

Поляризационный двухимпульсный метод обработки зондирующих фемтосекундных сигналов, основанный на сверхбыстром оптическом эффекте Керра

А.Г. Шмелев, В.Г. Никифоров, Г.М. Сафиуллин,
В.С. Лобков, В.В. Самарцев*

*Казанский физико-технический институт им. Е.К. Завойского
Казанского научного центра Российской академии наук
420029, г. Казань, Сибирский тракт, 10/7*

Поступила в редакцию 16.06.2010 г.

Предложен новый метод обработки усиленных зондирующих фемтосекундных сигналов в установке молекулярной поляризационной спектроскопии, основанной на сверхбыстром оптическом эффекте Керра. Демонстрируется процесс обработки эталонного сигнала хлороформа новым методом при комнатной температуре. Показано, что за счет манипулирования отдельными молекулярными движениями путем создания конструктивной или деструктивной интерференции соответствующих волновых пакетов удается непосредственно из эксперимента определять такие константы молекулярной динамики, как времена релаксации когерентных внутримолекулярных колебаний ($\approx 1,5$ пс) и ориентационной анизотропии ($\approx 1,2$ пс).

Ключевые слова: фемтосекундная спектроскопия, молекулярная колебательно-вращательная динамика, сверхбыстрый оптический эффект Керра, лидар; femtosecond spectroscopy, molecular vibrational-rotational dynamics, ultrafast optical Kerr effect, lidar.

Введение

В настоящее время разрабатываются различные методы фемтосекундного лазерного мониторинга природных и техногенных сред. Следуя принципам дистанционного оптического зондирования атмосферы [1], мы предлагаем еще один метод обработки зондирующих импульсов, получивший название «поляризационного» и основанный на регистрации оптического эффекта Керра (ОЭК).

Ранее использовалась схема одноимпульсного нерезонансного воздействия на исследуемую среду, когда единственный фемтосекундный линейно поляризованный импульс вызывал в этой среде когерентные движения молекул, благодаря чему в среде наводилась нестационарная анизотропия поляризуемости. Состояние анизотропной поляризуемости среды зондируется слабым пробным импульсом в заданный момент времени, который определяется задержкой между возбуждающим и пробным импульсами [2–4]. В эксперименте регистрируется изменение поляризации пробного импульса на выходе из образца за счет наведенной анизотропии среды при варьировании времени задержки пробного импульса.

Сигнал ОЭК формируется благодаря нелинейному отклику среды, который является суммой откликов низкочастотных комбинационно-активных колебательно-вращательных молекулярных мод, а также отклика электронной гиперполяризуемости молекул [5–7]. Данные отклики обусловлены низкочастотными когерентными внутримолекулярными колебаниями, ориентационной анизотропией молекул в среде и либрациями молекул. Одновременная регистрация указанных сигналов в известной степени затрудняет анализ молекулярной динамики.

Существующие подходы [3, 8, 9] позволяют разделять сигнал ОЭК на составляющие вклады. Однако при моделировании откликов с большим набором параметров среды часто возникает проблема однозначной интерпретации сигнала ОЭК.

В настоящей статье мы применили схему двухимпульсного нерезонансного возбуждения среды, которая позволяет проводить эксперименты с вариацией управляющих параметров (интенсивности возбуждающих импульсов и времени задержки между ними). Особенности применения такой схемы теоретически рассмотрены в работе [10]. Молекулярная динамика в среде формируется в результате последовательного воздействия импульсов, между которыми происходит свободная эволюция системы. При этом управляющие параметры дают возможность влиять на создание конструктивной или деструктивной интерференции волновых пакетов отдельных молекулярных движений, что приводит

* Артемий Геннадьевич Шмелев (sgartjom@gmail.com); Виктор Геннадьевич Никифоров (vgnik@mail.ru); Георгий Маратович Сафиуллин; Владимир Сергеевич Лобков; Виталий Владимирович Самарцев (samartsev@kfti.knc.ru).

к реализации разных сценариев эволюции наведенной поляризуемости среды.

В работе [11] показано, что данная схема позволяет управлять ориентационной анизотропией молекул в субпикосекундном диапазоне. Мы используем двухимпульсное возбуждение для управления внутримолекулярными осцилляциями, на основании чего проводим селективную спектроскопию путем возбуждения/подавления колебательно-отклика в сигнале ОЭК. Для полного моделирования сигнала ОЭК при двухимпульсном возбуждении требуется рассмотреть оптический отклик среды пятого порядка. Однако в настоящей статье мы демонстрируем, что такая схема позволяет получать информацию о константах среды непосредственно из эксперимента без моделирования сигнала ОЭК.

В качестве среды выбрана жидкость хлороформа CHCl_3 . Она прозрачна в видимой области и в области 790 нм (несущая частота лазера), обладает комбинационно-активными низкочастотными колебательными модами, доступными для возбуждения лазерными импульсами длительностью 35 фс. Молекулярная динамика хлороформа изучена традиционным (с одним возбуждающим импульсом) методом регистрации ОЭК в работах [12, 13], что позволяет сравнить полученные нами параметры среды с результатами этих работ. Планирование и эксперименты проведены с учетом работы [10], где теоретически рассмотрены сценарии применения последовательности возбуждающих импульсов для манипулирования колебательной динамикой молекул в жидкости в субпикосекундном диапазоне.

