

ІМПУЛЬСНО-СТИМУЛЬОВАНЕ ВИМУШЕНЕ КОМБІНАЦІЙНЕ РОЗСІЮВАННЯ (ІС-ВКР)

Добряков В. Л., к.ф.-м.н.

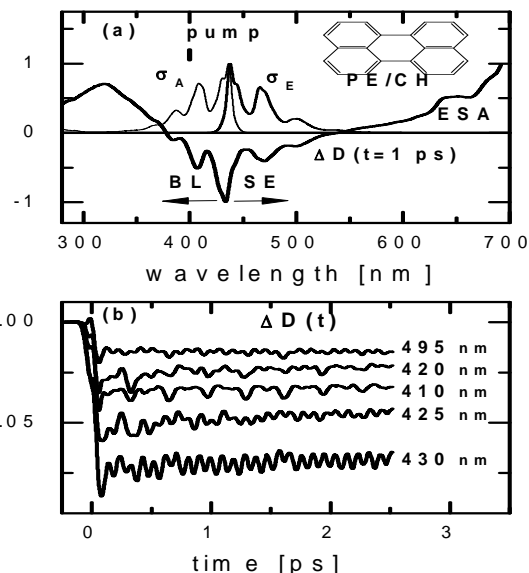
Нелінійні властивості рідин та газів останнім часом інтенсивно вивчаються.¹ Це обумовлено двома обставинами: по-перше, високою однорідністю і високою променевою стійкістю таких середовищ, і, по-друге, значним підсиленням їх нелінійних властивостей при наявності оптичних резонансів. Їх домінуючий нелінійний відгук визначається членами третього порядку в розкладі нелінійної сприйнятливості. На відміну від кристалів просторовий розмір цих середовищ фактично нічим не обмежений. Отже, в практичних застосуваннях можна використовувати більші довжини взаємодії, які дозволяють уникати високих інтенсивностей випромінювання, необхідних при роботі з відгуками третього порядку. Крім того, на рідини та гази не розповсюджуються ті обмеження щодо інтенсивності, які мають місце для твердих тіл внаслідок їх оптичного руйнування. Розглянемо середовище, в якому відсутній центр інверсії і яке опромінюється потужним лазерним імпульсом накачування (50 fs). Виникаючий при цьому нелінійний відгук середовища зондується з затримкою за часом слабким пробним сигналом і реєструється спектрографом (2-3). За допомогою приладу отримується спектр результуючого сигналу, який залежить від часу затримки і по суті є Фур'є-образом нелінійного відгуку середовища третього порядку (1):

$$P^{(3)}(\mathbf{r}, t) = \int_0^{\infty} dt_3 \int_0^{\infty} dt_2 \int_0^{\infty} dt_1 S^{(3)}(t_3, t_2, t_1) E(\mathbf{r}, t - t_3) E(\mathbf{r}, t - t_3 - t_2) E(\mathbf{r}, t - t_3 - t_2 - t_1) \quad (1)$$

результуючий сигнал знаходиться за формулою:

$$\Delta D(\omega, t_d) = -2\omega \operatorname{Im} \left(P^{(3)}(\omega, t_d) \right) \quad (2)$$

Рис. 1. (а) Нелінійний спектр поглинання при $t_d = 1$ (пс) та спектри поглинання σ_A і емісії σ_E молекули перелена (б) Часова поведінка результуючого сигналу для різних довжин хвиль зондування.⁴



Далі розглянемо модельну 3-х електронну систему (Рис.3), яка містить по два молекулярні коливання щодо кожного з електронних рівнів:

Результуючий сигнал $\Delta D(\omega, t_d)$ знаходимо за допомогою теорії збурень (1) Для наочності, нехай при кожному електронному рівні є лише один – коливальний. Тоді, з точністю до перестановок, існують лише наступні діаграми:

