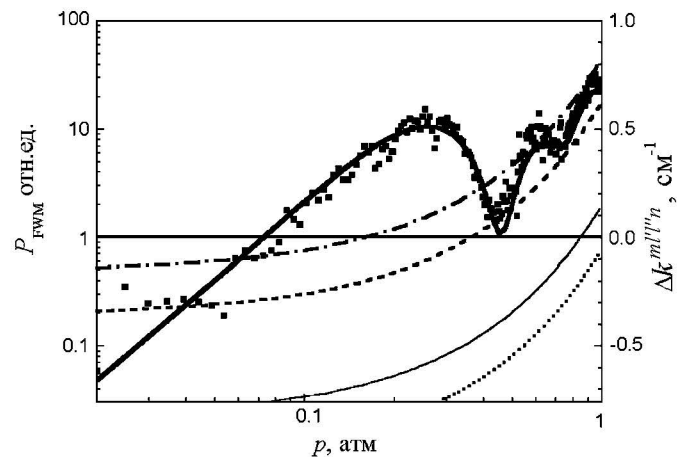


Рис. 12. Зависимости мощности ЧВВ-сигнала (квадраты — экспериментальные данные, жирная сплошная линия — расчет) и фазовой расстройки для ЧВВ-процесса, идущего с участием мод EH_{11} накачки и сигнала (штрих-пунктирная линия); с участием моды EH_{13} основного излучения, мод EH_{11} и EH_{14} второй гармоники и моды EH_{11} сигнала (штриховая линия); с участием мод EH_{11} основного излучения и второй гармоники и моды EH_{12} сигнала (тонкая сплошная линия) и с участием моды EH_{11} основного излучения, мод EH_{11} и EH_{12} второй гармоники и моды EH_{13} сигнала (точечная линия) в полом волноводе, наполненном аргоном, от давления аргона p . Параметры волновода: длина 20.1 см, внутренний диаметр 203 мкм

частоты с помощью нелинейных кристаллов. Это связано с тем, что использование нелинейных кристаллов при преобразовании частоты сверхкоротких импульсов затруднено из-за эффектов групповой дисперсии, группового запаздывания и ограниченности спектральной области фазового синхронизма.

В работах [138, 139, 145] были экспериментально исследованы процессы генерации третьей гармоники и разностной частоты в результате четырехволнового взаимодействия пикосекундных импульсов в наполненных газом ПВ. Улучшение условий фазового согласования путем изменения давления газа и выбора оптимальных параметров ПВ позволило использовать для генерации разностной частоты ПВ большой длины (до 30 см), что привело к существенному увеличению мощности сигнала разностной частоты на выходе волновода. Показано, что волноводный режим нелинейно-оптических взаимодействий, реализуемый в ПВ, позволяет снять ограничения на эффективность генерации третьей гармоники и суммарной частоты, характерные для режима жесткой фокусировки в средах с нормальной дисперсией и связанные с геометрическим набегом фазы жестко сфокусированных световых пучков. Полученные экспериментальные данные (рис. 11, 12) свидетельствуют о заметном влиянии волноводных мод высших порядков на процессы четырехволнового взаимодействия (ЧВВ). Данный эффект может быть использован для увеличения энергии коротковолнового излучения, получаемого при нелинейно-оптических взаимодействиях в ПВ. Эффекты, связанные с влиянием волноводных мод высших порядков, также необходимо принимать во внимание при оптимизации преобразователей частоты, а также при создании компрессоров импульсов и синтезаторов сверхкоротких импульсов на основе ПВ в условиях, когда возбуждение высших волноводных мод приводит к нежелательным потерям энергии.

2.3. Аттосекундные импульсы

Современная лазерная физика вплотную приблизилась к фемтосекундному рубежу длительностей лазерных импульсов, и созданы все предпосылки для прорыва в область аттосекундных импульсов. В настоящее время активно обсуждается несколько способов генерации субфемтосекундных и аттосекундных импульсов. Одна из возможностей выхода за пределы фемтосекундного диапазона основана на явлении генерации гармоник высокого порядка в газовых струях [27–31, 35–39] и в плазме, создаваемой на поверхности твердотельной мишени [107, 108]. Спектр гармоник, генерируемых в интенсивном лазерном поле, содержит участок (плато), в пределах которого амплитуды гармоник различных порядков примерно равны друг другу. Фазировка этих гармоник, как показывает теоретический анализ, выполненный в работах [109, 146–149], позволя-

ет формировать последовательности аттосекундных импульсов. Пути решения ключевой для данного метода проблемы фазировки гармоник различных порядков широко обсуждаются в литературе [109, 146–149]. Активно исследуются также пути выделения одиночных импульсов из их последовательностей, формируемых при этих условиях [147, 148]. Авторы работы [150] показывают, что возможно формирование одиночных аттосекундных импульсов путем использования свойств гармоник, излучаемых газовой средой под действием сверхкороткого (с длительностью менее 5 фс) лазерного импульса. Наконец, теоретический анализ и недавно выполненные экспериментальные исследования [151–153] свойств вынужденного комбинационного рассеяния и путей фазировки стоксовых и антистоксовых компонент, генерируемых в комбинационно-активных средах, показали, что для получения аттосекундных импульсов не обязательно наличие сверхсильных световых полей. Высокие эффективности генерации стоксовых и антистоксовых компонент могут быть достигнуты при умеренных интенсивностях излучения накачки [153]. С помощью надлежащего выбора условий возбуждения комбинационно-активных колебаний среды при этом удается достичь фазовых соотношений между стоксовыми и антистоксовыми компонентами, позволяющих рассчитывать на возможность использования такого подхода для формирования субфемтосекундных и аттосекундных импульсов. Однако вследствие дисперсии групповой скорости, присущей любой реальной среде, и отсутствия методов регистрации субфемтосекундных и аттосекундных импульсов до настоящего времени не удалось зарегистрировать аттосекундные импульсы.

Рассмотрим подробнее возможности формирования сверхкоротких световых импульсов путем генерации множественных стоксовых и антистоксовых компонент в комбинационно-активной среде, предварительно возбужденной коротким лазерным импульсом. Основная идея этого метода, предложенного и экспериментально реализованного в серии работ [154–157], заключается в следующем. Комбинационно-активные колебательные моды молекул газа, предварительно возбужденные коротким лазерным импульсом накачки с длительностью менее периода колебаний молекул, модулируют пробный импульс, поступающий в среду с некоторой задержкой относительно импульса накачки, и приводят к генерации множественных стоксовых и антистоксовых компонент. Амплитудные и фазовые соотношения между возникшими стоксовыми и антистоксовыми компонентами позволяют осуществить синтез сверхкоротких импульсов. Важные преимущества данного метода формирования сверхкоротких импульсов связаны с тем, что такой подход позволяет разнести во времени процесс приготовления среды мощным

лазерным импульсом и процесс генерации стоксовых и антистоксовых компонент в поле пробного импульса умеренной интенсивности. При этом имеется возможность устранить влияние конкурирующих процессов, включая эффекты самовоздействия лазерных импульсов, ионизации среды и уширения и сдвига стоксовых и антистоксовых компонент, на процесс формирования короткого импульса.

Для увеличения длины взаимодействия импульсов накачки и пробного импульса с комбинационно-активной средой авторами экспериментов [155–157] использовался ПВ, длина которого составляла $70 \div 100$ см. Расстройка групповых скоростей импульса накачки и пробного импульса может быть при этом одним из основных факторов, ограничивающих число возбуждаемых стоксовых и антистоксовых компонент, который в конечном счете не позволяет получить предельно короткие световые импульсы. Ниже будет показано, что в ПВ этот фактор может быть существенно уменьшен за счет дисперсии волноводных мод путем правильного выбора давления газа, диаметра ПВ и пары волноводных мод. Ослабление влияния эффектов группового запаздывания при этом позволяет существенно увеличить число генерируемых стоксовых и антистоксовых компонент и открывает возможность значительного сокращения длительности синтезируемых таким образом световых импульсов.

Влияние расстройки групповых скоростей на формирование сверхкоротких импульсов. Для анализа возможностей синтеза сверхкоротких импульсов путем генерации множественных стоксовых и антистоксовых компонент воспользуемся приближением медленно меняющихся амплитуд. Разумеется, такое приближение, строго говоря, неприменимо для описания эволюции сверхкоротких световых импульсов, однако оно представляется чрезвычайно полезным для выяснения основных тенденций эволюции спектра импульса, распространяющегося в комбинационно-активной среде, понимания роли эффектов группового запаздывания при синтезе сверхкоротких импульсов из множественных стоксовых и антистоксовых компонент и иллюстрации путей уменьшения групповой расстройки с помощью использования дисперсии волноводных мод.