Схемы фемтосекундного мониторинга среды с помощью поляризационного лидара

На рис. 1 представлены возможные схемы фемтосекундного мониторинга среды с помощью поляризационного лидара, основанные на регистрации оптического отклика среды пятого порядка. В основе этих схем лежит обобщенная схема лидара [1].

На рис. 1, *a* показана наиболее простая схема стандартного лидара, дополненная генератором фемтосекундных лазерных импульсов, усилителем принятых сигналов и схемой наблюдения сверхбыстро-го ОЭК.

По изменению спектров ОЭК, снятых при воздействии на кювету с эталонным веществом импульсов, попавших в приемный телескоп, и опорных импульсов можно судить о том, что произошло с зондирующим импульсом в атмосфере. Очевидно, что если после прохождения атмосферы форма импульса изменится, то такой импульс будет усиливать или подавлять другие моды в эталонном веществе по сравнению с опорными импульсами. Зная, какие моды и как подавляются или усиливаются, и применяя модулирование оптического отклика

среды третьего порядка, можно сделать вывод о форме импульса, попавшего в приемный телескоп. Наибольшую трудность здесь представляют усиление импульсов, попавших в приемный телескоп, до уровня, необходимого для создания наведенной анизотропии в эталонном веществе, и сохранение их формы.

На рис. 1, *б* представлена более сложная в реализации схема: здесь анизотропия наводится непосредственно в нужной точке атмосферы. Луч лазерного излучения делится светоделительной пластинкой на более мощный (накачивающий) и более слабый (пробный). Пробный луч попадает на линю задержки и соединяется с накачивающим на следующей светоделительной пластинке. Оба луча фокусируются передающим телескопом в заданной точке атмосферы, потому как интенсивность ОЭК сильно падает при уменьшении плотности энергии, что неизбежно происходит при распространении лазерного луча в атмосфере.

Лазерное излучение, попавшее в приемный телескоп, разделяется призмой Глана или Волластона на два луча с ортогональной линейной поляризацией так, чтобы пробный луч как можно полнее попадал в один из ФЭУ. Второй ФЭУ необходим для улучшения соотношения сигнал-шум, поскольку на него не попадает пробное излучение, этот сигнал удобно использовать для настройки и в качестве опорного сигнала для синхронного детектора.

Отметим необходимость применять сложное модулирование как накачивающего, так и пробного луча для более надежного отделения сигнала ОЭК от шумов. Так как излучение фокусируется в небольшой области, данная схема позволяет получить высокое разрешение при зондировании, однако если плотность излучения в фокусе будет слишком велика, возможно начало процесса филаментации. Чтобы скомпенсировать фазовую модуляцию фемтосекундных импульсов в атмосфере, им с помощью регулятора дисперсии групповых скоростей (регулятора ДГС) заранее придается обратная фазовая модуляция, это также поможет контролировать процесс филаментации.

На рис. 1, *в* представлена самая сложная в реализации схема. Она основана на регистрации излучения, рассеянного на наведенной решетке. Подробно эта техника четырехволнового смешения для исследования молекулярной динамики описана, например, в [14]. Приемный телескоп в такой схеме располагается под углом к передающему, однако сигнал рассеянного на наведенной решетке луча еще слабее и труднее детектируется, чем в предыдущей схеме.

Следует отметить, что применение оптического гетеродинамирования не оправданно в схемах на рис. 1, *б* и *в*, так как принимаемые сигналы будут чрезвычайно слабы и достаточно деполаризованы. Схемы на рис. 1, *б*, *в* рассчитаны на зондирование атмосферы с высоким разрешением. Для наведения приемного телескопа на достаточно малую область

