双光梳光谱学研究进展*

于子蛟 韩海年 魏志义

(中国科学院物理研究所 北京凝聚态物理国家实验室 北京 100190)

2013-12-11收到 † email:hnhan@iphy.ac.cn DOI:10.7693/wl20140705

Progress in dual-comb spectroscopy

YU Zi-Jiao HAN Hai-Nian WEI Zhi-Yi

(Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China)

摘 要 双光梳光谱仪具有超高光谱分辨率、超快采样时间的特性,是研究分子吸收光谱的有力工具。文章介绍了双光梳光谱仪的基本原理以及它与传统傅里叶光谱仪的区别,叙述了几种典型的双光梳光谱仪构成及其用于测量分子吸收光谱的实验结果,并对双光梳光谱学做了详细说明。随着中红外光梳和中红外探测器技术的进一步发展,双光梳光谱学将会在大气污染监测、呼吸气体检测等重要的国计民生领域得到越来越广泛的应用。

关键词 双光梳光谱学,光学频率梳,傅里叶变换光谱学,中红外光谱学

Abstract Dual-comb spectrometers possess the advantages of both high resolution and short measurement times, which make them powerful tools in studying molecular spectroscopy. This article explores the principles of dual-comb spectroscopy and makes a comparison with traditional Fourier transform spectrometers. We then explain in detail both the structures and the molecular absorption results of several typical dual-comb spectrometers. With the development of optical frequency combs and detector techniques in the mid-infrared region, dual-comb spectroscopy is bound to be widely used in such fields as air pollution and breath gas detection in the near future.

Keywords dual-comb spectroscopy, optical frequency combs, Fourier transform spectroscopy, mid-infrared spectroscopy

1 引 言

近十几年来,光学频率梳技术^[1]在频标计量及前沿基础物理研究领域发挥了巨大作用。例如,借助光学频率梳构成光钟的计时构件,将光频标的精度推进到10⁻¹⁸量级^[2];利用光学频率梳测量氢原子1s—2s能级跃迁频率,将里德伯常数的不确定度提高到10⁻¹²量级^[3];将光学频率梳

的载波包络相移锁定技术运用到飞秒放大激光的相位锁定,通过激发气体高次谐波,可以得到软 X 射线波段的孤立单阿秒脉冲^[4]。除了这些传统领域的典型应用,光学频率梳技术近几年在天文类地行星探测、光谱测量(包括 THz)等领域也开始发挥重要作用^[5]。本文将对基于光学频率梳技术的双光梳光谱学研究进展进行评述和展望。

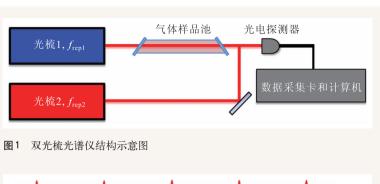
光学频率梳之所以能应用到光谱学研究中, 得益于其频域上整齐分布的一系列光谱谱线,这

^{*}国家自然科学基金(批准号: 61378040)资助项目

些光谱谱线的间距相等,数量众多,光 谱范围大师,是进行光谱分析的天然 的精密"刻线",而且每个"刻线" 宽度都极其窄细,这也为获得高的 光谱分辨率打下了基础[7,8]。用飞秒 光学频率梳作为光源,就可以实现 基于光学频率梳的光谱仪。根据测 量原理的不同, 光学频率梳光谱仪 也可以分为空间色散型和傅里叶变 换型两种,其中单个光学频率梳组 成的光谱仪通常采用光栅分光与光 电探测器结合的空间色散型测量方 法,使用的技术包括虚像共轭相位 阵列(VIPA)^[9]、光学"游标卡尺"^[10] 技术等,这类光谱仪能获得的最大 分辨率可以到百 MHz 量级。2002 年, Schiller 提出了双光梳光谱仪

(dual comb spectrometers)的概念[11]。双光梳光谱仪的测量原理类似于傅里叶变换光谱仪[12],只是双光梳光谱仪采用两个重复频率稍有差异的光学频率梳作为干涉光源,取代了傅里叶光谱仪中的迈克耳孙干涉仪的机械动臂。这一全静态设计,在极大地提高测量系统稳定性的同时,能将光谱分辨率直接提高到几个kHz量级[13],比传统傅里叶光谱仪的分辨率(最高为几十MHz)提高了4个数量级,与此同时,采样时间可以缩短到微秒量级,相当于实时采样,这比传统傅里叶光谱仪的采样时间(秒量级)也提高了6个数量级。