Ограничивая для простоты записи наше рассмотрение случаем EH_{1q} мод ПВ, запишем поля импульса накачки и пробного импульса, распространяющиеся вдоль оси z в ПВ (рис. 13), в следующем виде:

$$E_1 = (1/2)f^m(\rho)A(t, z)\exp[-i(\omega_1 t - K_1^m z)] + \text{к. с.}, \quad (22)$$

$$E_2 = (1/2)f^n(\rho)B(t, z)\exp[-i(\omega_2 t - K_2^n z)] + \text{к. с.}, \quad (23)$$

где ω_1 и ω_2 — центральные частоты, а $A(t, z)$ и $B(t, z)$ — медленно меняющиеся амплитуды импульсов накачки и пробного импульса соответственно;

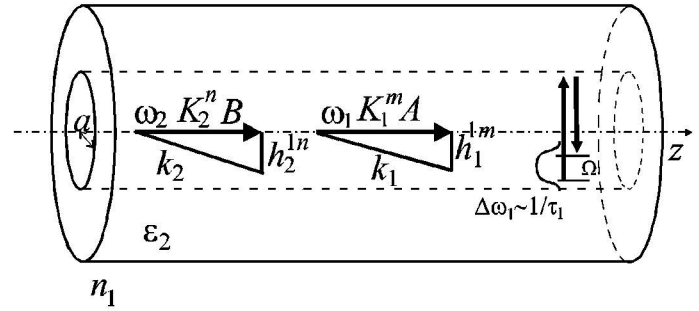


Рис. 13. Распространение световых импульсов в полом волноводе. Первый импульс возбуждает комбинационно-активные моды молекул газа, заполняющего волновод. Второй импульс генерирует множественные стоксовые и антистоксовые компоненты в соответствии со схемой [154–157]. Волноводная составляющая дисперсии позволяет компенсировать расстройку групповых скоростей импульса накачки и зондирующего импульса

$f^q(\rho)$ — поперечное распределение поля, отвечающее моде EH_{1q} ПВ; ρ — расстояние от оси ПВ; K_1^n, K_2^m — константы распространения импульсов накачки и пробного импульса, соответствующие собственным модам ПВ.

Импульс накачки (22) возбуждает в среде комбинационно-активные моды Q , свободное затухание которых описывается следующим выражением [156]:

$$Q(t) = Q_0 \exp(-t/T_2) \sin[(\Omega^2 - 1/T_2^2)^{1/2} t], \quad (24)$$

где Q_0 — амплитуда колебаний, пропорциональная энергии импульса накачки; T_2 — время дефазировки молекулярных колебаний, Ω — собственная частота молекулярных колебаний.

Решение уравнения эволюции комплексной огибающей пробного импульса, поступающего в среду с некоторой задержкой относительно импульса накачки, для случая плоских волн в условиях, когда время дефазировки T_2 значительно превышает период молекулярных колебаний и длительности световых импульсов, найдено в работе [156]. В рассматриваемом случае комбинационного взаимодействия, происходящего в собственных модах ПВ, решение имеет полностью аналогичный вид:

$$B(\tau, z) = B(\tau, 0) \times \exp \left[-i\gamma \frac{\sin(\Delta K_{mn} z)}{\Delta K_{mn}} \sin(\Omega \tau + \Delta K_{mn} z) \right]. \quad (25)$$

Здесь $\tau = t - z/v_2^n$, $B(\tau, 0)$ — начальная огибающая пробного импульса,

$$\Delta K_{mn} = \Omega(1/v_2^n - 1/v_1^m)/2 \quad (26)$$

— параметр, характеризующий расстройку групповых скоростей,

$$\gamma = \frac{2\pi}{c} \omega_2 N Q_0 \frac{\partial \alpha}{\partial \omega}, \quad (27)$$

где N — концентрация комбинационно-активных молекул в газе, $\partial\alpha/\partial Q$ — производная поляризуемости молекул газа по колебательной координате. Выражение (25) учитывает влияние волноводных эффектов посредством групповых скоростей импульсов в волноводе и коэффициента γ , нормированного с учетом поперечного распределения полей в волноводных модах.

Спектр пробного импульса при этом представляет собой суперпозицию эквидистантных спектральных компонент $\omega_s = \omega_2 + s\Omega$ ($s = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$), где Ω — частота молекулярных колебаний. Число стоксовых и антистоксовых компонент в спектре пробного импульса растет по мере увеличения длины взаимодействия. Для многих газов серьезной

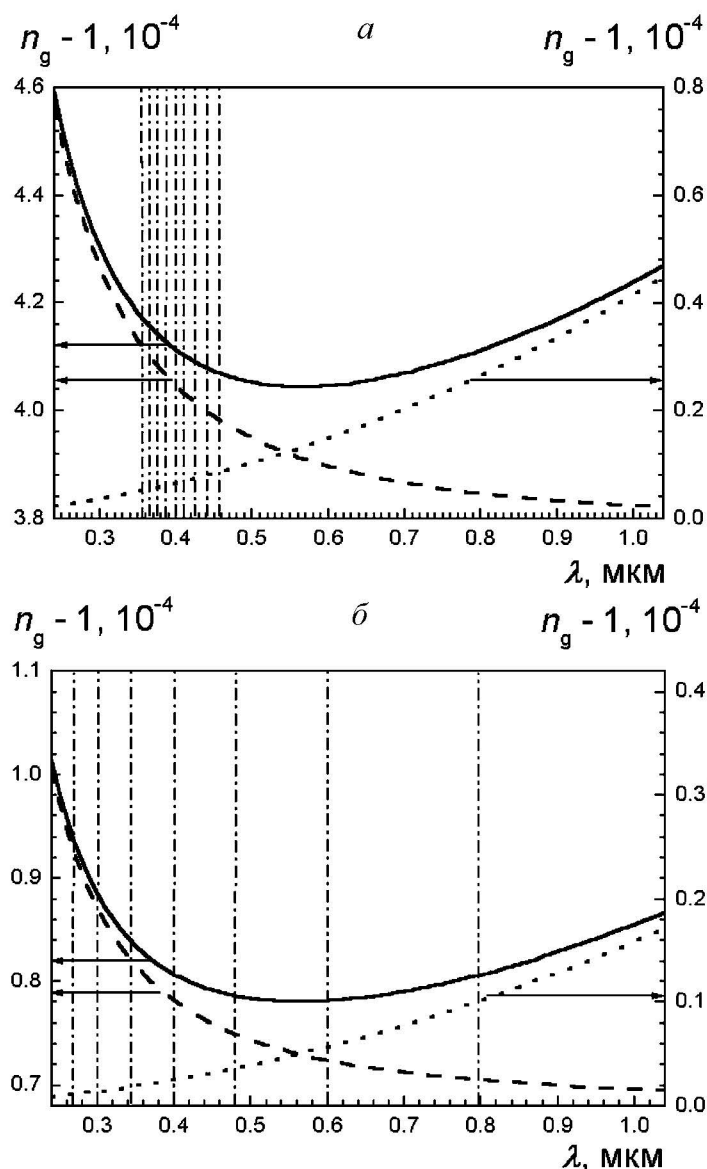


Рис. 14. Зависимость группового индекса $n_g = c/v_g$ от длины волны для газа (штриховые линии), для волноводной моды EH_{11} (точечные линии) и для моды EH_{11} (сплошные линии) наполненного газом полого волновода в случае различных комбинационно-активных газов: SF_6 (а) и H_2 (б). Давление газа 0.5 атм, внутренний радиус волновода равен 42 (а) и 68 мкм (б)

проблемой при этом может быть расстройка групповых скоростей импульсов накачки и пробного импульса (штриховые линии на рис. 14, а, б), ограничивающая увеличение длины взаимодействия характерной длиной группового разбегания $l_{mn}^g = \pi/(2\Delta K_{mn})$, на которой групповая задержка импульсов накачки и пробного импульса становится равной половине периода молекулярных колебаний. В частности, для импульсов излучения с длиной волны 800 и 400 нм, распространяющихся в газе SF_6 при давлении 0.5 атм, групповая задержка без учета волноводной дисперсии (параметр ΔK_0 в таблице), вычисленная на основе данных работы [158], составляет по абсолютной величине примерно 0.049 см^{-1} . Эффекты групповой задержки при этом могут оказаться основным фактором, ограничивающим длительность импульса, в схемах синтеза субфемтосекундных и аттосекундных импульсов, основанных на использовании высокочастотных комбинационно-активных колебаний (см. данные, приведенные в таблице, а также рис. 14, б). Использование двух-трех подобных высокочастотных колебаний, как показано в работе [157], достаточно для преодоления фемтосекундного рубежа длительностей импульсов.

Частоты комбинационно-активных колебаний, групповые расстройки, оптимальные внутренние радиусы полых волноводов и длина затухания волноводных мод для ряда газов, обладающих интенсивными комбинационно-активными модами

Газ	$\Delta k, \text{ см}^{-1}$	$\Delta K_0, \text{ см}^{-1}$	$a, \text{ мкм}$	$L_a, \text{ см}$	N
SF_6	775	0.049	42	30	22
N_2	2330	0.087	54	63	8
O_2	1555	0.07	49	45	11
CO_2	1388	0.094	40	25	12
H_2	4160	0.1	68	115	4

Обозначения Δk — частота комбинационно-активных колебаний (из [158]); ΔK_0 — групповые расстройки для импульсов излучения с длиной волны 800 и 400 нм в отсутствие волновода, рассчитанные для давления газа 0.5 атм на основе данных из [158]; a — оптимальные внутренние радиусы полых волноводов, позволяющие достичь группового синхронизма для импульсов излучения с длиной волны 800 и 400 нм в основной волноводной моде при давлении газа в волноводе 0.5 атм; L_a — длина затухания излучения с длиной волны 800 нм в основной волноводной моде, соответствующая оптимальному радиусу полого волновода a ; $N = [2c\Delta k\tau']^{-1}$ ($\tau' = 1 \text{ фс}$) — минимальное число стоксовых и антистоксовых компонент, необходимое для генерации импульса короче 1 фс.