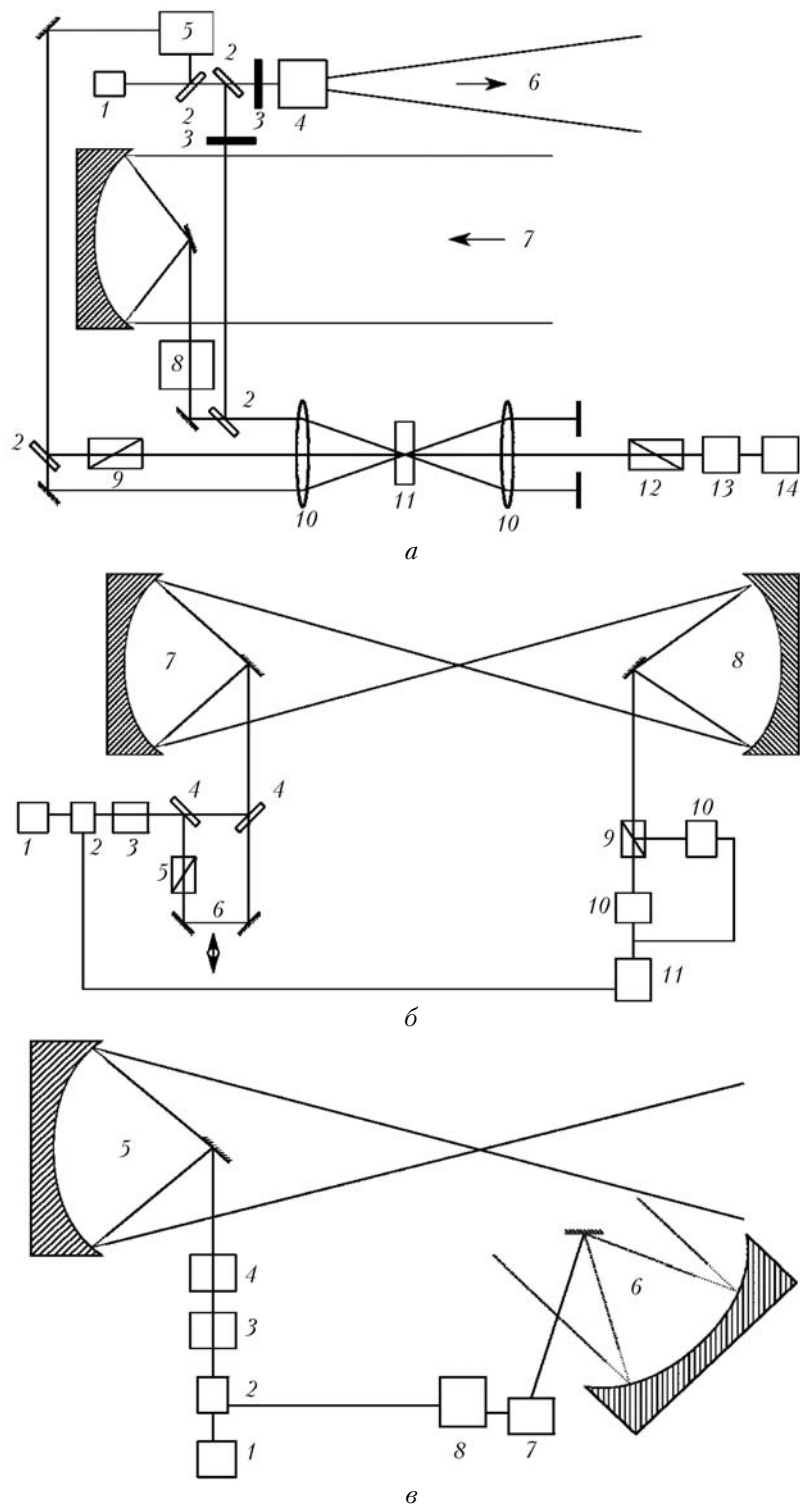


Рис. 1. Схемы фемтосекундного мониторинга среды с помощью поляризационного лидара: *а* – основана на сверхбыстром оптическом эффекте Керра: 1 – фемтосекундный лазер с усилителем и модулятором; 2 – светоделительная пластинка; 3 – затвор; 4 – передающий телескоп; 5 – блок контроля и управления лазерным излучением; 6 – зондирующий лазерный луч; 7 – излучение, рассеянное атмосферой; 8 – фемтосекундный лазерный усилитель; 9 – поляризатор; 10 – линза; 11 – образец; 12 – анализатор; 13 – ФЭУ; 14 – блок обработки сигналов; *б* – основана на регистрации оптического эффекта Керра: 1 – лазер (см. *а*); 2 – блок контроля и управления; 3 – регулятор дисперсии групповых скоростей; 4 – светоделительная пластинка; 5 – поляризатор; 6 – моторизированная линия задержки; 7, 8 – передающий и принимающий телескопы; 9 – призма Глана или Волластона; 10 – ФЭУ; 11 – блок обработки сигналов; *в* – основана на регистрации четырехволнового смещения: 1 – лазер (см. *а*); 2 – блок контроля и управления лазерным излучением; 3 – регулятор дисперсии групповых скоростей; 4 – формирователь импульсов; 5, 6 – передающий и приемный телескопы; 7 – ФЭУ; 8 – блок обработки сигналов

пространства, в котором фокусируется фемтосекундное лазерное излучение, мы предлагаем повысить коэффициент усиления в усилителе 3 на рис. 1, б и в так, чтобы в данной точке начал генерироваться суперконтинуум (при этом также понадобится подобрать нужную модуляцию фазы регулятором ДГС). Излучение суперконтинуума достаточно яркое и деполаризовано, чтобы настроить приемный телескоп.

После настройки приемного телескопа коэффициент усиления следует уменьшить, так чтобы генерация суперконтинуума прекратилась, и построить приемник и регулятор ДГС.

Отметим относительно низкую скорость сканирования атмосферы установками рис. 1, б и в. Однако если использовать в качестве моторизованной линии задержки б на рис. 1, б или формирова-теля импульсов 4 на рис. 1, в зеркала, приводимые в движение быстро колеблющимся приводом, то скорость измерения одной области пространства можно существенно повысить.