超高分辨率和实时性这两大特性,使双光梳光谱仪具有广泛而重要的应用,例如,在环境监测中对大气污染气体的检测[14],在医学上对呼吸气体的检测[15, 16]和对光学断层摄影成像的检测[17],在原子分子学研究中对冷分子气体的检测[18],在半导体制造中对不纯气体的检测[19],等等。显而易见,能够实时地和高精度地测量出复杂气体分子的成分和组成的双光梳光谱仪,将会极大地推动以上关系到国计民生领域的快速发展。



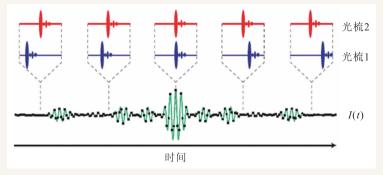


图2 两列重复频率不同的光梳脉冲在时域上的干涉叠加

2 双光梳光谱仪基本原理

双光梳光谱仪利用两个重复频率略有差别的 光频梳拍频得到时域信号。图1是用于分子吸收 光谱测量的双光梳光谱仪的结构示意图。它的基 本工作原理是:由一台光梳发出的探测光,经过 气体样品池后被待测气体部分吸收,使得探测光 会携带样品吸收谱的"指纹"信息。之后,该探 测光与另一束参考光进行拍频,二者的重复频率 会有微小的差别,然后用光电探测器(PD)采集拍 频后的时域干涉图样。将该图样进行傅里叶变换 等数据处理后,便可以在频域中得到待测气体分 子的超精细光谱图。下面将从时域和频域两个方 面对双光梳光谱仪的基本原理进行分析。

双光梳光谱仪需要让两台光学频率梳的重复频率(分别为 f_{repl} 和 f_{rep2})有微小的频差 Δf ,即 f_{rep2} 一 f_{repl} = Δf 。这一重复频率上的微小差别会导致两列锁模脉冲时域周期有 $\frac{\Delta f}{f_{\text{rep1}}f_{\text{rep2}}}$ 的延迟。如图 2 所示,假设在某一时刻,两束光的脉冲峰值恰好完全重合,PD 探测到的光强 I(t)便是一个强度极大

物理・43巻 (2014年)7期 ・ 461 ・

值,由于脉冲周期存在差别,在这之后的两个脉冲会在时间上分开,导致PD探测到的叠加光强相应降低,当两个锁模脉冲在时域内完全错开时,PD测得的便是两束光强平均值的直接相加,这样就形成了干涉图样的背景强度。最后利用计算机对PD记录的干涉图样进行傅里叶变换,得到射频谱,然后将该射频谱按一定比例进行转换,转换到样品的光频吸收波段后,就能推算出待测气体样品的吸收光谱。

在频域上,两个光梳的光谱成分可分别表示为 光梳 1: $nf_{rep} + f_{cep}$,

光梳2:
$$n(f_{rep} + \Delta f) + f_{ceo}$$
,

其中 f_{rep} 为第一个光梳的重复频率, Δf 为两光梳间的重复频率之差,且应满足 $\Delta f \ll f_{rep}$, f_{ceo} 为载波包络相移频率(为方便分析,认为两个光梳的 f_{ceo} 相同)。该表达式说明,在时域上呈周期性的光梳脉冲光对应了频域上一系列的频率"梳齿",而且"梳齿"频率间隔恰好为重复频率的值。上述两列重复频率不同的双光梳脉冲光在频域上的拍频过程如图 3 所示,当探测光光梳 1 通过样品池时,如果待测样品的吸收特性谱线正好与某个"梳齿"对应,则相应的"梳齿"便会被部分吸收,蓝线表示的就是被样品部分吸收后的频谱,红线表示的光梳 2 作为"参考"光梳,与光梳 1