Пути уменьшения групповой расстройки в полых волноводах. Проблема групповой расстройки при описанных выше экспериментальных условиях может быть решена путем использования дисперсии волноводных мод. С физической точки зрения эта возможность связана с тем обстоятельством, что

групповая скорость светового импульса в наполненном газом ПВ (сплошные линии на рис. 14, а, б), определяемая выражением

$$v^{pq} = \left(\frac{\partial K^{pq}}{\partial \omega} \right)^{-1}, \quad (28)$$

где K^{pq} — постоянная распространения, соответствующая собственной моде ПВ с индексами p и q , отличается от групповой скорости импульса в этом же газе в отсутствие волновода (штриховые линии на рис. 14, а, б),

$$v = \left(\frac{\partial k}{\partial \omega} \right)^{-1} = \frac{c}{n} \left(1 + \frac{\omega}{n} \frac{\partial n}{\partial \omega} \right)^{-1}, \quad (29)$$

$k = n\omega/c$, n — показатель преломления газа. Это различие связано с отличием волнового числа k в свободном газе от постоянной распространения для собственной моды ПВ, которая определяется выражением $K^{pq} = (k^2 - h_{pq}^2)^{1/2}$, где величина h_{pq} находится из характеристического уравнения для собственной моды волновода (поясняющая схема для волновых векторов представлена на рис. 13).

Продифференцировав выражение (12) для постоянной распространения, получаем следующую формулу для групповой скорости светового импульса с поперечным распределением поля, соответствующим моде EH_{1m} полого волновода:

$$(v_l^m)^{-1} = (v_l)^{-1} \left[1 + \frac{1}{2} \left(\frac{u_l^m c}{a \omega_l n(\omega_l)} \right)^2 \right], \quad (30)$$

где $v_l = \frac{c}{n(\omega_l)} \left[1 + \frac{\omega_l}{n(\omega_l)} \frac{\partial n}{\partial \omega} \Big|_{\omega_l} \right]^{-1}$ — групповая скорость в свободном газе.

Расстройка групповых скоростей, таким образом, может быть представлена в виде суммы:

$$\Delta K_{mn} = \Delta K_0 + \Delta K_{mn}^w, \quad (31)$$

где ΔK_0 и ΔK_{mn}^w — компоненты, обусловленные дисперсией газа и волновода соответственно. Это позволяет путем правильного выбора параметров газа и ПВ и пары взаимодействующих мод существенно уменьшить расстройку групповых скоростей пробного импульса и импульса накачки. В частности, как следует из выражения (30), волноводная составляющая групповой расстройки уменьшается обратно пропорционально квадрату внутреннего радиуса волновода, $\Delta K_{mn}^w \sim a^{-2}$. Физически данное обстоятельство означает возможность более эффективной компенсации групповых расстройек в ПВ с меньшими внутренними радиусами.

Дисперсионные кривые для групповых индексов комбинационно-активных газов SF_6 и H_2 (рис. 14)

показывают, что при правильном выборе параметров волновода удастся достичь компенсации дисперсии групповой скорости в достаточно широком спектральном диапазоне.

В таблице приведены значения групповых расстроек ΔK_0 световых импульсов с длиной волны 800 и 400 нм для ряда газов, обладающих интенсивными комбинационно-активными модами, при давлении газа $p = 0.5$ атм.

Длина группового разбегания импульсов с длиной волны 800 и 400 нм для газа SF_6 при давлении 0.4 атм, используемого в экспериментах [155–157], составляла примерно 40 см. Групповая расстройка при этих условиях может оказывать существенное влияние на процесс генерации стоксовых и антистоксовых компонент и накладывать существенные ограничения на длительность синтезируемых импульсов. Однако групповая расстройка может быть полностью компенсирована для основных волноводных мод излучения основной частоты и второй гармоники при внутреннем радиусе волновода, равном 47 мкм (для сравнения: внутренний диаметр ПВ, используемого в экспериментах [155], составлял 250 мкм). Аналогичная ситуация наблюдается и для других газов (см. таблицу).

Генерация множественных стоксовых и антистоксовых компонент и синтез сверхкоротких импульсов в отсутствие групповой расстройки.

При малых групповых расстройках ΔK_{mn} выражение (25) для огибающей пробного импульса может быть записано в следующем виде:

$$B(\tau, z) = B(\tau, 0) \sum_{s=-\infty}^{\infty} J_s(\gamma z) \exp(-is\Omega\tau), \quad (32)$$

где $J_s(x)$ — функция Бесселя порядка s .

Как видно из выражения (32), поле пробного импульса представляет собой суперпозицию стоксовых и антистоксовых компонент. Число этих компонент возрастает при увеличении энергии накачки (приводящем к росту параметра γ) и увеличении длины взаимодействия. Минимальная длительность импульса, которая может быть получена путем компенсации чирпа импульса (32), определяется числом M стоксовых и антистоксовых компонент, генерируемых в процессе распространения импульса через среду: $\tau' \approx (2c\Delta k M)^{-1}$ (см. также таблицу). С учетом свойств функций Бесселя значение M , в свою очередь, определяется согласно приближенной формуле $M \approx \gamma L$ (где L — длина комбинационно-активной среды). Увеличение длины взаимодействия, таким образом, является ключевым условием синтеза предельно коротких световых импульсов. Увеличение длины среды ограничено эффектами группового запаздывания (рис. 14, а, б) и дисперсии групповой скорости (рис. 15, а, б). Однако, как видно из рис. 14 и 15, при правильном

выборе параметров волновода волноводная составляющая дисперсии уменьшает групповую задержку

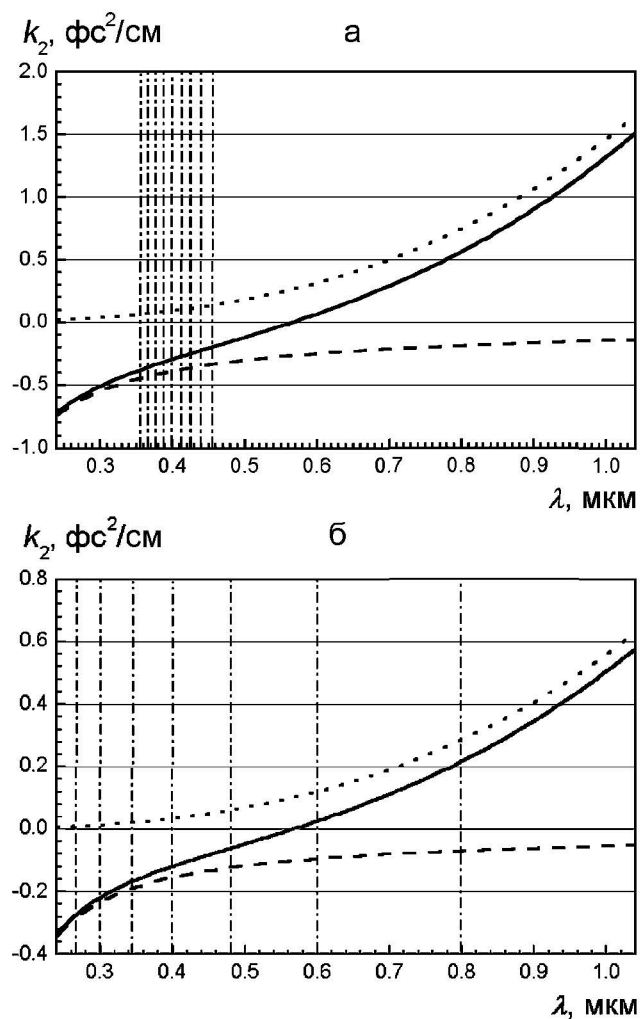


Рис. 15. Зависимость дисперсии групповой скорости от длины волны для газа (штриховые линии), для волноводной моды EH_{11} (точечные линии) и для моды EH_{11} (сплошные линии) наполненного газом полого волновода в случае различных комбинационно-активных газов: SF_6 (а) и H_2 (б). Давление газа составляет 0.5 атм, внутренний радиус волновода равен 42 (а) и 68 мкм (б)

и дисперсию групповых скоростей для стоксовых и антистоксовых компонент. Данное обстоятельство играет особенно важную роль для газов с высокочастотными комбинационно-активными колебаниями. В частности, в случае молекулярного водорода длина группового разбегания стоксовых компонент и пробного импульса с длиной волны 400 нм на половину периода молекулярного колебания в свободном газе при давлении 0.5 атм равна 37 см для первой стоксовой компоненты, 21 см — для второй и 16 см — для третьей стоксовой компоненты. Использование ПВ с внутренним радиусом 68 мкм (рис. 14, б и 15, б) позволяет существенно увеличить эти характерные длины и довести их соответственно до 57 см, 47 и $5 \cdot 10^3$ см.