Эксперимент

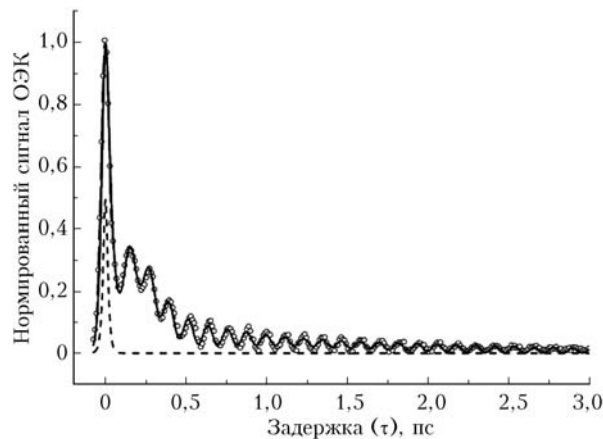
Эксперименты по управлению колебательной динамикой молекул хлороформа выполнены на основе техники поляризационной спектроскопии с регистрацией ОЭК. В экспериментах кроме одноимпульсной (традиционной) схемы возбуждения использовалась также последовательность из двух импульсов с одинаковой поляризацией. Схема установки аналогична представленной в [11], за исключением пластины $\lambda/2$, которая использовалась в [11] для изменения поляризации второго накачивающего импульса.

Фемтосекундные импульсы генерировались стандартным Ti:Sa-лазером производства ООО «Авеста-проект», накачиваемым второй гармоникой Nd:YAG-лазера с диодной накачкой. Выходная мощность лазера накачки — 3,9 Вт. Энергия импульса длительностью 35 фс на несущей длине волны 790 нм составляла $4 \cdot 10^{-9}$ Дж. В эксперименте использована стандартная схема регистрации ОЭК [2–4], где измерялась интенсивность пробного луча, прошедшего через поляризатор, образец и анализатор.

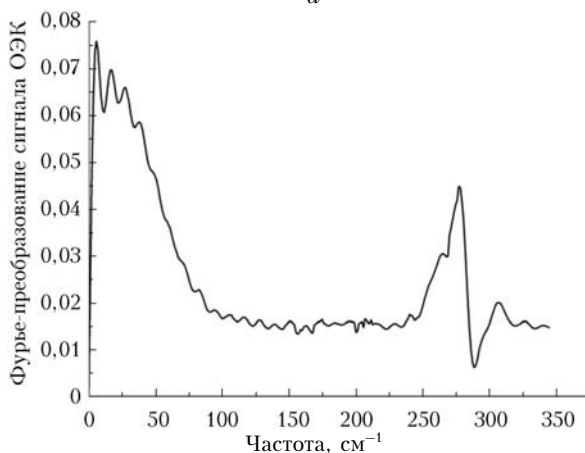
Для улучшения отношения сигнал-шум применялась техника оптического гетеродинамирования и синхронного детектирования. Пробный и два возбуждающих луча фокусировались в образце линзой с фокусным расстоянием 10 см, при этом возбуждающие лучи пересекались под углом около $2,5^\circ$ к пробному. Образец представлял собой чистую профильтрованную (размер пор фильтра 0,2 мкм) жидкость в кварцевой кювете толщиной 3 мм.

На рис. 2–4 показаны нормированные интенсивности сигналов ОЭК хлороформа.

Сигнал ОЭК характеризует состояние наведенной оптической анизотропии среды во время зондирования пробным импульсом (время зондирования определяется задержкой между действием на среду первого возбуждающего и пробного импульсов).



а



б

Рис. 2. Сигнал ОЭК при возбуждении одним импульсом длительностью $\tau_{pul} = 35$ фс (кружочки — экспериментальные данные, сплошная линия — моделирование, штриховая — огибающая интенсивности возбуждающего импульса) (а); мнимая часть Фурье-преобразования сигнала ОЭК (б)

Моделирование

Моделирование сигнала ОЭК при одноимпульсном возбуждении (нелинейный оптический отклик среды третьего порядка) выполнено на основе следующего феноменологического подхода [8, 10, 13]. Сигнал ОЭК $S(\tau)$ формируется откликом кубической электронной гиперполяризуемости $R_{el}(t)$, колебательным $R_{osc}(t)$, ориентационным $R_{or}(t)$ и либрационным $R_{lib}(t)$ откликами молекул:

$$S(\tau) \propto \int_{-\infty}^{\infty} E_{lo}(t-\tau)E_0(t-\tau) \times \{R_{el}(t)+R_{osc}(t)+R_{or}(t)+R_{lib}(t)\} dt, \quad (1)$$

где τ — задержка между импульсом накачки и пробным импульсом. Возбуждающий $E_p(t)$ и пробный $E_0(t)$ импульсы и импульс поля локального осциллятора $E_{lo}(t)$ обладают длительностью τ_{pul} (полная ширина на полувысоте). Огибающая их интенсивности моделируется функцией

