

РЕГИСТРАЦИЯ СУБФЕМТОСЕКУНДНЫХ ПЕРЕХОДНЫХ ПРОЦЕССОВ МЕТОДАМИ НЕЛИНЕЙНОГО КОМБИНАЦИОННОГО РАССЕЯНИЯ

*А. М. Желтиков**

*Физический факультет, Международный лазерный центр,
Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова
119992, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 5 апреля 2006 г.

Показано, что сверхбыстрые переходные процессы приводят к качественному изменению свойств нелинейно-оптического отклика комбинационно-активной среды. Для быстропротекающих процессов с характерными временами фазовой релаксации короче периода лазерного поля $T_0 = 2\pi/\omega$, где ω — несущая частота лазерного излучения, в нелинейно-оптическом отклике среды наряду с сигналом, связанным с комбинационным резонансом, наблюдается высокочастотная составляющая, возникающая за счет модуляции дипольного момента на частоте 2ω . Это явление открывает возможность использования методов нелинейного комбинационного рассеяния для оптической регистрации переходных процессов с субфемтосекундным временным разрешением.

PACS: 42.65.Wi, 42.81.Qb

1. ВВЕДЕНИЕ

Сверхкороткие импульсы электромагнитного излучения, формируемые лазерными источниками, являются уникальным инструментом для исследования быстропротекающих процессов в физике, химии и биологии [1–3]. Фемтосекундные лазерные импульсы впервые позволили наблюдать в реальном времени динамику быстропротекающих элементарных молекулярных процессов и получить мгновенные снимки молекул и групп атомов на различных стадиях химических реакций [4]. Временное разрешение, обеспечиваемое фемтосекундными лазерными импульсами, оказывается достаточным для исследования любых, даже самых быстрых процессов молекулярной динамики [5]. Для изучения динамики электронной системы внутри атомов, однако, требуются импульсы длительностью короче одной фемтосекунды — аттосекундные импульсы ($1 \text{ ас} = 10^{-18} \text{ с}$). Генерация таких импульсов стала возможной [6, 7] на основе нелинейно-оптических взаимодействий высокоинтенсивных сверхкоротких лазерных импульсов лишь в последние годы.

Временное разрешение широко распространенных методов оптической спектроскопии с использованием разнесенных во времени импульсов накачки и зондирующих импульсов [1–3] определяется длительностью временных огибающих лазерных импульсов. Выполненные недавно эксперименты в области аттосекундной физики [7–12], однако, показывают, что для лазерных импульсов, состоящих всего из нескольких циклов колебаний оптического поля, имеются принципиально новые возможности для повышения временного разрешения. В условиях, когда возбуждение или ионизация среды осуществляется импульсом длительностью короче половины периода оптического поля, результат воздействия сверхкороткого лазерного импульса на возбужденную среду оказывается зависящим от фазы светового поля [8]. Такая зависимость позволяет реализовать методики измерения длительностей аттосекундных рентгеновских импульсов [8] и характеристики поля световой волны [9], осуществить управление электронными волновыми пакетами [10], а также достичь субфемтосекундного разрешения при исследовании быстропротекающих электронных процессов в возбужденных атомарных системах [11, 12].

*E-mail: zheltikov@phys.msu.ru

В настоящей работе исследуются возможности достижения субфемтосекундного временного разрешения методами нелинейной оптики. В рамках модели двухуровневых слабо взаимодействующих квантовых систем рассмотрено нелинейно-оптическое взаимодействие коротких лазерных импульсов с комбинационно-активной средой. Полученные результаты показывают, что сверхбыстрые переходные процессы приводят к качественному изменению свойств нелинейно-оптического отклика комбинационно-активной среды. В частности, для процессов с характерными временами фазовой релаксации короче периода лазерного поля $T_0 = 2\pi/\omega$, где ω — несущая частота лазерного излучения, в нелинейно-оптическом отклике среды наряду с сигналом, связанным с комбинационным резонансом, наблюдается высокочастотная составляющая, возникающая за счет модуляции дипольного момента на частоте 2ω . Это явление открывает возможность оптической регистрации субфемтосекундных переходных процессов методами нелинейного комбинационного рассеяния.