Таким образом, устранение групповой расстройки импульса накачки и пробного импульса за счет использования волноводной дисперсии полых волокон позволяет добиться оптимальных условий для синтеза сверхкоротких импульсов путем генерации множественных стоксовых и антистоксовых компонент в комбинационно-активной среде. Необходимо отметить, что моды ПВ являются вытекающими и характеризуются отличными от нуля коэффициентами затухания. Увеличение длины волновода при этом неизбежно приводит к росту оптических потерь (характерные длины оптических потерь приведены в пятом столбце таблицы). Один из перспективных путей решения этой проблемы может быть связан с использованием ПВ с оболочкой, имеющей структуру двумерного фотонного кристалла, — так

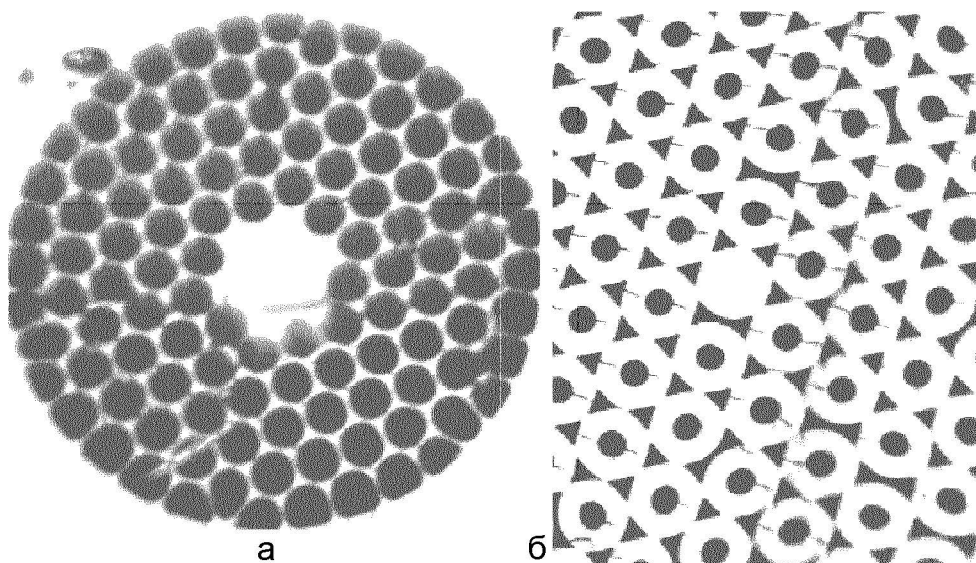


Рис. 16. Изображения срезов дырчатых волноводов с фотонно-кристаллической оболочкой, построенные с помощью микроскопа: период структуры равен 5 (а) и 10 мкм (б)

называемых дырчатых (или фотонно-кристаллических) волокон [159–169] (рис. 16). Наличие фотонной запрещенной зоны в спектре пропускания оболочки в подобных волокнах позволяет существенно снизить оптические потери, характерные для собственных мод ПВ [170, 171].

Итак, расстройка групповых скоростей импульса накачки и пробного импульса может накладывать существенные ограничения на предельную длительность сверхкоротких импульсов, получаемых путем генерации множественных стоксовых и антистоксовых компонент в комбинационно-активной среде, предварительно возбужденной коротким лазерным импульсом. Использование ПВ дает возможность значительно повысить эффективность синтеза сверхкоротких световых импульсов не только путем увеличения длины нелинейно-оптического взаимодействия лазерных импульсов в газе, но и путем использования волноводной дисперсии для уменьшения групповой расстройки световых импульсов. Представление расстройки групповых скоростей для коротких световых импульсов, распространяющихся в ПВ, в виде суммы компонент, связанных с дисперсией газа и дисперсией волноводных мод, позволяет существенно уменьшить разность групповых скоростей импульса накачки и пробного импульса в ПВ за счет правильного выбора сорта и давления газа, диаметра ПВ и пары волноводных мод. Ослабление влияния эффектов группового запаздывания при этом дает возможность существенно увеличить число генерируемых стоксовых и антистоксовых компонент и значительно сократить длительность синтезируемых таким образом световых импульсов.

3. Когерентное четырехволновое взаимодействие как метод исследования сверхбыстрых процессов

Растущий интерес к изучению нелинейно-оптических взаимодействий в газах связан не только с возможностями использования нелинейности подобных сред для генерации когерентного коротковолнового излучения методом оптического преобразования частоты, но и с необходимостью развития локальных невозмущающих методов диагностики быстротекающих процессов в возбужденных газовых средах и плазме. В нелинейной спектроскопии газовых сред [4–9, 22, 172] сигнал несет информацию о химическом составе, населенностях квантовых уровней, температуре, распределении скоростей и других параметрах отдельных молекул или атомов. Одно из основных преимуществ подобных методов состоит в том, что они позволяют зондировать объекты, характеризующиеся высоким уровнем засветок, включая пламена [5–8, 173], сильно возбужденные газы [9, 174, 175] и плазму электрических [9, 176–178] и оптических [9, 78, 79, 179] разрядов. В частности, методы ко-

герентной четырехфотонной спектроскопии широко применяются для диагностики процессов горения в автомобильных и ракетных двигателях [180, 181], исследования реакций, сопровождающих процесс парохимического напыления покрытий [182], изучения активной среды газоразрядных лазеров [183], а также для экологических приложений [184]. Техника когерентного четырехволнового взаимодействия (ЧВВ) может быть использована для построения двумерных изображений распределения физических параметров среды [185–190]. Применение для этой цели широких пучков накачки позволяет построить подобные изображения за один импульс лазерной системы (рис. 17), что чрезвычайно важно при исследовании нестационарных пространственно-неоднородных процессов [191–194].

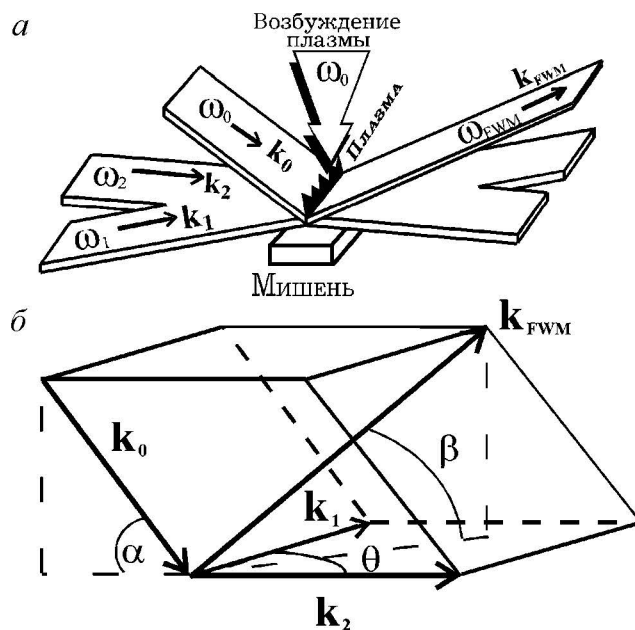


Рис. 17. Построение двумерных изображений пространственного распределения атомов в лазерной плазме на основе схемы одномерного ЧВВ: диаграмма некомпланарного ЧВВ в широких пучках (а) и диаграмма волновых векторов (б)

Фемтосекундная спектроскопия многоволнового смешения в настоящее время является одним из наиболее перспективных направлений нелинейной оптики. Идейный и методический прогресс, наблюдающийся в этой области [195–207], связан, с одной стороны, с быстрым развитием фемтосекундной лазерной техники, с другой — с широкими перспективами использования методов когерентной фемтосекундной нелинейной спектроскопии для исследования сверхбыстрых процессов молекулярной динамики и фотохимических реакций в реальном времени. Важно отметить, что использование фемтосекундных импульсов в схемах четырехфотонной спектроскопии позволяет осуществлять возбуждение и зондирование молекулярных колебаний в широком спектральном диапазоне. При этом имеется возможность одновременного исследования динамики различных колебательных подсистем молекул, а

также волновых пакетов путем измерений, проводимых либо во временном [195] (анализ картины биений в импульсном отклике системы), либо в частотном (путем перестройки длины волны, на которой производится детектирование сигнала [202]) представлении.

Перспективное направление развития методов когерентной фемтосекундной нелинейной спектроскопии связано с использованием световых импульсов с фазовой модуляцией (ФМ). Преимущества метода ЧВВ с применением ФМ-импульсов для исследования сверхбыстрой временной динамики и структуры энергетических уровней молекулярных систем были продемонстрированы в работах [208, 209]. В настоящее время интенсивно исследуются возможности использования ФМ-импульсов для управления молекулярной динамикой и фотохимическими процессами, решения задач квантового управления [210–213]. Авторами работы [214] экспериментально реализована схема, в которой ФМ-импульсы применяются для измерения коэффициента ВКР-усиления.

В работе [215] рассмотрены две схемы когерентной четырехфотонной спектроскопии с использованием ФМ-импульсов. В одной из предложенных схем отстройка разности мгновенных частот возбуждающих ФМ-импульсов от частоты комбинационного резонанса является линейной функцией времени задержки между возбуждающими ФМ-импульсами (рис. 18). Таким образом, имеется возможность реализации схемы четырехфотонной спектроскопии высокого разрешения путем измерения интенсивности нелинейного сигнала как функции времени задержки между импульсами накачки.