做相干外差拍频。

由于光电探测器的响应时间较长(一般为ns量级),对周期在fs量级的光频段不能直接响应。光梳拍频后的信号恰好位于射频波段,该波段正好在探测器的频率响应范围内,这样探测器就像一个低通滤波器一样,直接滤掉了光频信号,只保留了射频波段的拍频信号(如图2中的I(t)曲线所示)。此时光电探测器测得的时域干涉图样的傅里叶变换谱类似于光频梳谱的"射频频梳"结构(如图3中绿色线所示),其重复频率为Δf,并且低频的"射频梳齿"与高频的"光频梳齿"是一一对应的关系。这样,通过拍频、低通滤波和傅里叶变换三个过程,就可以将待测样品的吸收谱由光谱转换到了射频,实现了频谱信息的下转换。

3 双光梳光谱仪与传统傅里叶变换光 谱仪比较

从本质上看,双光梳光谱仪仍属于傅里叶变换光谱仪的范畴,但是相比于传统的光谱仪,其干涉图样的实现方式有很大区别,这使得双光梳光谱仪在光谱分辨率、采样时间以及光谱信号信噪比方面都具有明显的优势。

光谱分辨率是衡量光谱仪性能的重要参数。简单的光栅光谱仪的分辨率比较低,仅为几十GHz,虚像共轭相位阵列(VIPA)是2007年出现的新的分光技术,它能将光梳的"梳齿"直接分光到二维空间上,其光谱分辨率可以达到亚GHz量级^[9]。

传统的傅里叶变换光谱仪内具有高精度的迈克耳孙干涉仪,其分辨率与动臂的移动距离成反比,即 $\delta \nu \propto \frac{1}{\Delta_{\max}}$ [20]。理论上,传统的傅里叶变换光谱仪的分辨率可以达到无穷小,但实际上,由于光源强度以

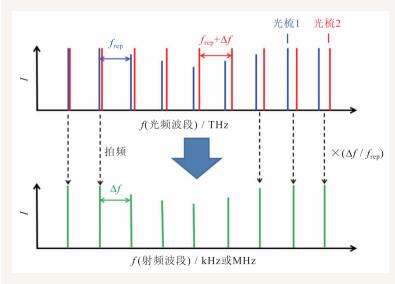


图3 两列重复频率不同的双光梳脉冲光在频域上的拍频过程

及迈克耳孙干涉仪动臂的机械移 动速度均有限, 其分辨率最高也 只能达到几十MHz[12]。

双光梳光谱仪分辨率可以通 过如下公式进行计算:

$$\delta \nu = \frac{\Delta \nu}{t_{\rm M} \cdot f_{\rm rep}} \quad ,$$

其中 $\Delta \nu$ 为单个光梳梳齿的线宽, $t_{\rm M}$ 为采样时间,且 $t_{\rm M} \propto \Delta f^{-1}$ 。由 此我们可以看出,对干双光梳光 谱仪而言, 提高采样时间(即减小

两个光梳的重复频率之差),提高光梳的重复频率 和减小光梳梳齿的线宽,都有利干提高光谱的分 辨率。目前报道的双光梳光谱分辨本领可以达到 kHz的量级[13, 21], 远高于其他的光谱分辨仪器。

传统的傅里叶变换光谱仪中含有迈克耳孙干 涉仪,要求动臂移动才能对光谱进行测量。这种 "动态"光谱仪不仅对机械运动的精密控制提出 了较高的要求, 而且还会大大提高采样时间, 降 低光谱测量效率。一般情况下,采用迈克耳孙干 涉仪测量一次光谱需要几分钟的时间。

双光梳光谱仪的"静态"设计避免了上述 问题,这不仅提高了系统的稳定性,而且也缩 短了采样时间。从理论上讲,虽然双光梳光谱仪 的采样时间为 $t_{M} \propto \Delta f^{-1}$, 但实际上光电探测器 采集到的干涉图样主要集中在两光梳的脉冲重 合前后,因而可以根据实验需要,只采集这一时 间段的干涉图样,这样就可以将采样时间降到 几十µs^[22]。