2. ФОРМАЛИЗМ МАТРИЦЫ ПЛОТНОСТИ И АМПЛИТУДА КОГЕРЕНТНЫХ КОЛЕБАНИЙ

Рассмотрим ансамбль слабо взаимодействующих двухуровневых систем в присутствии поля лазерного излучения E . Эволюция такого ансамбля описывается уравнением Лиувилля для компонент матрицы плотности ρ_{ij} [13]:

$$\frac{\partial \rho_{ij}}{\partial t} = \frac{i}{\hbar} [\rho, H]_{ij} + \sum_{kl} R_{ijkl} (\rho_{kl} - \rho_{kl}^{(0)}). \quad (1)$$

Здесь индексы i, j, k, l принимают значения a и b , соответствующие начальному и конечному состояниям двухуровневой системы, R_{ijkl} — матрица постоянных затухания, $\rho_{ij}^{(0)}$ — равновесное значение ρ_{ij} .

Гамильтониан в правой части уравнения (1) может быть представлен в следующем виде:

$$H = H_0 + V, \quad (2)$$

где H_0 — гамильтониан невозмущенной системы в отсутствие поля, а оператор

$$V = -\frac{1}{2}(\alpha_0 + \alpha'q)E^2, \quad (3)$$

учитывает взаимодействие между частицами и лазерным полем E . В выражении (3) введена равновес-

ная электронная поляризуемость α_0 , колебательная координата q и параметр

$$\alpha' = \left(\frac{\partial \alpha}{\partial q} \right)_{q=0},$$

связанный с сечением комбинационного рассеяния частиц рассматриваемого ансамбля.

Для амплитуды когерентных колебаний в рассматриваемом ансамбле воспользуемся стандартной процедурой квантовомеханического усреднения:

$$Q \equiv \langle q \rangle = \text{Tr}(\rho q) = \sum_{ij} \rho_{ij} q_{ji}. \quad (4)$$

Для гармонического осциллятора с частотой колебаний Ω_0 и массой M имеем

$$q_{ab}^2 = \hbar(2M\Omega_0)^{-1},$$

а уравнение (1) имеет вид

$$\frac{d^2 Q}{dt^2} + \frac{2}{T_2} \frac{dQ}{dt} + \Omega_0^2 Q = \frac{1}{2M} \alpha' n E^2, \quad (5)$$

где $n = \rho_{aa} - \rho_{bb}$ — нормированная разность населенностей между уровнями a и b .

Если вызываемые лазерным излучением изменения разности населенностей n малы и можно положить $n = n_0 = \text{const}$, уравнение (5) приводится к уравнению для амплитуды молекулярных колебаний в классической модели электрон-фотонной связи, предложенной Плачеком [14]. В этом случае решение уравнения (5) может быть записано через интеграл Дюамеля:

$$Q(t) = \int_0^\infty h(\eta) F(1 - \eta) d\eta, \quad (6)$$

где

$$h(\eta) = \frac{n_0}{M\Omega} \exp\left(-\frac{\eta}{T_2}\right) \sin(Q\eta) \quad (7)$$

— функция импульсного отклика (функция Грина), $\Omega = (\Omega_0^2 - T_2^{-2})^{1/2}$,

$$F(\xi) = \frac{1}{2} \alpha' E^2 \quad (8)$$

— внешняя сила.

В следующих разделах мы воспользуемся уравнениями (6)–(8) для выяснения возможности использования методов нелинейного комбинационного рассеяния света для регистрации быстротекущих процессов в среде с субфемтосекундным разрешением.