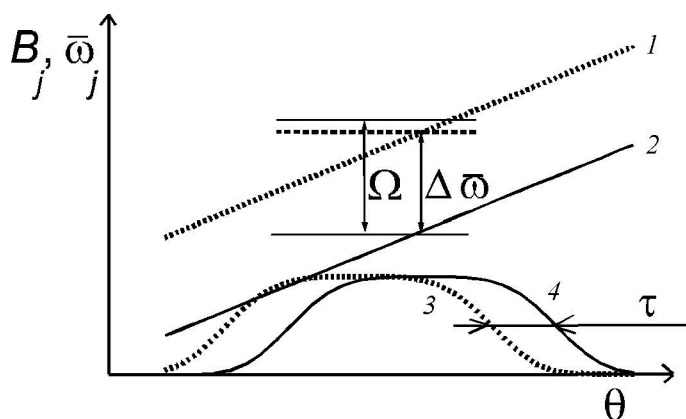


Рис. 18. Зависимости мгновенной частоты $\bar{\omega}_j = \omega_j - \frac{\partial \arg(A_j)}{\partial \theta}$ и амплитуды B_j первого (соответственно пунктирные линии 1 и 3) и второго (сплошные линии 2 и 4) импульсов накачки от бегущего времени в схеме КАРС с использованием ФМ-импульсов. Показаны также разность мгновенных частот первого и второго импульсов накачки $\Delta\bar{\omega} = \bar{\omega}_1 - \bar{\omega}_2$, частота комбинационного резонанса Ω и задержка между импульсами накачки τ

Во второй схеме один из импульсов накачки характеризуется линейной модуляцией частоты, а два

других являются спектрально ограниченными. При этом за счет перестройки мгновенной разности частот импульсов накачки вблизи комбинационного резонанса возможно получение спектральной информации о среде за один лазерный импульс (рис. 19).

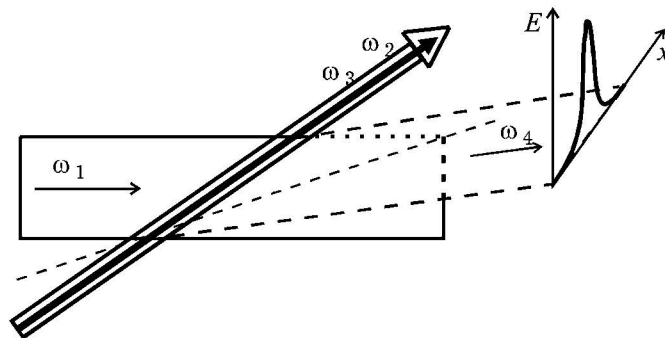


Рис. 19. Диаграмма пучков в схеме спектроскопии КАРС с использованием chirpированных импульсов в широких пучках. Задержка τ плавно изменяется вдоль линии пересечения пучков накачки, что позволяет измерять зависимость сигнала КАРС от времени задержки между импульсами и, следовательно, спектр КАРС в случае использования chirpированных импульсов накачки за один импульс лазерной системы

Схемы когерентного четырехволнового взаимодействия, позволяющие измерять импульсный отклик и спектр нелинейных систем за один лазерный импульс, были рассмотрены в работе [216]. Для этой цели предложено использовать технику неколлинеарного ЧВВ в широких пучках. При этом измерение пространственного профиля интенсивности в широком пучке четырехфотонного рассеяния позволяет исследовать динамику нелинейного отклика среды за один лазерный импульс. Показано, что использование импульсов накачки с линейной модуляцией частоты в схеме спектроскопии когерентного антистоксова рассеяния света (КАРС) в широких неколлинеарных пучках позволяет достичь высокого разрешения при измерении спектров нелинейной восприимчивости среды путем измерения пространственного профиля интенсивности сигнала КАРС за один лазерный импульс. Использование chirpированных импульсов, как показывают недавно выполненные экспериментальные исследования [217], открывает возможности измерения температуры методом фемтосекундной КАРС-спектроскопии за один лазерный импульс.

Идея использования chirpированных импульсов для проведения измерений методами когерентного ЧВВ за один импульс обобщена в работе [218] на наиболее широко применяемые схемы когерентного ЧВВ. Общая идея таких методов заключается в использовании chirpированных световых импульсов, задающих линейное преобразование, которое связывает время задержки между импульсами накачки и зондирования с отстройкой разности мгновенных частот импульсов от комбинационного резонанса среды. Наличие при этом второго линейного преобразования, связывающего пространственную коор-

динату с временем задержки и обеспечиваемого геометрии ЧВВ в широких пучках, позволяет использовать пространственный профиль ЧВВ-сигнала для измерения спектра нелинейно-оптической восприимчивости исследуемой среды за один импульс. Как показывает анализ [218], подобная идея представляется перспективной для нелинейно-оптических измерений и может быть практически реализована для основных схем ЧВВ. Значительный интерес для решения задач когерентного управления и зондирования квантовых объектов представляет анализ возможности обобщения методов, рассмотренных в настоящей работе, на случай двумерной спектроскопии многоволнового смещения [219, 220], которая основана на двукратном создании и зондировании когерентности квантовой системы. Подобную задачу можно решить путем поиска комбинаций chirpированных импульсов и/или геометрии ЧВВ-взаимодействия, которые позволили бы осуществить двумерные линейные преобразования частота — время задержки и время задержки — пространственные координаты по аналогии с рассмотренными выше одномерными преобразованиями. Решение этой задачи для ряда практически важных случаев найдено в работе [221].

Заключение

Подобно тому как создание перестраиваемых по частоте лазеров оказало сильнейшее влияние на развитие нелинейной спектроскопии в начале 1970-х гг., появление лазеров, способных генерировать мощные и короткие световые импульсы, радикальным образом изменило инструментарий нелинейной оптики, привело к открытию нового класса явлений, формированию нового круга задач и понятий и в конечном счете к новому пониманию определенных явлений в нелинейной оптике. Все эти процессы, характерные для современной физики, сопровождаются неуклонным ростом интереса к нелинейной оптике газовых и ионизованных сред, так как именно в таких средах удастся наблюдать многие из наиболее ярких эффектов физики сверхсильных полей. В свою очередь, развитие оптики сверхкоротких импульсов и понимание закономерностей сверхбыстрых процессов в веществе стимулировало создание устройств для управления параметрами, преобразования частоты и дальнейшего уменьшения длительности световых импульсов на основе нелинейно-оптических явлений.

Нелинейно-оптические процессы, сопровождающие взаимодействие сильных световых полей с газовыми средами, открывают уникальные возможности для генерации предельно коротких импульсов и продвижения в спектральные области, недоступные для имеющихся лазерных источников и традиционных преобразователей частоты. В частности, явление фазовой самомодуляции в наполненных газом полых

волноводах позволяет получать импульсы длительностью менее 5 фс с энергией в несколько десятков микроджоулей. Использование подобных сверхкоротких импульсов для генерации высоких гармоник, в свою очередь, позволяет достичь высоких эффективностей нелинейно-оптического преобразования частоты и решить задачу генерации когерентного излучения в области водяного окна ($2.3 \div 4.4$ нм). Применение таких импульсов в задачах спектроскопии обеспечивает беспрецедентно высокое временное разрешение. Наличие подобного уникального орудия эксперимента в арсенале современной лазерной физики приводит к стремительному продвижению в новые области и расширению горизонтов научного знания. На современном этапе эти знаковые тенденции представляют собой важный фактор развития не только физики, но и всех естественных наук, и можно с уверенностью утверждать, что в самом ближайшем будущем использование методов и подходов нелинейной оптики коротких импульсов, в том числе нелинейной оптики газовых сред, позволит добиться новых ярких результатов в различных областях фундаментальных исследований и успешного решения многих актуальных прикладных задач.

Исследования в области нелинейной оптики сильных полей и сверхкоротких импульсов на кафедре общей физики и волновых процессов физического факультета МГУ были начаты по инициативе выдающихся российских ученых С.А. Ахманова и Н.И. Коротева. В течение многих лет руководство работой в этом направлении осуществлялось Н.И. Коротевым, которого автор считает своим главным учителем. Автор искренне благодарен коллегам и всем соавторам, без участия которых данная работа была бы невозможной. Особенно хотелось бы выразить самую глубокую признательность А.Б. Федотову, Д.А. Сидорову-Бирюкову, А.Н. Наумову и Д.А. Акимову за многолетнее сотрудничество и постоянную поддержку и помощь.

Работа выполнена при поддержке гранта Президента РФ (грант 00-15-99304), РФФИ (грант 00-02-17567), Volkswagen Foundation (грант I/76 869), CRDF (гранты RP2-2266 и RP2-2275), а также Государственных научно-технических программ Российской Федерации «Фундаментальная метрология», «Фундаментальная спектроскопия» и «Оптика, лазерная физика».

Литература

1. Atoms in Intense Fields / Ed. M. Gavril. N. Y.: Acad. Press, 1992.
2. Special Issue of Laser Physics. 2001. **11**, No. 2.
3. Ultraintense Laser Interactions and Applications-2 / Ed. A. Guilletti. Pisa: Pisa Univ., 2000.
4. Ахманов С.А., Коротев Н.И. Методы нелинейной оптики в спектроскопии рассеяния света. М.: Наука, 1981.