在拍频信号测量中,背景噪音的强度与待测 频率的倒数成正比,即 $I_{\text{noise}} \propto \frac{1}{f}$,所以在光电探 测器响应能力范围之内,信号的频率越高,越有 利于提高信噪比。在传统的傅里叶变换光谱仪 中, 迈克耳孙干涉仪的动臂移动会引入多普勒效 应,这种效应会使分光镜后的两列脉冲光产生声 频量级的重复频率之差。因此,最后经光电探测 器探测的干涉图样只能处于相应的声频波段。相 比之下,双光梳光谱仪所得到的拍频信号处于射 频波段,频率比声频高3个数量级,所以其信噪

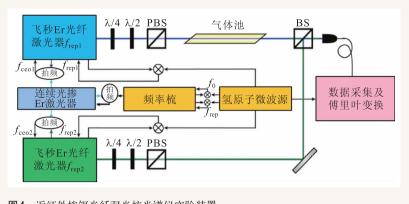


图 4 近红外掺铒光纤双光梳光谱仪实验装置

比是传统的傅里叶变换光谱仪的10³倍。

4 几种双光梳光谱学装置及结果

双光梳光谱学的光谱范围主要集中在近红外 和中红外波段,这一波段是大多数气体分子振动 和转动能级的吸收光谱区,也被称为"分子"指 纹区[22], 因此双光梳光谱学是研究"分子指纹" 的有力工具。由于双光梳光谱仪为"吸收型"的 光谱仪,因此两台光梳的输出波长就直接决定了 光谱仪的测量范围。掺铒或掺镱的光纤光梳的输 出波长在1-2 mm 左右,可以作为近红外双光梳 光谱仪的光源^[23];对于2—6 μm的中红外光梳, 我们既可以考虑采用非线性频率变换技术(差频 或OPO等)来获得[24],也可以采用新型材料的锁 模激光器(例如Cr2+: ZnSe 锁模激光器等)来直接获 取[25, 26]。下面就详细介绍这几种双光梳光谱学的 装置及结果。

4.1 1—2 μm的近红外波段

近红外双光梳光谱仪采用的光源主要是掺铒 或掺镱的光纤光梳,图4是德国马克斯一普朗克 量子光学研究所(MPQ)Hansch教授小组在2008年 报道的近红外掺铒光纤双光梳光谱仪实验装置[13]。 装置中的两台掺铒光纤光梳同时锁定到一台单 频掺铒激光器上,这台单频掺铒激光器再通过 光梳锁定到氢钟参考源上,这样就使两台掺铒 光纤光梳的 fcc 和 fcc 都得到了相对锁定。其中一

台掺铒光纤光梳输出的一列脉冲光经过充满C₂H₂ 的气体池, 然后和另一个掺铒光纤光梳输出的 一列脉冲光进行拍频, 为了保持整个系统电子 同步,数据采集系统的采样频率也同步到了氢 钟上。

图 5 展示了用双光梳光谱仪探测乙炔吸收谱 时的探测和计算过程。光电探测器探测到的两列 光梳的拍频信号(其中一列光梳已经经过气体池被 乙炔部分吸收,见图4)是周期性的脉冲信号(如图 5的"时域图"所示)。从理论上讲,我们至少需 要取出其中一个完整的时域周期,并对其进行傅

里叶变换,才能得到准确的乙炔吸收谱。但幸运 的是, 光电探测器测得的时域干涉图样主要集中 在峰值之后的很短的一段时间内, 如果仅对这段 时域数据进行分析,不但不会过分影响测量精 度,反而可以极大地缩短测量及计算时间。在最 初实验中,只截取了峰值之后42 us内的时域信息 (见图5的"时域图"中放大的部分), 经傅里叶变 换和频率上转换后,在1509—1545 nm的光谱范 围内得到了乙炔的 ν, +ν, 能带吸收光谱, 其分辨 率可以达到12 GHz(图 5 的频域图所示)。该实验 说明: 双光梳光谱仪仅用几十个微秒的采样时

> 间,就可以达到一般气体 多普勒展宽量级的分辨 率;而另一方面,在如此 短的采样时间内,两台锁 模激光器频率 fccc 的漂移 都可以忽略, 所以两台振 荡器的频率fcc。甚至都不 需要进行严格锁定了。相 比之下,要在相同的光谱 测量范围内达到同样的光 谱分辨率, 傅里叶变换光 谱仪的测量时间需要长达 1分钟。