Результаты

$$I_p(t) \propto I_0(t) \propto I_{lo}(t) \propto \operatorname{sech}\left(-t / (0,38\tau_{pul})\right).$$

Отклик электронной гиперполяризуемости $R_{el}(t)$ пропорционален коэффициенту «мгновенной» электронной кубической гиперполяризуемости γ и интенсивности накачивающего импульса $I_p(t)$:

$$R_{el}(t) \propto \gamma I_p(t). \quad (2)$$

Функция отклика внутримолекулярных колебаний $R_{osc}(t)$ имеет вид

$$R_{osc}(t) \propto \sum_{i=1}^N (\alpha_{osc}^i)^2 \Phi_{osc}(\Omega_{osc}^i, \tau_{osc}^i, t); \quad (3)$$

$$\Phi_{osc}(\Omega_{osc}, \tau_{osc}, t) = (\Omega_{osc}^2 - \tau_{osc}^{-2})^{-1/2} \times \\ \times \int_0^\infty I_p(t-t') \exp\left(-\frac{t'}{\tau_{osc}}\right) \sin\left[(\Omega_{osc}^2 - \tau_{osc}^{-2})^{1/2} t'\right] dt',$$

где N — количество колебательных мод, возбуждаемых импульсом накачки; α_{osc}^i — коэффициент, характеризующий изменение поляризуемости молекулы при возбуждении колебания i -й моды; Ω_{osc}^i и τ_{osc}^i — частота колебания и время релаксации i -й моды.

Ориентационный отклик $R_{or}(t)$ описывается выражением

$$R_{or}(t) \propto \Delta\alpha^2 \int_0^\infty I_p(t-t') \exp\left(-\frac{t'}{\tau_{or}}\right) dt', \quad (4)$$

где τ_{or} — время релаксации вращательного отклика; $\Delta\alpha$ коэффициент, характеризующий анизотропию поляризуемости молекулы. Моделирование либрационного отклика $R_{lib}(t)$ основывается на функции распределения либрационных частот $\rho(\Omega_{lib})$, которая отражает локальную неоднородность среды:

$$R_{lib}(t) \propto \Delta\alpha^2 \int_0^\infty d\Omega_{lib} \rho(\Omega_{lib}) \Phi_{lib}(\Omega_{lib}, t); \quad (5)$$

$$\Phi_{lib}(\Omega_{lib}, t) = \Omega_{lib}^{-1} \int_0^\infty I_p(t-t') \sin[\Omega_{lib} t'] dt',$$

где Ω_{lib} — частота либраций. В [13] показано, что эта функция $\rho(\Omega_{lib})$ имеет вид распределения Максвелла $\rho(\Omega_{lib}) \propto \Omega_{lib}^2 \exp\{-\Omega_{lib}^2/2(\Omega_{n,lib})^2\}$, которое характеризуется параметром $\Omega_{n,lib}$. Результаты моделирования приведены на рис. 2, параметры моделирования — в таблице.

Сигнал ОЭК в хлороформе при одноимпульсном возбуждении (см. рис. 2, *a*) содержит колебательные и вращательные молекулярные отклики. При одновременном действии возбуждающего и зондирующего импульсов регистрируется отклик кубической гиперполяризуемости молекул. Этот отклик имеет вид автокорреляционной функции и представлен характерным пиком в сигнале ОЭК в области нулевой задержки.

Затухающие осцилляции вплоть до 3 пс обусловлены когерентными внутримолекулярными колебаниями. В области больших задержек колебательный отклик накладывается на экспоненциально затухающий ориентационный отклик. До 600 фс после действия возбуждающего импульса наряду с рассмотренными выше откликами наблюдается коллективный либрационный отклик. Значения констант среды, полученные в результате моделирования сигнала ОЭК при одноимпульсном возбуждении, приведены в таблице. Далее будет отмечено, что информацию о параметрах среды можно получить без моделирования нелинейного отклика среды третьего порядка, используя одноимпульсное и двухимпульсное возбуждение среды.

На рис. 2, *b* показана мнимая часть Фурье-преобразования сигнала ОЭК. Пик в области 260–280 см^{-1} соответствует частоте внутримолекулярных осцилляций, что согласуется с результатами моделирования 273 см^{-1} . Известно [12, 13], что молекулы хлороформа имеют низкочастотную комбинационно-активную моду с частотой 375 см^{-1} . Однако данная мода в нашем случае плохо возбуждается импульсом длительностью 35 фс.

Согласно [10] при двухимпульсном возбуждении среды можно подобрать параметры импульсной последовательности таким образом, что за счет деструктивной интерференции колебательный отклик в сигнале ОЭК подавляется. На рис. 3, *a* показан один из сценариев подавления колебательного отклика и усиления вращательных откликов после действия второго возбуждающего импульса с задержкой 1,61 пс.