5. Druet S.A.J., Taran J.-P.E. // Progr. in Quant. Electron. 1981. **7**, No. 1. P. 1.
6. Eckbreth A.C. Laser Diagnostics for Combustion Temperature and Species. Cambridge, MA: Abacus, 1988.
7. Harvey A.B., Nibler J.W. // Appl. Spectrosc. Rev. 1978. **14**. P. 101.
8. Eckbreth A.C. // Combustion and Flame. 1980. **39**. P. 133.
9. Желтиков А.М., Коротеев Н.И. // УФН. 1999. **169**. С. 385.
10. Желтиков А.М. Дис. ... д-ра физ.-мат. наук. М. (физ. ф-т МГУ), 1999.
11. Ахманов С.А., Хохлов Р.В. Проблемы нелинейной оптики. М.: Изд-во АН СССР, 1964.
12. Бломберген Н. Нелинейная оптика. М.: Мир, 1966.
13. Келдыш Л.В. // ЖЭТФ. 1964. **47**. С. 1945.
14. Бункин Ф.В., Федоров М.В. // ЖЭТФ. 1965. **49**. С. 1215.
15. Miles K.B., Harris S.E. // IEEE J. Quant. Electron. 1973. **QE-9**. P. 470.
16. Harris S.E. // Phys. Rev. Lett. 1973. **31**. P. 341.
17. Tomov I.V., Richardson M.S. // IEEE J. Quant. Electron. 1976. **QE-12**. P. 521.
18. Egger H., Hawkins R.T., Bokor J. et al. // Opt. Lett. 1980. **5**. P. 282.
19. Reintjes J., She C.-Y., Eckardt R.C. // IEEE J. Quant. Electron. 1978. **QE-14**. P. 581.
20. Reintjes J. // Appl. Opt. 1980. **19**. P. 3889.
21. Kiyashko V.A., Popov A.K., Timofeev V.P., Yurov G.V. // Appl. Phys. 1983. **B30**. P. 157.
22. Reintjes J.F. Nonlinear Optical Parametric Processes in Liquids and Gases. N. Y.: Acad. Sci., 1984 (*Райнтжес Дж.* Нелинейные оптические параметрические процессы в жидкостях и газах. М.: Наука, 1989).
23. Желтиков А.М., Коротеев Н.И., Федотов А.Б. // Опт. и спектр. 1992. **72**. С. 971.
24. Гладков С.М., Коротеев Н.И., Желтиков А.М. // Итоги науки и техники. Сер. Современные проблемы лазерной физики. М.: ВИНТИ, 1991. **4**. С. 126.
25. Balcou Ph., Gomes A.S.L., Coruaggia C. // J. Phys. B. 1992. **25**. P. 4467.
26. Sarukura N., Hata K., Adachi T. et al. // Phys. Rev. A. 1991. **43**. P. 1669.
27. Macklin J.J., Kmetec J.D., Gordon III C.L. // Phys. Rev. Lett. 1993. **70**. P. 766.
28. Kondo K., Sarukura N., Sajiki K., Watanabe S. // Phys. Rev. A. 1993. **47**. P. 2480.
29. Wahlstrom C.-G., Larsson J., Persson A. et al. // Phys. Rev. A. 1993. **48**. P. 4709.
30. L'Huillier A., Balcou P. // Phys. Rev. Lett. 1993. **70**. P. 774.
31. L'Huillier A., Balcou P. // Laser Physics. 1993. **3**. P. 654.
32. Платоненко В.Т., Стрелков В.В. // Квант. электроника. 1998. **25**. С. 582.
33. Bokor J., Bucksbaum P.H., Freeman R.R. // Opt. Lett. 1983. **8**. P. 217.
34. McPherson A., Gibson G., Jara H. et al. // J. Opt. Soc. Am. 1987. **B4**. P. 595.
35. Ferray M., L'Huillier A., Li X.F. et al. // J. Phys. B. 1988. **21**. P. L31.
36. Li X.F., L'Huillier A., Ferray M. et al. // Phys. Rev. A. 1989. **39**. P. 5751.
37. Perry M.D., Mourou G. // Science. 1994. **264**. P. 917.
38. Zhou J., Peatross J., Murnane M.M. et al. // Phys. Rev. Lett. 1996. **76**. P. 752.
39. Spielmann Ch., Burnett N.H., Sartania S. et al. // Science. 1997. **278**. P. 661.
40. Chang Z., Rundquist A., Wang H. et al. // Phys. Rev. Lett. 1997. **79**. P. 2967.
41. Corkum P.B. // Phys. Rev. Lett. 1993. **71**. P. 1994.
42. Ахманов С.А., Гладков С.М., Коротеев Н.И., Желтиков А.М. Препринт физ. ф-та МГУ. 1988, № 5.
43. Силин В.П. // ЖЭТФ. 1964. **47**. С. 2254.
44. Kroll N., Ron A., Rostoker N. // Phys. Rev. Lett. 1964. **13**. P. 83.
45. Dubois D.F., Goldman M.V. // Phys. Rev. Lett. 1965. **14**. P. 544.
46. Jha S.S. // Phys. Rev. 1965. **140**. P. A2020.
47. Bloembergen N., Shen Y.R. // Phys. Rev. 1966. **141**. P. 298.
48. Eidmann K., Sigel R. // Phys. Rev. Lett. 1975. **34**. P. 799.
49. Baldis H.A., Pepin H., Johnston T.W., Parbhakar A. // Phys. Rev. Lett. 1975. **35**. P. 37.
50. Salers A., Decroisette M., Patou C. // Opt. Commun. 1975. **13**. P. 321.
51. Александров В.В., Анисимов С.И., Бреннер М.В. и др. // ЖЭТФ. 1976. **71**. С. 1826.
52. Auer G., Sauer K., Baumgartel K. // Phys. Rev. Lett. 1979. **42**. P. 1744.
53. Басов Н.Г., Быченков В.Ю., Крохин О.Н. и др. // Квант. электроника. 1979. **6**. С. 1829.
54. Carman R.L., Forslund D.W., Kindel J.M. // Phys. Rev. Lett. 1981. **46**. P. 29.
55. Offenberger A.A., Fedosejevs R., Tighe W., Rozmus W. // Phys. Rev. Lett. 1982. **49**. P. 371.
56. Nugent K.A., Luthor-Davies B. // Phys. Rev. Lett. 1982. **49**. P. 1943.
57. Горбунов Л.М., Широков А.С. // Физика плазмы. 1980. **6**. С. 663.
58. Watt R.G., Brooks R.D., Pietrzyk Z.A. // Phys. Rev. Lett. 1978. **41**. P. 170.
59. Biskamp D., Welter H. // Phys. Rev. Lett. 1975. **34**. P. 312.
60. Forslund D.W., Kindel J.M., Lindman E.L. // Phys. Rev. Lett. 1973. **30**. P. 739.
61. Yamanaka C., Yamanaka T., Sasaki T. et al. // Phys. Rev. Lett. 1974. **32**. P. 1038.
62. Ripin B.H., McMahon J.M., McLean E.A. et al. // Phys. Rev. Lett. 1974. **33**. P. 634.
63. Lee P., Giovanielli D.V., Godwin R.P., McCall G.N. // Appl. Phys. Lett. 1974. **24**. P. 406.
64. Bobin J.L., Decroisette M., Meyer B., Vitel Y. // Phys. Rev. Lett. 1973. **30**. P. 594.
65. Pant H.C., Eidmann K., Sachsenmaier P., Sigel R. // Opt. Commun. 1976. **16**. P. 396.
66. Авров А.И., Быченков В.Ю., Крохин О.Н. и др. // Письма в ЖЭТФ. 1976. **24**. С. 293.
67. Bobin J.L. // Phys. Reports. 1985. **122**. P. 175.
68. Силин В.П. Введение в кинетическую теорию газов. М.: Наука, 1971.