3. ВЫНУЖДЕННОЕ КОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЙЯНИЕ В ПОЛЕ СВЕРХКОРОТКИХ ИМПУЛЬСОВ

Для эффективного когерентного возбуждения комбинационно-активных колебаний с частотой Ω действующее на систему световое поле должно содержать спектральные компоненты ω_1 и ω_2 , разделенные спектральным интервалом Ω . Для выполнения этого условия можно использовать режим бигармонической накачки, в котором сфазированное возбуждение колебаний осуществляется с помощью пары лазерных импульсов (необязательно коротких) с несущими частотами ω_1 и ω_2 [15]. В импульсном режиме комбинационное возбуждение среды производится с помощью одного светового импульса [16–18], ширина спектра которого превышает частоту колебаний Ω . Ниже мы рассмотрим возможности импульсного режима вынужденного комбинационного рассеяния света для оптической регистрации сверхбыстрых переходных процессов.

Пусть система находится под действием лазерного импульса следующего вида:

$$E = E_0(t) \cos(\omega t). \quad (9)$$

С учетом формул (6)–(9) получаем следующее выражение для амплитуды когерентных колебаний:

$$Q(t) = Q_{dc}(t) + Q_{2\omega}(t), \quad (10)$$

где

$$Q_{dc}(t) \propto \frac{\alpha'}{2} \int_0^\infty h(\eta) E_0^2(t - \eta) d\eta, \quad (11)$$

$$Q_{2\omega}(t) \propto \frac{\alpha'}{2} \int_0^\infty h(\eta) \cos[2\omega(t - \eta)] E_0^2(t - \eta) d\eta. \quad (12)$$

При импульсном возбуждении комбинационных мод с функцией импульсного отклика, имеющей вид затухающих гармонических колебаний с частотой Ω и временем релаксации

$$T_2 > T_0 = \frac{2\pi}{\Omega} \gg \frac{1}{\omega},$$

второе слагаемое в выражении (10) для амплитуды колебаний Q пренебрежимо мало по сравнению с первым:

$$Q(t) \approx Q_{dc}(t) \propto \frac{\alpha'}{2} \int_0^\infty \exp\left(-\frac{\eta}{T_2}\right) \sin(\Omega\eta) E_0^2(t - \eta) d\eta. \quad (13)$$

Для предельного случая лазерных импульсов с бесконечно малой длительностью,

$$E_0(t) = A\delta(t - t_0),$$

профиль $Q(t)$ совпадает с функцией импульсного отклика:

$$Q(t) = A^2\theta(t - t_0) \sin[\Omega(t - t_0)] \times \exp[-(t - t_0)/T_2], \quad (14)$$

где $\theta(\xi)$ — ступенчатая функция Хевисайда.

Для лазерного импульса гауссовой формы,

$$E_0(t) = A \exp(-t^2/\tau^2),$$

имеем

$$Q(t) \propto A^2\alpha'\tau \exp\left(\frac{\tau^2}{8T_2^2}\right) \times \exp\left(-\frac{t}{T_2}\right) \exp\left(-\frac{\Omega^2\tau^2}{8}\right) \times \left\{ \exp\left[i\Omega\left(\frac{\tau^2}{4T_2} - t\right)\right] \times \operatorname{erfc}\left[\frac{\tau}{2\sqrt{2}}\left(\frac{1}{T_2} - \frac{4t}{\tau^2} + i\Omega\right)\right] - \exp\left[-i\Omega\left(\frac{\tau^2}{4T_2} - t\right)\right] \times \operatorname{erfc}\left[\frac{\tau}{2\sqrt{2}}\left(\frac{1}{T_2} - \frac{4t}{\tau^2} - i\Omega\right)\right] \right\}. \quad (15)$$

В отличие от случая импульса с бесконечно малой длительностью, приводящего к временному профилю $Q(t)$ со ступенчатым фронтом, время нарастания временного отклика системы на лазерный импульс конечной длительности определяется длительностью лазерного импульса. При этом ступенчатая функция Хевисайда в выражении для $Q(t)$ заменяется интегралом ошибок $\operatorname{erfc}(x)$. Экспоненциальный множитель $\exp(-t/T_2)$, описывающий дефазировку когерентных возбуждений в среде, в явном виде фигурирует в выражении (15). Таким образом, имеется возможность прямого измерения времени T_2 . Однако разрешение такого измерения определяется длительностью импульса τ .