> 当采样时间延长至6s 时,实验结果如图6所 示。图 6(a), (b), (c)分别 展示了不同放大倍率下的 吸收光谱。测量的最低光 谱分辨率可以达到2.3 kHz (如图 6(c)所示), 相比于 之前提高了7个数量级。 而传统的傅里叶变换光谱 仪要达到同样的分辨率, 则需要动臂在6s内移动 65 km(速度接近火箭飞离 地球的"第二宇宙速 度"!),因此这一超高光 谱分辨率对于传统的光谱

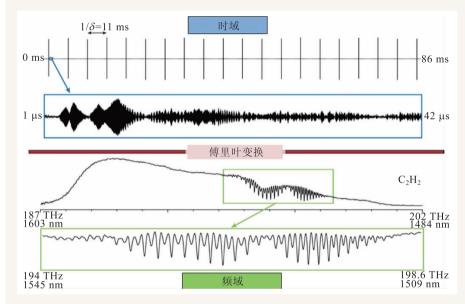


图5 光电探测器的采样时间为42 µs,得到的分辨率为12 GHz的乙炔吸收谱

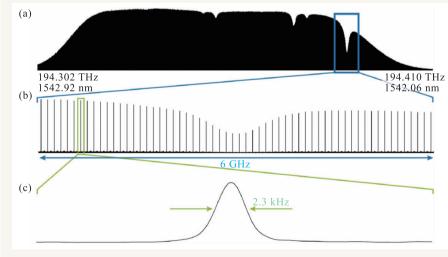


图6 光电探测器的采样时间为6s时得到的乙炔光谱分辨率为2.3kHz

仪是无法想象的。在这种超高分辨率下,光梳的梳齿甚至都可以被清晰分辨,因此实验中测到的乙炔吸收谱被密布的光梳梳齿所填充(如图 6(a)所示)。由于光梳有"频率标尺"的作用,因此可以利用此"频标"对气体吸收谱线的位置进行"自校准",从而能更加准确地确定气体的吸收频率在频域中的位置。

为了进一步提高双光梳光谱 仪信号探测的灵敏度和信噪比,可以将原来"单通"的气体池改成"多通"的共振增强腔^[27]。如图7所示,探测光可以在共振增强腔内多次反射,增加气体吸收长度,从而有效地提高信号的灵敏度。

4.2 2—6 μm的中红外波段

一般情况下,气体在中红外波段的吸收强度会比近红外波段高 1—2 个数量级^[28],因此,与近红外波段相比,中红外双光梳光谱仪会有更高的灵敏度。产生中红外光梳的一种

方法是采用差频(DFG)的技术。2003年,在第一个中红外双光梳光谱仪验证性实验中,Fritz Keilmann就利用自差频的方法,获得了中红外的光梳光源 $^{[16,29]}$ 。如图 8 所示,两台钛宝石激光器的重复频率之差为2 Hz,发出的近红外脉冲激光分别聚焦到两块 GaSe 晶体上,利用 GaSe 的二阶非线性效应产生中红外波段的差频光,两个差频光都具有 f_{eeo} =0 的特性。之后,用 HgCdTe 中红外探测器探测到频率为 $n\Delta f_{reo}$ 的拍频信号。

在上述实验的探测光光路中放入和放出吸收 气体后,分别进行测量,他们最终得到了图9所示

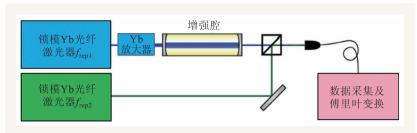


图7 含有共振增强腔的双光梳光谱仪

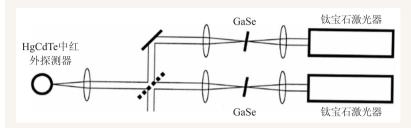


图8 GaSe差频的中红外双光梳光谱仪结构示意图

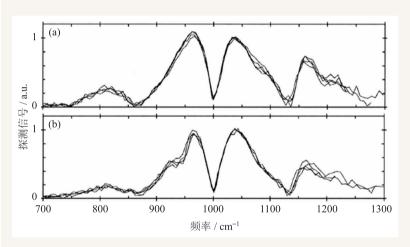


图9 GaSe 差频的中红外双光梳光谱仪测得的吸收光谱图 (a)未充人吸收气体的光谱, (b)充人吸收气体后的光谱

的光谱对比图。可以看到,该气体在930—960 cm⁻¹ 的光谱范围内有明显的吸收现象,其光谱分辨率可以达到10 kHz,但是由于两台钛宝石的重复频率不是特别稳定,所以得到的光谱会有一定的抖动,该光谱图是将多幅光谱图叠放在一起得到的结果。