69. Силин В.П. Параметрическое воздействие излучения большой мощности на плазму. М.: Наука, 1973.
70. Силин В.П., Стародуб А.Н. Препринт ФИАН №44. М.: ФИАН, 1977.
71. Силин В.П., Стародуб А.Н. Препринт ФИАН №148. М.: ФИАН, 1979.
72. Силин В.П. Препринт ФИАН №165. М.: ФИАН, 1977.
73. Bethune D.S. // Phys. Rev. A. 1981. **23**. P. 3139.
74. Bezzerides B., Jones R.D., Forslund D.W. // Phys. Rev. Lett. 1982. **49**. P. 202.
75. Burnett N.H., Baldis H.A., Richardson M.C., Enright G.D. // Appl. Phys. Lett. 1977. **31**. P. 172.
76. McLean E.A., Stamper J.A., Ripin B.H. et al. // Appl. Phys. Lett. 1977. **31**. P. 825.
77. Carman R.L., Rhodes C.K., Benjamin R.F. // Phys. Rev. A. 1981. **24**. P. 2649.
78. Бродниковский А.М., Гладков С.М., Задков В.Н. и др. // Письма в ЖТФ. 1982. **8**. С. 497.
79. Гладков С.М., Желтиков А.М., Коротеев Н.И. и др. // Изв. АН СССР, сер. физ. 1988. **52**. С. 217.
80. Гладков С.М., Коротеев Н.И., Рычев М.В., Федотов А.Б. // Письма в ЖТФ. 1986. **12**. С. 1272.
81. Гладков С.М., Желтиков А.М., Коротеев Н.И., Федотов А.Б. // Письма в ЖТФ. 1988. **14**. С. 1399.
82. Fedotov A.B., Gladkov S.M., Koroteev N.I., Zheltikov A.M. // J. Opt. Soc. Am. 1991. **B8**. P. 373.
83. Akiyama Y., Midorikawa K., Matsunawa Y. et al. // Phys. Rev. Lett. 1992. **69**. P. 2176.
84. Zheltikov A.M., Koroteev N.I., Fedotov A.B. // Proc. SPIE. 1994. **2097**. P. 308.
85. Kubodera S., Nagata Y., Akiyama Y. et al. // Phys. Rev. A. 1993. **48**. P. 4576.
86. Желтиков А.М., Коротеев Н.И., Федотов А.Б. // Изв. РАН, сер. физ. 1994. **58**. С. 314.
87. Zheltikov A.M., Koroteev N.I., Fedotov A.B. // Laser Physics. 1994. **4**. P. 569.
88. Fedotov A.B., Koroteev N.I., Zheltikov A.M. // Laser Physics. 1995. **5**. P. 835.
89. Wahlstrom C.-G., Borgstrom S., Larsson J., Pettersson S.-G. // Phys. Rev. A. 1995. **51**. P. 585.
90. Theobald W., Wulker C., Schafer F.P., Chichkov B.N. // Opt. Commun. 1995. **120**. P. 177.
91. Ребане А.К., Крылов В.Н., Коротеев Н.И., Желтиков А.М. // Квант. электроника. 1996. **23**. P. 291.
92. Fedotov A.B., Koroteev N.I., Loy M.M.T. et al. // Laser Physics. 1996. **6**. P. 427.
93. Fedotov A.B., Koroteev N.I., Loy M.M.T. et al. // Opt. Commun. 1997. **133**. P. 587.
94. Backus S., Peatross J., Zeek Z. et al. // Opt. Lett. 1996. **21**. P. 665; Fedotov A.B., Naumov A.N., Silin V.P. et al. // Phys. Lett. 2000. **A271**. P. 407.
95. Fedotov A.B., Zheltikov A.M. // Ultrafast Processes in Spectroscopy / Eds. O. Svelto, S. de Silvestri, G. Denardo. N. Y.: Plenum Press, 1996.
96. Zheltikov A.M., Koroteev N.I., Naumov A.N., Fedotov A.B. // Laser Physics. 1996. **6**. P. 49.
97. Zheltikov A.M., Koroteev N.I., Naumov A.N., Fedotov A.B. // Proc. SPIE. 1996. **2796**. P. 179.
98. Meyer S., Eichmann H., Menzel T. et al. // Phys. Rev. Lett. 1996. **76**. P. 3336.
99. Shkolnikov P.L., Kaplan A.E., Lago A. // Opt. Lett. 1993. **18**. P. 1700.
100. Rax J.M., Fisch N.J. // Phys. Rev. Lett. 1992. **69**. P. 772.
101. Shkolnikov P.L., Kaplan A.E., Lago A. // J. Opt. Soc. Am. 1996. **B13**. P. 412.
102. Giammanco F., Ceccherini P., Tagliavini C. et al. // Laser Physics. 1997. **7**. P. 22.
103. Giammanco F., Ceccherini P. // Laser Physics. 1998. **8**. P. 593.
104. Giammanco F., Ceccherini P., Di Palma T. // Laser Physics. 2001. **11**. P. 368.
105. Ганеев Р.А., Редкоречев В.И., Усманов Т. // Квант. электроника. 1995. **22**. С. 1086.
106. Ganeev R.A., Redkorechev V.I., Usmanov T. // Opt. Commun. 1997. **135**. P. 251.
107. von der Linde D., Engers T., Jenke G. et al. // Phys. Rev. A. 1995. **52**. P. R25.
108. Tarasevitch A., Orisch A., von der Linde D. // Phys. Rev. A. 2000. **62**. P. 023816.
109. von der Linde D. // Appl. Phys. 1999. **B68**. P. 315.
110. Corkum P.B. // IEEE J. Quant. Electron. 1985. **QE-21**. P. 216.
111. Corkum P.B., Rolland C., Srinivasan-Rao T. // Phys. Rev. Lett. 1986. **57**. P. 2269.
112. Akozbek N., Bowden C.M., Talebpour A., Chin S.L. // Phys. Rev. E. 2000. **61**. P. 4540.
113. Butcher P.N., Cotter D. The Elements of Nonlinear Optics. Cambridge: Cambridge University Press, 1990.
114. Ахманов С.А., Выслоух В.А., Чиркин А.С. Оптика фемтосекундных лазерных импульсов. М.: Наука, 1988.
115. Manassah J.T., Mustafa M., Alfano R.R., Ho P.P. // Phys. Lett. 1985. **A113**. P. 242.
116. Бутылкин В.С., Федорова М.Б. // Квант. электроника. 1994. **21**. С. 158.
117. Бутылкин В.С. // Квант. электроника. 1998. **25**. P. 541.
118. de Lisio C., Beneduce C., Bruzzese R. et al. // Phys. Rev. E. 1995. **52**. P. 1993.
119. Shimoji Y., Fay A.T., Chang R.S.F., Djeu N. // J. Opt. Soc. Am. 1989. **B6**. P. 1994.
120. Key M.H., Preston D.A., Donaldson T.P. // J. Phys. B. 1970. **3**. P. L88.
121. Wood W.M., Siders C.W., Downer M.C. // IEEE Trans. Plasma Sci. 1993. **21**. P. 20.
122. Sartania S., Cheng Z., Lenzner M. et al. // Opt. Lett. 1997. **22**. P. 1562.
123. Nisoli M., De Silvestri S., Svelto O. // Appl. Phys. Lett. 1996. **68**. P. 2793.
124. Nisoli M., De Silvestri S., Svelto O. et al. // Opt. Lett. 1997. **22**. P. 522.
125. Villoresi P., Ceccherini P., Poletto L. et al. // Phys. Rev. Lett. 2000. **85**. P. 2494.
126. Cerullo G., Nisoli M., Stagira S. et al. // Proc. Second Italian-Russian Symp. on Ultrafast Optical Physics / Ed. G. Ferrante, M. Vaselli, A.M. Zheltikov. M.: Intellect Center, 2001. P. 141.