Ограничения на временное разрешение измерения времени дефазировки, связанные с конечной длительностью лазерного импульса, показаны на рис. 1. Крестиками (линия 1) показана функция импульсного отклика для быстрого переходного процесса, соответствующего сильно демпфированному гармоническому осциллятору с временем релаксации $T_2 = 1/\Omega$. Для лазерных импульсов длительностью $\tau = 0.5T_2$ временная зависимость амплитуды

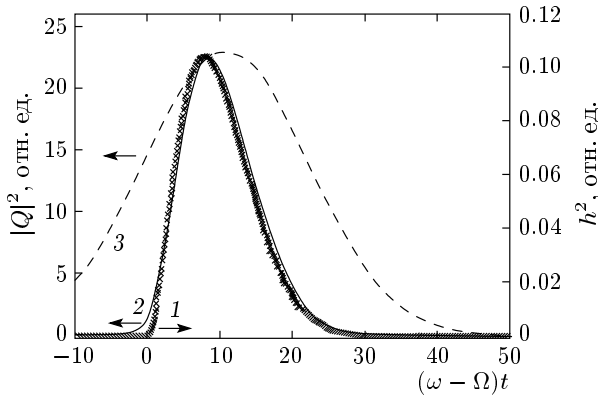


Рис. 1. Функция импульсного отклика (линия 1) и амплитуда когерентных колебаний (линии 2, 3) для $T_2\Omega = 1$, $T_2\omega = 11$, $\tau = 0.5T_2$ (2), $\tau = 3T_2$ (3)

когерентных колебаний (линия 2) точно воспроизводит функцию импульсного отклика (линия 1). Таким образом, в этом режиме имеется возможность прямого измерения импульсного отклика системы. Для лазерных импульсов длительностью $\tau = 3T_2$ ширина временного профиля функции $Q(t)$ (линия 3) заметно превышает ширину функции импульсного отклика. Измерение времени T_2 при этом возможно только на хвостах функции $Q(t)$ и требует значительного динамического диапазона системы регистрации и селективности возбуждения исследуемого типа колебаний.

4. РЕГИСТРАЦИЯ СУБФЕМТОСЕКУНДНЫХ ПЕРЕХОДНЫХ ПРОЦЕССОВ

Рассмотрим возможности регистрации сверхбыстрых переходных процессов с помощью когерентного возбуждения комбинационных колебаний с амплитудой, описываемой выражениями (10)–(12). Покажем, что такая возможность определяется соотношением между временем фазовой релаксации T_2 и периодом светового поля T_0 .

На рис. 2а представлены временные зависимости Q , Q_{dc} и $Q_{2\omega}$, рассчитанные для случая $T_2 = \tau = 13/\omega = 2.1T_0$. В этом случае вклад $Q_{2\omega}$ в полную амплитуду когерентных колебаний Q пренебрежимо мал по сравнению с вкладом Q_{dc} . Функция импульсного отклика, соответствующая рассматриваемому соотношению между временем дефазировки, длительностью импульса и периодом светового поля, показана штриховой линией на рис. 3а. Временной профиль функции $Q(t)$ в рассматриваемом

случае (сплошная линия на рис. 3а) существенно отличается от профиля функции импульсного отклика.

В случае сверхбыстрых переходных процессов с временем релаксации $T_2 < T_0$ ситуация меняется. Второе слагаемое в выражении (10) перестает быть пренебрежимо малым по сравнению с первым слагаемым. С физической точки зрения это означает, что высокочастотная модуляция дипольного момента на частоте 2ω начинает давать заметный вклад в суммарную амплитуду когерентных колебаний. В этом режиме каждый из циклов колебаний дипольного момента с частотой 2ω обеспечивает сверхкороткий импульс возмущения, осуществляющий зондирование сверхбыстрых переходных процессов в среде.