差频双光梳的另一实验案例如图 10 所示,该中红外光谱仪是在 2011 年由美国国家标准技术研究院(NIST)的 N.R.Newbury 小组搭建的^[30]。两台近红外飞秒激光发出的脉冲光中心波长为 1.56 μm,重频之差为 1.5 kHz。经过周期性铌酸钾晶体(PPLN)

始後 · 43巻 (2014年) 7期 · 465 ·

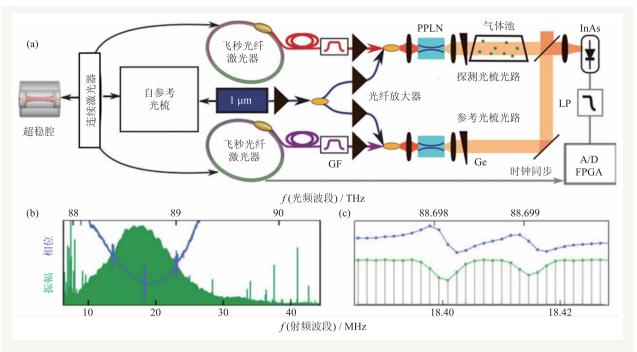


图10 周期性铌酸锂晶体自差频双光梳光谱仪

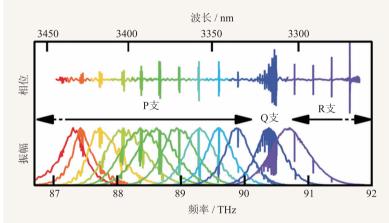


图11 甲烷的P支、Q支和部分R支的归一化的强度和相位光谱

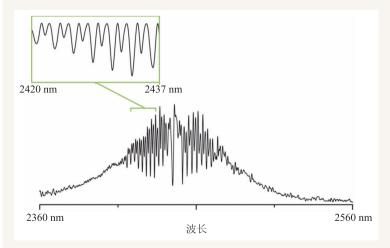


图 12 乙炔的 $\nu_1 + \nu_5^1$ 能带的吸收光谱(Cr^{2+} : ZnSe 锁模激光器双光梳采样时间为 10 μ s, 分辨率为 12 GHz)

差频后,得到中心波长为3.4 μm、带宽 为1 THz的中红外光梳。

图 11 是甲烷气体在中心波长为 3.4 µm、频率范围在 4.5 THz 内的 12 条复杂的双光梳吸收谱线,它们位于甲烷谱的 P 支、Q 支和一部分 R 支处 (详见参考文献[30]),其光谱分辨率 为 10 kHz,信噪比高达 3500。从光谱图中可以看出,除了可探测强度信息,双光梳光谱仪还可以探测相应波长的相位信息^[21, 23],而传统的傅里叶变换光谱仪却只能测量样品的强度吸收谱。

另外, Cr²⁺: ZnSe锁模激光器^[25, 26] 是比较新型的中红外激光器, 它已 经被应用到了中红外双光梳光谱 仪中。

MPQ 的 Hansch 小组搭建了以 Cr²⁺: ZnSe锁模激光器为光源的双光 梳光谱仪^[31], 其中两台 Cr²⁺: ZnSe锁模激光器发出脉冲光的中心波长在 2.4 μm。该装置在 10 μs 的采样时间 内也可以达到 12 GHz 的分辨率。测

得的乙炔 $\nu_1 + \nu_s^1$ 能带吸收光谱(如图 12 所示)覆盖了从2370 nm到2525 nm的光谱范围,绿框中显示的是2430 nm附近属于R支的吸收光谱细节。由于该光谱仪的两台光源的频率f。并没有锁定,所以并不是严格意义上的光梳,只适合采样时间较短的光谱分析,长时间的采样会有很大的不稳定性,从而严重影响光谱的精度和信噪比,这方面还需要进一步改进。