В момент действия второго импульса регистрируется отклик кубической гиперполяризуемости, величина которого пропорциональна интенсивности возбуждающего импульса. В [10] теоретически показано, что время релаксации когерентных внутримолекулярных колебаний можно определить в серии экспериментов по подавлению колебательного отклика. Для этого необходимо экспериментально получить зависимость интенсивности второго импульса от задержки между двумя возбуждающими

Константы жидкости CHCl_3

Метод определения констант	τ_{or} , пс	$\Omega_{osc}^{(1)}$, см^{-1}	$\tau_{osc}^{(1)}$, пс	$\Omega_{n,lib}$, см^{-1}
Моделирование сигнала ОЭК при одноимпульсном возбуждении (см. рис. 1, <i>a</i>)	$1,2 \pm 0,05$	273 ± 5	$1,5 \pm 0,2$	32 ± 3
Эксперимент по одно- и двухимпульсному возбуждению среды (см. рис. 1–3)	$1,5 \pm 0,3$	270 ± 10	$1,2 \pm 0,3$	—

импульсами. Данная зависимость представлена на рис. 3, б, из которого видно, что затухание когерентных колебаний происходит по экспоненциальному закону с временем релаксации $(1,2 \pm 0,3)$ пс.

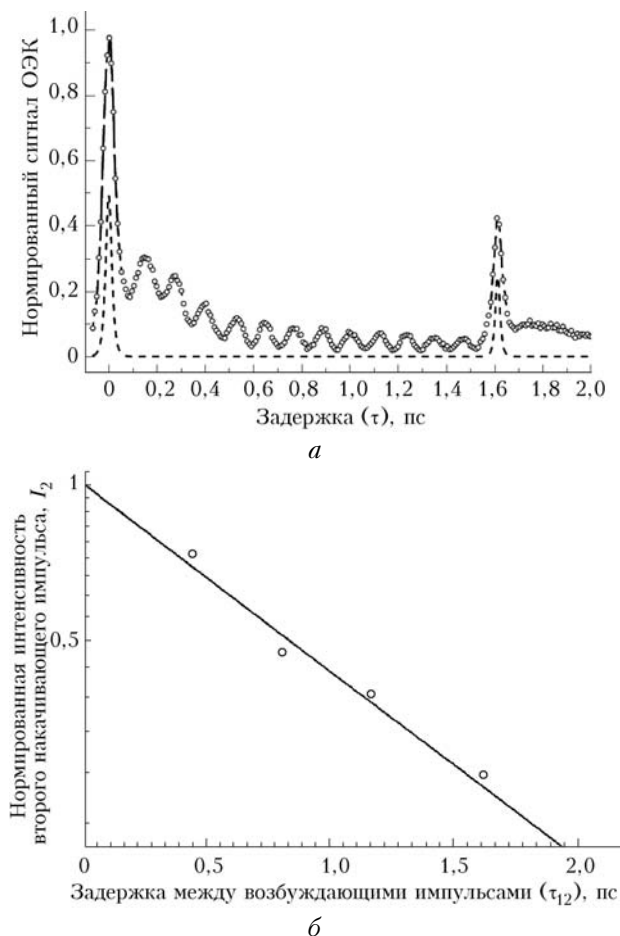


Рис. 3. Сигнал ОЭК при возбуждении последовательно из двух импульсов длительностью $\tau_{pnl} = 35$ фс (кружочки – экспериментальные данные, штриховая – огибающая интенсивности возбуждающих импульсов). Задержка между возбуждающими импульсами 1,61 пс (а); зависимость нормированной интенсивности второго импульса I_2 от задержки между первым и вторым возбуждающими импульсами τ_{12} , при которой происходит подавление колебательного отклика R_{osc} . Сплошной линией показана функция $\exp(-\tau_{12}/1,2)$ (б)

На рис. 4 показан сигнал ОЭК при двухимпульсном возбуждении и минимально возможной задержке 60 фс между возбуждающими импульсами, при которой происходит подавление колебательного отклика. В этом случае после действия возбуждающих импульсов в сигнале ОЭК явно выделяются вращательные отклики с максимально возможной интенсивностью в условиях данного эксперимента. Видны также три характерных пика в области задержек 0; 60 и 200 фс. Максимумы при 0 и 60 фс обусловлены откликом кубической гиперполяризуемости в момент действия возбуждающих импульсов на среду. Максимум при 200 фс обусловлен либрационным откликом молекул. Длинная составляющая сигнала ОЭК после 660 фс

затухает по экспоненциальному закону. Затухание обусловлено релаксацией ориентационной анизотропии молекул (ориентационный отклик), наведенной возбуждающими импульсами.