Для более детального анализа этой возможности рассмотрим сверхбыстрый переходный процесс с временем фазовой релаксации $T_2 < 2\pi/\Omega$. Для такого процесса множитель $\sin(\Omega\eta)$, входящий в функцию импульсного отклика $h(\eta)$, может быть аппроксимирован первым членом своего степенного разложения,

$$\sin(\Omega\eta) \approx \Omega\eta.$$

Тогда для лазерного импульса вида (9) с произвольной формой огибающей, являющейся медленной функцией на масштабе времени T_2 , так что

$$E_0(t - \eta) \approx E_0(t),$$

интегрирование в выражении (11) приводит к следующему результату:

$$Q_{dc}(t) \propto \alpha' T_2^2 E_0^2(t). \tag{16}$$

Вычисление при тех же предположениях интеграла в выражении (12) дает

$$Q_{2\omega}(t) \propto \frac{\alpha' T_2^2 E_0^2(t)}{1 + (2\omega T_2)^2} \sin(2\omega t + \psi), \tag{17}$$

где

$$\psi = \arctg [(4\omega T_2)^{-1} - \omega T_2].$$

Как следует из формул (16) и (17), высокочастотная составляющая когерентных колебаний пренебрежимо мала по сравнению с величиной Q_{dc} , ответственной за явление вынужденного комбинационного рассеяния, до тех пор пока выполняется условие $T_2 \gg (2\omega)^{-1}$ (см. рис. 2а). Однако для переходных процессов с временем дефазировки T_2 , сравнимым или меньшим времени $(2\omega)^{-1}$, высокочастотная составляющая колебаний становится заметной на фоне комбинационной составляющей колебаний (рис. 2б). Временной профиль $Q(t)$ в этом режиме

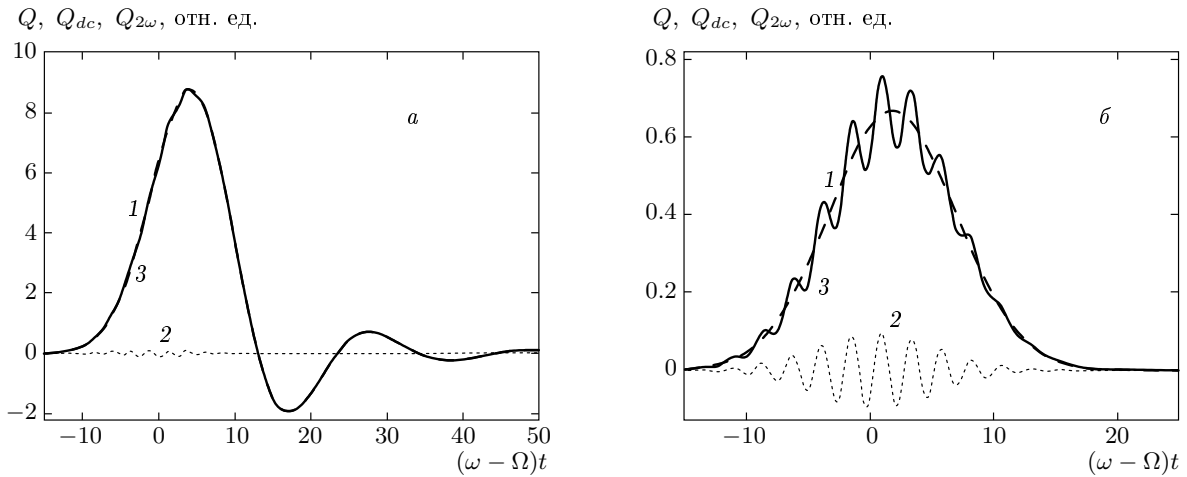


Рис. 2. Временная зависимость амплитуд Q (линия 1), $Q_{2\omega}$ (линия 2) и Q_{dc} (линия 3) для когерентных колебаний с частотой Ω , возбуждаемых лазерным импульсом (9) с несущей частотой $\omega = 4.33\Omega$ и длительностью $\tau = 13/\omega$.
 Время дефазировки когерентных колебаний составляет $T_2 = 13/\omega$ (а) и $1.3/\omega$ (б)

оказывается промодулирован с частотой 2ω (рис. 2б и 3б). Наличие такой модуляции может быть использовано для оптической регистрации сверхбыстрых переходных процессов.