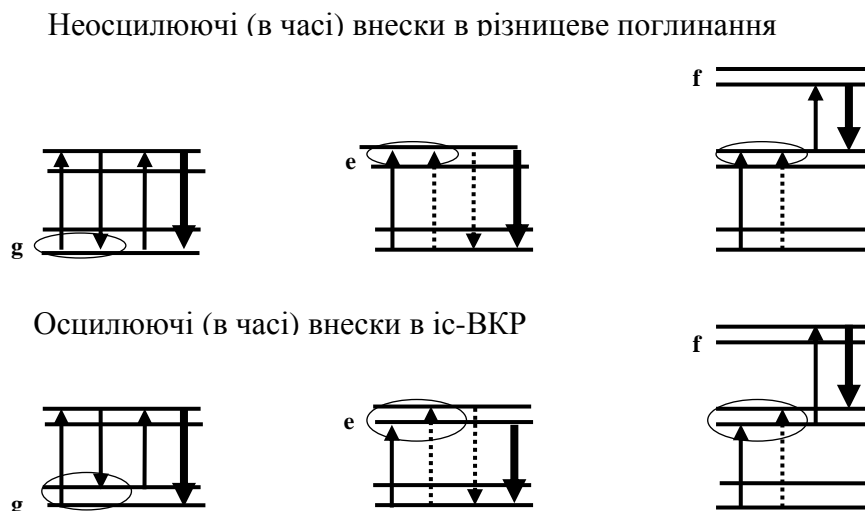
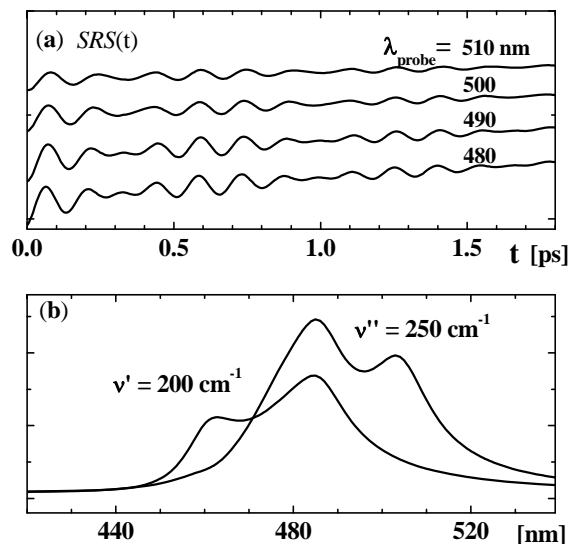


Рис. 2. Основні діаграми які, дають внески в нелінійний відгук.

Перші три діаграми по суті є неосцилюючими (в часі) внесками в нелінійне різницеве поглинання, а три інші - осцилюючі (в часі) - саме і є внесками в іс-ВКР. Очевидно, що для модельної системи таких діаграм буде значно більше.

Результати теоретичних розрахунків подано у вигляді двох останніх графіків . На першому з них –теоретично розрахована часова поведінка іс-ВКР сигналу, а на другому - амплітуда коливань, збуджених фемтосекундним лазерним імпульсом.

Таким чином: а) - вдалося проаналізувати внесок іс-ВКР в різницевих спектрах, що спостерігаються методом «збудження - зондування» 3



фемтосекундною часовою роздільною здатністю; б) -розрахован внесок іс-ВКР для модельної 3-х електронної системи, що містить два молекулярних коливання в кожному з електронних рівнів.

На сам кінець зауважимо, що планується розрахунок внеска іс-ВКР для реальних молекулярних систем і порівняння з експериментом (Humboldt University, Berlin).

Використані джерела інформації

1. S. Mukamel, *Principles of Nonlinear Optical Spectroscopy* (Oxford University Press, New York, 1995).
2. S.A. Kovalenko, A.L. Dobryakov, J. Ruthmann, N.P. Ernsting, *Phys. Rev. A* 59, 2369 (1999).
3. A. L. Dobryakov, S. A. Kovalenko, A. Weigel, J. L. Perez-Lustres, J. Lange, A. Müller, N. P. Ernsting, *Rev. Sci. Instrum.* 81, 113106 (2010).
4. A. L. Dobryakov, N. P. Ernsting, *J. Chem- Phys.* 129, 184504 (2008).