除以上两种产生中红外光源的方法之外,光 参量振荡(OPO)的方法在中红外波段也可以产生 光学频率梳,并且其中心波长可以调谐^[24],也可 以作为中红外波段双光梳的光源。

参考文献

- [1] Diddams S A. J. Opt. Soc. Am. B, 2010, 27:51
- [2] Chou C W, Hume D B, Koelemeij J C et al. Phys. Rev. Lett., 2010, 104:070802
- [3] Fischer M et al. Phys. Rev. Lett., 2004, 92:230802
- [4] Zhan M J, Ye P et al. Chin. Phys. Lett., 2013, 30:093201
- [5] 韩海年,魏志义,赵刚. 物理,2012,41(4):249
- [6] Mandon J, Guelachvili G et al. Opt. Lett., 2007, 32:1677
- [7] Marian A, Stowe M C et al. Science, 2004, 306: 2063
- [8] Gerginov V, Tanner C E et al. Opt. Lett., 2005, 30: 1734
- [9] Diddams S A et al. Nature, 2007, 445:627
- [10] Gohle C, Stein B, Schliesser A *et al.* Phys. Rev. Lett., 2007, 99: 263902
- [11] Schiller S. Opt. Lett., 2002, 27:766
- [12] Mandon J, Guelachvili G, Picque N. Nat. Photon., 2009, 3:99
- [13] Jacquet P, Mandon J, Bernhardt B *et al.* Frequency Comb Fourier Transform Spectroscopy with kHz Optical Resolution. In: Fourier Transform Spectroscopy. Washington, DC: Optical Society of America, 2009. paper FMB2, 3 pages
- [14] Spuler S, Linne M, Sappey A et al. Appl. Opt., 2000, 39:2480
- [15] Wilson E L, Georgieva E M, Heaps W S. Meas. Sci. Technol., 2007, 18:1495
- [16] Schliesser A, Brehm M, Keilmann F. Opt. Exp., 2005, 13: 9029

5 结束语

自从双光梳光谱学的概念被提出以来,相关的 科研工作者在近红外和中红外波段研究领域做了大 量的验证性实验,红外吸收谱是表征气体分子特性 的重要"分子指纹",所以在这一波段对双光梳的 研究探索具有十分重要的意义。与含有迈克耳孙 干涉仪的传统傅里叶变换光谱仪相比,双光梳光 谱仪在光谱分辨率、采样时间以及信噪比方面都 有更优越的性能。伴随着光学频率梳系统造价的 降低以及双光梳理论和实验研究的进展,相信在 不久的将来,双光梳光谱仪会有更加广泛的应用。

- [17] Kray S, Spoler F et al. Opt. Lett., 2008, 33:2092
- [18] Todd M W, Provencal R A, Owano T G et al. Appl. Phys. B, 2002,75:367
- [19] Lehman S Y, Bertness K A, Hodges J T. J. Cryst. Growth, 2003, 250;262
- [20] Griffths PR, Hanseth JA. Fourier Transformation Infrared Spectroscopy. New Jersey: A John Wiley & Sons, 2007. 28
- [21] Coddington I, Swann W C, Newbury N R. Phys. Rev. Lett., 2008,100:013902
- [22] Schliesser A, Picque N, Hansch T W. Nat. Photon., 2012, 6:440
- [23] Zolot A M, Giorgetta F R et al. J. Quant. Spectrosc. R. T., 2013, 118:26
- [24] Adler F, Maslowski P et al. Opt. Exp., 2010, 18:21861
- [25] Picque N, Gueye F et al. Opt. Lett., 2005, 30:3410
- [26] Sorokin E, Sorokina I T, Mandon J et al. Opt. Exp., 2007, 15: 16540
- [27] Bernhardt B, Ozawa A et al. Nat. Photon., 2010, 4:55
- [28] Adler F, Thorpe M J, Cossel K C et al. Ann. Rev. Anal. Chem., 2010, 3:175
- [29] Keilmann F. Opt. Lett., 2004, 29:1542
- [30] Baumann E, Giorgetta F R et al. Phys. Rev. A, 2011, 84:062513
- [31] Bernhardt B, Sorokin E, Jacquet P et al. Appl. Phys. B, 2010, 100:3