5. ОПТИЧЕСКАЯ РЕГИСТРАЦИЯ ВЫСОКОЧАСТОТНОЙ СОСТАВЛЯЮЩЕЙ КОГЕРЕНТНЫХ КОЛЕБАНИЙ

Один из возможных способов регистрации 2ω -составляющей когерентных колебаний может быть основан на измерении модуляции фазы пробного импульса в среде с наведенной коротким лазерным импульсом волной когерентных колебаний Q . В отличие от керровской нелинейности, отображающей временной профиль огибающей интенсивности импульса накачки на профиль фазы пробного импульса, высокочастотные осцилляции дипольного момента приводят к гармоническому закону модуляции фазы светового поля.

Для иллюстрации этой возможности рассмотрим пробный импульс

$$E_p = A(t, z) [\exp(i\omega_p t - ikz) + \text{c.c.}], \quad (18)$$

распространяющийся вдоль оси z в среде с наведенными лазерным полем когерентными колебаниями, описываемыми выражением (10).

Нелинейная поляризация среды, приводящая к модуляции фазы пробного поля, имеет вид

$$P \propto n_0 \alpha' Q_3 E_p. \quad (19)$$

Уравнение для амплитуды пробного поля запишем в следующем виде [13, 15]:

$$\frac{\partial A}{\partial z} + \frac{1}{u_p} \frac{\partial A}{\partial t} = -i\gamma Q_3 \left(t - \frac{z}{u}\right) A, \quad (20)$$

где γ — коэффициент нелинейности, u и u_p — групповые скорости соответственно импульса накачки и пробного импульса.

Пренебрегая эффектами групповой расстройки и вводя время в сопровождающей системе координат, $\xi = t - z/u$, получим следующее решение уравнения (27):

$$B(\xi, z) = B(\xi, 0) \exp \{-i[\Phi_{dc}(\xi, z) + \Phi_{2\omega}(\xi, z)]\}. \quad (21)$$

Первое слагаемое в выражении (21),

$$\Phi_{dc}(\xi, z) \propto \gamma z n_0 \alpha' T_2^2 E_0^2(\xi), \quad (22)$$

аналогично выражению, описывающему нелинейный сдвиг фазы в среде с керровской нелинейностью. Второе слагаемое в выражении (21) имеет вид

$$\Phi_{2\omega}(\xi, z) \propto \gamma z n_0 \frac{\alpha' T_2^2 E_0^2(\xi)}{1 + (2\omega T_2)^2} \sin(2\omega \xi + \psi). \quad (23)$$

Сравнение выражений (22) и (23) показывает, что фазовый сдвиг $\Phi_{2\omega}(\xi, z)$ начинает играть заметную роль на фоне $\Phi_{dc}(\xi, z)$ в режиме, когда время T_2 становится сравнимым с временем $(2\omega)^{-1}$. Аналогично нелинейному сдвигу фазы, индуцируемому керровской нелинейностью, фазовый сдвиг $\Phi_{dc}(\xi, z)$ пропорционален интенсивности излучения накачки