127. Naumov A.N., Zheltikov A.M. // Laser Physics. 2001. **11**. P. 424.
128. Naumov A.N., Zheltikov A.M., Kolevatova O.A. et al. // XVII Intern. Conf. on Coherent and Nonlinear Optics (ICONO'2001), Technical Digest. Minsk: Belarus Acad. of Sci., 2001 (in press).
129. Durfee III C.G., Backus S., Murnane M.M., Kapteyn H.C. // Opt. Lett. 1997. **22**. P. 1565.
130. Koroteev N.I., Zheltikov A.M. // Appl. Phys. 1998. **B67**. P. 53.
131. Желтиков А.М., Коротеев Н.И., Наумов А.Н. // ЖЭТФ. 1999. **113**. С. 1561.
132. Durfee III C.G., Backus S., Kapteyn H.C., Murnane M.M. // Opt. Lett. 1999. **24**. P. 697.
133. Rundquist A., Durfee III C.G., Chang Z. et al. // Science. 1998. **280**. P. 1412.
134. Tamaki Y., Midorikawa K., Obara M. // Appl. Phys. 1998. **B67**. P. 59.
135. Constant E., Garzella D., Breger P. et al. // Phys. Rev. Lett. 1999. **82**. P. 1668.
136. Durfee III C.G., Rundquist A.R., Backus S. et al. // Phys. Rev. Lett. 1999. **83**. P. 2187.
137. Miles R.B., Laufer G., Bjorklund G.C. // Appl. Phys. Lett. 1977. **30**. P. 417.
138. Fedotov A.B., Giammanco F., Naumov A.N. et al. // Laser Physics. 2001. **11**. P. 515.
139. Fedotov A.B., Giammanco F., Naumov A.N. et al. // Appl. Phys. B. 2001 (in press).
140. Желтиков А.М., Наумов А.Н. // Квант. электроника. 2000. **30**. С. 351.
141. Naumov A.N., Giammanco F., Zheltikov A.M. // Laser Physics. 2000. **10**. P. 774.
142. Tempea G., Brabec T. // Opt. Lett. 1998. **23**. P. 16.
143. Naumov A.N., Zheltikov A.M., Fedotov A.B. et al. // J. Opt. Soc. Am. 2001. **B18**. P. 811.
144. Marcatili E.A.J., Schmeltzer R.A. // Bell Syst. Tech. J. 1964. **43**. P. 1783.
145. Наумов А.Н., Джамманко Ф., Сидоров-Бирюков Д.А. и др. // Письма в ЖЭТФ. 2001. **73**. С. 301.
146. Corkum P.B., Burnett N.H., Ivanov M.Yu. // Opt. Lett. 1994. **19**. P. 1870.
147. Ivanov M.Yu., Corkum P.B., Zuo T., Bandrauk A. // Phys. Rev. Lett. 1995. **74**. P. 2933.
148. Antoine Ph., L'Huillier A., Lewenstein M. // Phys. Rev. Lett. 1996. **77**. P. 1234.
149. Antoine P., Milošević D.B., L'Huillier A. et al. // Phys. Rev. A. 1997. **56**. P. 4960.
150. Christov I.P., Murnane M.M., Kapteyn H.C. // Phys. Rev. Lett. 1997. **78**. P. 1251.
151. Harris S.E., Sokolov A.V. // Phys. Rev. Lett. 1998. **81**. P. 2894.
152. Sokolov A.V., Yavuz D.D., Harris S.E. // Opt. Lett. 1999. **24**. P. 557.
153. Sokolov A.V., Walker D.R., Yavuz D.D. et al. // Phys. Rev. Lett. 2000. **85**. P. 562.
154. Nazarkin A., Korn G. // Phys. Rev. A. 1998. **58**. P. R61.
155. Korn G., Dühr O., Nazarkin A. // Phys. Rev. Lett. 1998. **81**. P. 1215.
156. Nazarkin A., Korn G., Wittmann M., Elsaesser T. // Phys. Rev. Lett. 1999. **83**. P. 2560.
157. Wittmann M., Nazarkin A., Korn G. // Phys. Rev. Lett. 2000. **84**. P. 5508.
158. Carman R.L., Mack M.E. // Phys. Rev. A. 1972. **5**. P. 341.
159. Knight J.C., Birks T.A., Russell P.St.J., Atkin D.M. // Opt. Lett. 1996. **21**. P. 1547.
160. Birks T.A., Knight J.C., Russell P.St.J. // Opt. Lett. 1997. **22**. P. 961.
161. Knight J.C., Broeng J., Birks T.A., Russell P.St.J. // Science. 1998. **282**. P. 1476.
162. Knight J.C., Birks T.A., Cregan R.F. et al. // Opt. Mater. 1999. **11**. P. 143.
163. Cregan R.F., Mangan B.J., Knight J.C. et al. // Science. 1999. **285**. P. 1537.
164. Broderick N.G.R., Monro T.M., Bennett P.J., Richardson D.J. // Opt. Lett. 1999. **24**. P. 1395.
165. Monro T.M., Bennett P.J., Broderick N.G.R., Richardson D.J. // Opt. Lett. 2000. **25**. P. 206.
166. Федотов А.Б., Желтиков А.М., Мельников Л.А. и др. // Письма в ЖЭТФ. 2000. **71**. С. 407.
167. Алфимов М.В., Желтиков А.М., Иванов А.А. и др. // Письма в ЖЭТФ. 2000. **71**. С. 714.
168. Ranka J.K., Windeler R., Stentz A.J. // Opt. Lett. 2000. **25**. P. 25.
169. Желтиков А.М. // УФН. 2000. **170**. С. 1203.
170. Yariv A., Yeh P. Optical Waves in Crystals. N.Y.: Wiley, 1984.
171. Zheltikov A.M. // Laser Physics. 2001. **11**. P. 435.
172. Shen Y.R. The Principles of Nonlinear Optics. N. Y.: Wiley, 1984 (Шен И.Р. Принципы нелинейной оптики. М.: Наука, 1989).
173. Regnier P.R., Taran J.P.-E. // Appl. Phys. Lett. 1973. **23**. P. 240.
174. Бункин А.Ф., Коротеев Н.И. // УФН. 1981. **134**. С. 93.
175. Bechtel J.H., Chraplyvy A.R. // Proc. IEEE. 1982. **70**. P. 657.
176. Shaub W.M., Nibler J.W., Harvey A.B. // J. Chem. Phys. 1977. **67**. P. 1883.
177. Bornemann T., Kornas V., Schulz-Von der Gathen V., Doebele H.F. // Appl. Phys. 1990. **B51**. P. 307.
178. Гладков С.М., Желтиков А.М., Ильясов О.С. и др. // Квант. электроника. 1991. **18**. С. 727.
179. Beiting E.J. // Appl. Opt. 1985. **24**. P. 3010.
180. Alessandretti G.C., Violino P. // J. Phys. D. 1983. **16**. P. 1583.
181. Eckbreth A.C., Anderson T.J., Dobbs G.M. // Appl. Phys. 1988. **B45**. P. 215.
182. Lueckerath R., Balk P., Fischer M. et al. // Chemtronics. 1987. **2**. P. 199.
183. Желтиков А.М., Ильясов О.С., Исаев А.А., Коротеев Н.И. // Изв. РАН, сер. физ. 1992. **56** (8). С. 66.
184. Mann B.A., White R.F., Morrison R.J.S. // Appl. Opt. 1996. **35**. P. 475.
185. Murphy D.V., Long M.B., Chang R.K., Eckbreth A.C. // Opt. Lett. 1979. **4**. P. 167.
186. Snow J.B., Zheng J., Chang R.K. // Opt. Lett. 1983. **8**. P. 599.

187. Ewart P., Snowdon P. // Opt. Lett. 1990. **15**. P. 1403.
188. Rakestraw D.J., Farrow R.L., Dreier T. // Opt. Lett. 1990. **15**. P. 709.
189. Akimov D.A., Fedotov A.B., Koroteev N.I. et al. // Opt. Commun. 1997. **140**. P. 259.
190. Ewart P., Smith P.G.R., Williams R.B. // Appl. Opt. 1997. **36**. P. 5959.
191. Akimov D.A., Ewart P., Fedotov A.B. et al. // Laser Physics. 1997. **7**. P. 755.
192. Акимов Д.А., Желтиков А.М., Коротеев Н.И. и др. // Квант. электроника. 1998. **25**. С. 1105.
193. Akimov D.A., Fedotov A.B., Koroteev N.I. et al. // Opt. Lett. 1999. **24**. P. 478.
194. Akimov D.A., Fedotov A.B., Koroteev N.I. et al. // J. Raman Spectrosc. 2000. **31**. P. 677.
195. Leonhardt R., Holzapfel W., Zinth W., Kaiser W. // Chem. Phys. Lett. 1987. **133**. P. 373.
196. Fickenscher M., Laubereau A. // J. Raman Spectrosc. 1990. **21**. P. 857.
197. Joo T., Dugan M.A., Albrecht A.C. // Chem. Phys. Lett. 1991. **177**. P. 4.
198. Fickenscher M., Purucker H.-G., Laubereau A. // Chem. Phys. Lett. 1992. **191**. P. 182.
199. Shkurinov A.P., Koroteev N.I., Jonusauskas G., Rulliere C. // Chem. Phys. Lett. 1994. **223**. P. 573.
200. Hayden C.C., Chandler D.W. // J. Chem. Phys. 1995. **103**. P. 10465.
201. Motzkus M., Pedersen S., Zewail A.H. // J. Phys. Chem. 1996. **100**. P. 5620.
202. Schmitt M., Knopp G., Materny A., Kiefer W. // Chem. Phys. Lett. 1997. **280**. P. 339.
203. Schmitt M., Knopp G., Materny A., Kiefer W. // J. Phys. Chem. 1998. **A102**. P. 4059.
204. Chen T., Engel V., Heid M. et al. // Vibrational Spectrosc. 1999. **19**. P. 23.
205. Lang T., Kompa K.-L., Motzkus M. // Chem. Phys. Lett. 1999. **310**. P. 65.
206. Zheltikov A.M. // J. Raman Spectrosc. 2000. **31**. P. 653.
207. Zheltikov A.M. // Handbook of Vibrational Spectroscopy / Ed. J.M. Chalmers. Chichester: Wiley, 2001.
208. Nibbering E.T.J., Wiersma D.A., Duppen K. // Phys. Rev. Lett. 1992. **68**. P. 514.
209. Duppen K., Haan F. de, Nibbering E.T.J., Wiersma D.A. // Phys. Rev. A. 1993. **47**. P. 5120.
210. Kohler B., Yakovlev V.V., Che J. et al. // Phys. Rev. Lett. 1995. **74**. P. 3360; Assion A., Baumert T., Helbing J. et al. // Chem Phys. Lett. 1996. **259**. P. 488.
211. Cerullo G., Bardeen C.J., Wang Q., Shank C.V. // Chem. Phys. Lett. 1996. **262**. P. 362.
212. Lozovoy V.V., Antipin S.A., Gostev F.E. et al. // Chem. Phys. Lett. 1998. **284**. P. 221.
213. Yakovlev V.V., Bardeen C.J., Che J. et al. // J. Chem. Phys. 1998. **108**. P. 2309.
214. Dogariu A., Hagan D.J. // Opt. Express. 1997. **1**. P. 73.
215. Желтиков А.М., Наумов А.Н. // Квант. электроника. 2000. **30**. С. 606.
216. Zheltikov A.M., Naumov A.N. // Laser Physics. 2000. **10**. P. 887.
217. Lang T., Motzkus M. // XX European CARS Workshop (ECW'2001), Technical Digest. Lund: Lund Univ., 2001. P. 10.
218. Zheltikov A.M., Naumov A.N. // Laser Physics. 2001. **11**. P. 424.
219. Tanimura Y., Mukamel S. // J. Chem. Phys. 1993. **99**. P. 9496.
220. Knopp G., Pinkas I., Prior Y. // J. Raman Spectrosc. 2000. **31**. P. 51.
221. Zheltikov A.M., Naumov A.N. // XX European CARS Workshop (ECW'2001), Technical Digest. Lund: Lund Univ., 2001. P. 30.

Поступила в редакцию
25.04.01