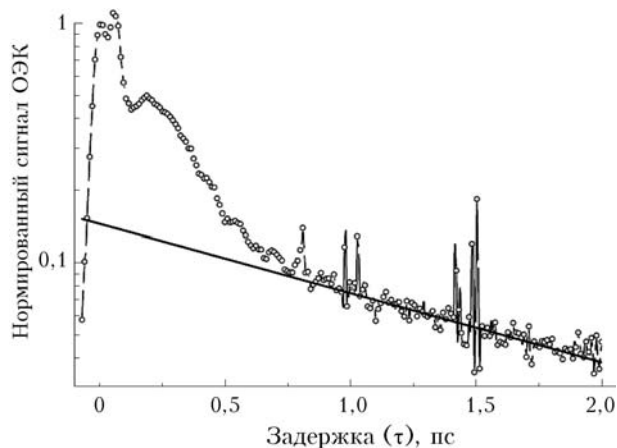


Рис. 4. Сигнал ОЭК при возбуждении последовательно из двух импульсов длительностью $\tau_{pnl} = 35$ фс. Задержка между возбуждающими импульсами 60 фс (кружочки – экспериментальные данные, сплошная линия – функция $0,145 \cdot \exp(-\tau/1,5)$)

Из рис. 4 следует, что величина времени релаксации $(1,5 \pm 0,3)$ пс. Видно, что затухание либрационного отклика за время порядка 600 фс не соответствует экспоненциальному закону. Моделирование сигнала ОЭК при одноимпульсном возбуждении показало, что затухание коллективного либрационного отклика происходит по механизму дефазировки когерентных либраций молекул (вращательных колебаний), скоростью которой определяется видом распределения частот либраций молекул в жидкости [13].

Заключение

С помощью моделирования и сравнения модельных спектров с полученными в результате эксперимента можно достаточно точно узнать молекулярные константы среды. Сравнивая набор полученных констант, можно судить о состоянии атмосферы и содержании каких-либо примесей в данной точке. Предложенный метод основан на селективном возбуждении/подавлении молекулярных колебательно-вращательных мод и не требует детального моделирования оптического отклика среды третьего или пятого порядка. Это достигается путем манипулирования отдельными молекулярными движениями при создании конструктивной или деструктивной интерференции соответствующих волновых пакетов с помощью последовательности двух возбуждающих импульсов.

Сравнение полученных значений констант с результатами моделирования сигнала ОЭК при одноимпульсном возбуждении показывает хорошее согласие обоих способов определения параметров среды. Отметим также, что значения молекулярных констант, приведенные в таблице, хорошо согласуются с результатами работ [12, 13].

Главное достоинство предложенного метода состоит в том, что он позволяет в эксперименте получать искомые характеристики среды и не требует моделирования с большим набором констант (из-за чего часто возникает вопрос об однозначности интерпретации). Заметим, что моделирование оптического отклика среды третьего порядка для анализа сигнала ОЭК при одноимпульсном возбуждении является сложной математической задачей, требующей дополнительных усилий. Недостатком метода является то, что необходимы дополнительные эксперименты с двухимпульсным возбуждением среды. Помимо этого, метод позволяет оценить только время полного затухания либрационного отклика, однако для определения характеристик спектра либрационных частот требуется моделирование либрационного отклика. Следует отметить, что точность определения констант среды оказалась меньше, чем при моделировании сигнала ОЭК. Для повышения точности необходимо более тщательно контролировать экспериментальные параметры (длительности импульсов, их интенсивности и т.д.).

Отметим другой важный результат, который состоит в экспериментальном подтверждении главных выводов теоретической работы [10], где впервые рассмотрено применение двухимпульсного возбуждения с целью реализации селективной спектроскопии в экспериментах по регистрации ОЭК.

В обзоре [15] и работах [16, 17] анализировался вопрос о роли явления филаментации при распространении в атмосфере мощных фемтосекундных лазерных импульсов. Образование филаментов в сфокусированном излучении сопровождается уширением его спектра. В экспериментах с импульсами тераваттной мощности в открытой атмосфере регистрировался спектр суперконтинуума, генерируемый в филаменте длиной более 20 м.

В фемтосекундных экспериментах [18] суперконтинуум генерировался при средней плотности излучения в фемтосекундном импульсе 10^{13} Вт/см². Генерация суперконтинуума имела место в разных средах (воде, стекле, лейксапфире), но наилучшие параметры суперконтинуума получены при прохождении усиленных фемтосекундных импульсов через воду ($\lambda = 787$ нм, $\tau_{puls} = 260$ фс, $J = 18$ мкДж). Полученные в работе [18] результаты согласуются с данными, приведенными в обзоре [15].

Суперконтинуум, как показано выше, может выступать в качестве помощника при настройке лидача, но он может мешать при проведении измерения, поэтому необходим контроль таких параметров, как энергия импульса и его длительность. Так как сам оптический эффект Керра становится хорошо заметен при относительно больших плотностях потока энергии, то при проведении измерений следует соблюдать определенный баланс между соотношением сигнал-шум и генерацией суперконтинуума или процессом филаментации. Достигнуть этого баланса можно с помощью регулятора ДГС и изменения коэффициента усиления усилителя фемтосекундных импульсов.

Отметим также некоторые особенности предложенных схем, в частности необходимость контроля мощности и фазовой модуляции (чирпа) фемтосекундных импульсов, а также возможный способ настройки лидача, построенного по предложенным схемам.

Считаем своим долгом поблагодарить проф. А.А. Землянова за внимание к данной работе.