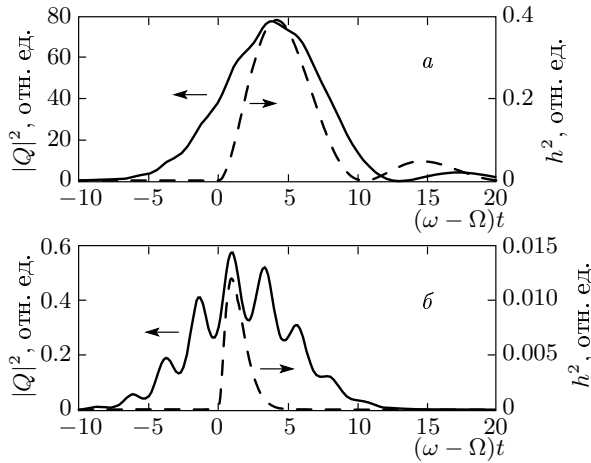


Рис. 3. Временная зависимость амплитуды когерентных колебаний Q (сплошная линия) с частотой Ω , возбуждаемых лазерным импульсом (9) с несущей частотой $\omega = 4.33\Omega$ и длительностью $\tau = 13/\omega$. Время дефазировки когерентных колебаний составляет $T_2 = 13/\omega$ (а) и $1.3/\omega$ (б). Штриховой линией показана функция импульсного отклика для исследуемых когерентных колебаний

и линейно увеличивается с расстоянием, проходящим импульсом в среде. В фазовый сдвиг $\Phi_{2\omega}(\xi, z)$ входит множитель $\text{sinc}(2\omega\xi + \psi)$, содержащий гармоническую зависимость от времени. В частотном представлении это соответствует появлению в спектре пробного поля боковых компонент на частотах $\omega_p \pm 2m\omega$ с целым m .

В приближении

$$E_0^2(\xi) = E_0^2(\xi^*),$$

где ξ^* — значение переменной ξ вблизи максимума интенсивности светового импульса, имеем

$$B(\xi, z) = B(\xi, 0) \exp[-i\Phi_{dc}(\xi, z)] \times \sum_m [J_m(\sigma) + i^m J_m(\sigma \text{tg } \psi)] \exp(-2im\omega\xi), \quad (24)$$

где

$$\sigma = \gamma z n_0 \frac{\alpha' T_2^2 E_0^2(0)}{1 + (2\omega T_2)^2} \cos \psi. \quad (25)$$

Как следует из выражения (24), спектр пробного импульса испытывает уширение, аналогичное уширению, наблюдаемому в условиях фазовой самомодуляции, и описываемое фактором $\exp[-i\Phi_{dc}(\xi, z)]$. Одновременно в спектре пробного поля возникают боковые компоненты на частотах $\omega_p \pm 2m\omega$. Амплитуды этих компонент описываются, согласно выражению (24), функциями Бесселя соответствующего

порядка. С учетом свойств функций Бесселя амплитуды боковых компонент первого порядка, возникающих на частотах $\omega_p \pm 2\omega$, становятся сопоставимыми с амплитудой спектральной компоненты на несущей частоте пробного импульса при выполнении условия

$$\frac{\gamma n_0 \alpha' T_2^2 E_0^2(0)}{1 + (2\omega T_2)^2} L \approx 1,$$

где L — расстояние, проходимое пробным импульсом в возбужденной среде.

В идейном плане рассмотренный метод регистрации сверхбыстрых переходных процессов аналогичен используемой в аттосекундной спектроскопии и метрологии технике кросс-корреляции рентгеновских аттосекундных импульсов со сверхкороткими импульсами лазерного излучения, в основе которой лежит зависимость вида распределения фотоэлектронов по импульсам от абсолютной фазы лазерного поля [10, 11]. По аналогии с методами аттосекундной метрологии оптические методы время-разрешенных измерений могут быть использованы для регистрации сверхбыстрых переходных процессов с временами релаксации, меньшими половины периода светового поля.

6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Анализ взаимодействия сверхкоротких лазерных импульсов с комбинационно-активной средой показывает, что сверхбыстрые переходные процессы приводят к качественному изменению свойств нелинейно-оптического отклика комбинационно-активной среды. Для быстротекущих процессов с характерными временами фазовой релаксации короче периода лазерного поля $T_0 = 2\pi/\omega$ в нелинейно-оптическом отклике среды наряду с сигналом, связанным с комбинационным резонансом, наблюдается высокочастотная составляющая, возникающая за счет модуляции дипольного момента на частоте 2ω . Это явление открывает возможность использования методов нелинейного комбинационного рассеяния для оптической регистрации переходных процессов с субфемтосекундным временным разрешением.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (гранты №№ 06-02-16880-а, 04-02-39002-ГФЕН2004 и 05-02-90566-ННС), Федеральной целевой научно-технической программы РФ (контракт № 02.434.11.2010), ИНТАС (гранты №№ 03-51-5037 и 03-51-5288), а также гранта Американского фонда гражданских исследований и разработок (CRDF, проект № RUP2-2695).

ЛИТЕРАТУРА

1. *Few-Cycle Laser Pulse Generation and Its Applications*, ed. by F. X. Kärtner, Springer, Berlin (2004).
2. J.-C. Diels and W. Rudolph, *Ultrashort Laser Phenomena*, Academic Press, San Diego (1996).
3. А. М. Желтиков, *Сверхкороткие импульсы и методы нелинейной оптики*, Наука, Москва (2006).
4. А. Н. Zewail, *Femtochemistry — Ultrafast Dynamics of the Chemical Bond*, Vols. I and II, World Scientific, New Jersey, Singapore (1994).
5. *Femtochemistry & Femtobiology*, ed. by V. Sundström, World Scientific, Singapore (1997).
6. P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Augé, Ph. Balcou, H. G. Muller, and P. Agostini, *Science* **292**, 1689 (2001).
7. M. Drescher, M. Hentschel, R. Kienberger, G. Tempea, Ch. Spielmann, G. A. Reider, P. B. Corkum, and F. Krausz, *Science* **291**, 1923 (2001).
8. M. Hentschel, R. Kienberger, Ch. Spielmann, G. A. Reider, N. Milosevic, T. Brabec, P. Corkum, U. Heinzmann, M. Drescher, and F. Krausz, *Nature* **414**, 511 (2001).
9. E. Goulielmakis, M. Uiberacker, R. Kienberger, A. Baltuska, V. Yakovlev, A. Scrinzi, Th. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann, M. Drescher, and F. Krausz, *Science* **305**, 1267 (2004).
10. R. Kienberger, M. Hentschel, M. Uiberacker, Ch. Spielmann, M. Kitzler, A. Scrinzi, M. Wieland, Th. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann, M. Drescher, and F. Krausz, *Science* **297**, 1144 (2002).
11. M. Drescher, M. Hentschel, R. Kienberger, M. Uiberacker, V. Yakovlev, A. Scrinzi, Th. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann, and F. Krausz, *Nature* **419**, 803 (2002).
12. A. Baltuska, T. Udem, M. Uiberacker, M. Hentschel, E. Goulielmakis, C. Gohle, R. Holzwarth, V. S. Yakovlev, A. Scrinzi, T. W. Hänsch, and F. Krausz, *Nature* **421**, 611 (2003).
13. P. N. Butcher and D. Cotter, *The Elements of Nonlinear Optics*, Cambridge Univ. Press, Cambridge (1990).
14. G. Placzek, *The Rayleigh and Raman Scattering*, US Dept. Commerce, Washington DC (1934).
15. С. А. Ахманов, Н. И. Коротеев, *Методы нелинейной оптики в спектроскопии рассеяния света*, Наука, Москва (1981).
16. *Femtosecond Coherent Raman Spectroscopy, Special Issue of J. of Raman Spectrosc.*, ed. by W. Kiefer, Vol. 31, № 1/2 (2000).
17. *Nonlinear Raman Spectroscopy, Special Issue of the J. of Raman Spectrosc.*, ed. by P. Radi and A. M. Zheltikov, Vol. 33, № 11/12 (2002).
18. *Nonlinear Raman Spectroscopy, Special Issue of the J. of Raman Spectrosc.*, ed. by P. Radi and A. M. Zheltikov, Vol. 34, № 11/12 (2003).