Исследования поддержаны грантами ОФН РАН «Фундаментальная оптическая спектроскопия и ее применения», программой «Ведущие научные школы» (№ НШ 6267.2010.2) и грантами РФФИ (№ 09-02-00136«а» и 08-02-0032«а»).

1. Зуев В.Е., Зуев В.В. Дистанционное оптическое зондирование атмосферы. СПб.: Гидрометеиздат, 1992. 232 с.
2. Ruhman R., Williams L.R., Joly A.G., Kohler B., Nelson K.A. Nonrelaxational inertial motion in CS₂ liquid observed by time-resolved impulsive stimulated scattering // J. Phys. Chem. 1987. V. 91. P. 2237–2240.
3. McMorro D., Lotshaw W.T., Kenney-Wallace G.A. Femtosecond optical Kerr studies on the origin of the nonlinear responses in simple liquids // IEEE J. Quantum Electron. 1988. V. 24, N 2. P. 443–454.
4. Righin R. Ultrafast Optical Kerr Effect in Liquids and Solids // Science. 1993. V. 262. P. 1389–1390.
5. Yan Y.J., Mukamel S. Femtosecond pump-probe spectroscopy of polyatomic molecules in condensed phases // Phys. Rev. A. 1990. V. 41, N 11. P. 6485–6504.
6. Tanimura Y., Mukamel S. Real-time path-integral approach to quantum coherence and dephasing in nonadiabatic transitions and nonlinear optical response // Phys. Rev. E. 1993. V. 47, N 1. P. 118–136.
7. Steffen T., Fourkas J.T., Duppen K. Time resolved four- and six-wave mixing in liquids. I. Theory // J. Chem. Phys. 1996. V. 105, N 17. P. 7364–7383.
8. Lobkov V.S., Moiseev S.A., Nikiforov V.G., Salikhov K.M., Dunaev D.M. Molecular dynamics of benzonitrile and dichlorobenzene investigated by femtosecond optical kerr effect // Laser Phys. 2003. V. 13, N 9. P. 1138–1142.
9. McMorro D. Separation of nuclear and electronic contributions to femtosecond four-wave mixing data // Opt. Commun. 1991. V. 86. P. 236–244.
10. Moiseev S.A., Nikiforov V.G. Selective femtosecond spectroscopy of molecules in the multipulse technique for observing the optical Kerr effect // Quantum Electron. 2004. V. 34, N 11. P. 1077–1082.
11. Никуфоров В.Г., Сафиуллин Г.М., Шмелев А.Г., Леонтьев А.В., Лобков В.С. Оптический контроль ориентационной анизотропии молекул в жидкости // Письма в ЖЭТФ. 2007. Т. 86, вып. 10. С. 757–761.
12. Laurent T.F., Henning H., Ernsting N.P., Kovalenko S.A. The Ultrafast Optical Kerr Effect in Liquid Fluoroform: an Estimate of the Collision-Induced Contribution // Phys. Chem. Chem. Phys. 2000. V. 2. P. 2691–2697.
13. Никуфоров В.Г., Лобков В.С. Исследование вращательной динамики молекул в жидкости в субпикосекундном диапазоне // Квант. электрон. 2006. Т. 36, № 10. С. 984–988.
14. Nelson K.A., Dayane Miller R.J., Lutz D.R., Fayer M.D. Optical generation of tunable ultrasonic waves // J. Appl. Phys. 1982. V. 53, N 2. P. 1144–1149.

15. Кандидов В.П., Шленов С.А., Косарева О.Г. Филаментация мощного фемтосекундного лазерного излучения // Квант. электрон. 2009. Т. 39, № 3. С. 205–228.
16. Землянов А.А., Булыгин А.Д. Эффективный радиус фемтосекундного лазерного излучения при его самовоздействии в газовой среде в режиме множественной филаментации // Оптика атмосф. и океана. 2008. Т. 21, № 12. С. 1064–1069.
17. Булыгин А.Д., Быкова Е.Е., Землянов А.А. Особенности флуоресценции органических молекул из капли под действием фемтосекундного лазерного импульса при двухфотонном поглощении // Изв. вузов. Физ. 2009. Т. 52, № 8. С. 84–91.
18. Шмелев А.Г., Леонтьев А.В., Сафиуллин Г.М., Лобков В.С. Оптимизация параметров генератора суперконтинуума // Учен. зап. КГУ. 2007. Т. 149, № 1. С. 141–145.

A.G. Shmelev, V.G. Nikiforov, G.M. Safiullin, V.S. Lobkov, V.V. Samartsev. **Polarization two-pulse method for analysis of probe femtosecond signals based on ultrafast optical Kerr effect.**

We proposed a novel method in molecular polarization spectroscopy, based on the ultrafast optical Kerr effect to analyze probe femtosecond signals. We demonstrated the interpretation of the reference chloroform signal by the novel method at room temperature. It was shown that handling of the separate molecular motions by creating the constructive or destructive interference of corresponding wave packets allows one to determine directly from the experiment such constants of molecular dynamics as the relaxation times of the coherent vibrations (≈ 1.5 ps) and those of orientational anisotropy (≈ 1.2 ps).