

07

Спектроскопия вырожденного четырехволнового смешения, возбуждаемого ультракороткими лазерными импульсами

© А.О. Морозов, Ю.А. Голиков, И.Е. Мазец

С.-Петербургский государственный университет им. М.В. Ломоносова
Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, С.-Петербург

Поступило в Редакцию 17 декабря 1996 г.

В работе предложен новый метод спектроскопической диагностики продуктов горения и взрыва, позволяющий исследовать физические процессы, протекающие на коротких временах в горячих и плотных молекулярных газах.

Физика процессов при вырожденном четырехволновом смешении (DFWM) в нелинейных средах активно развивается в последние годы в связи с потенциальными диагностическими возможностями, заложенными в таком взаимодействии. Эти возможности обусловлены резонансным характером взаимодействия, что обеспечивает высокую чувствительность и избирательность измерений, а также обращенным видом сигнальной волны, что открывает возможность получения изображений объектов и пространственных измерений без сканирования [1,2]. Эти достоинства DFWM в ряде случаев позволяют этому методу успешно конкурировать и превосходить такие мощные спектроскопические методы, как когерентное антистоксовское рассеяние (CARS) и лазерно-индуцированная флуоресценция (LIF), обеспечивая продвижение измерений в область высоких давлений и температур [2]. В то же время полезная информация об объекте при DFWM извлекается из спектра сигнальной волны, получаемого обычно при сканировании узкой линии перестраиваемого лазера. Это обстоятельство затрудняет исследование сильно нестационарных объектов, например процессов горения и взрыва при сравнительно высоких давлениях. Для записи спектров сигнальной волны за один лазерный импульс в работах [3,4] предложено использовать "широкополосный безмодовый лазер", точнее импульс излучения,

усиленного в однородно уширенной инверсной среде. Однако распределение амплитуд и фаз в спектре одиночного импульса такого излучения носит случайный, не воспроизводимый от импульса к импульсу характер, что затрудняет получение и интерпретацию результатов.

В данной работе мы предполагаем новый метод спектроскопического исследования продуктов горения и взрыва, основанный на использовании для генерации спектра сигнальной волны при DFWM ультракоротких лазерных импульсов пикосекундной и фемтосекундной длительности. Такие импульсы по своей природе имеют регулярное распределение амплитуд и фаз в спектре, что упрощает теоретическую модель и позволяет получать "моментальные снимки" распределения населенностей по колебательно-вращательным состояниям молекул в выбранных точках внутри образца (например, пламени горелки). При этом надежные данные обеспечиваются уже отдельными измерениями за один импульс лазера, без усреднения по статистическому ансамблю реализаций полученных спектров. Другим достоинством при использовании таких импульсов при DFWM может стать разделение вкладов в сигнальную волну первичных и вторичных решеток и связанная с этим возможность исследования релаксационных процессов, процессов переноса энергии, молекулярной кинетики и др. Это достоинство обусловлено тем, что длительности пикосекундных и тем более фемтосекундных импульсов значительно меньше времени фазовой и энергетической релаксации в газах даже при высоких давлениях и температурах.

Эксперименты по четырехволновому обращению волнового фронта и DFWM в пикосекундной области проводились ранее только для конденсированных сред [5–7] и ограничивались наблюдением обращенной сигнальной волны и измерением ее энергетических и временных параметров. Измерений и расчетов, касающихся спектральных особенностей взаимодействия ультракоротких лазерных импульсов с молекулярными газами при DFWM, не проводилось. Однако решение именно этой проблемы позволит достичь значительного прогресса в спектроскопической диагностике пламен и понимании физической природы протекающих в них быстрых неравновесных кинетических процессов.

Наиболее прост для теоретического анализа случай ненасыщенных переходов, когда произведение максимальной частоты Раби, характеризующей взаимодействие молекулы с лазерным импульсом, на длительность импульса много меньше единицы, т. е. когда применима теория возмущений. Кроме того, на малых временах можно пренебречь ре-

лаксационными процессами, т. е. фактически пользоваться формализмом векторов состояния.

Обозначим цифрами 1 и 2 импульсы накачки, 3 — пробный импульс, инициирующий появление сигнала DFWM (4-й волны). Соотношение между волновыми векторами волн имеет, как известно [1], вид

$$\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_3 = \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_4. \quad (1)$$

Мы предполагаем, что волновые вектора лежат в одной плоскости и свет поляризован линейно, в направлении, перпендикулярном данной плоскости. Наиболее просто интерпретируемые спектры получаются, если импульсы 1, 2 и 3 не перекрываются во времени, а действуют последовательно. Все три импульса получены из одного исходного с помощью светоделителей, а необходимая задержка во времени в пикосекундной области обеспечивается за счет небольших разностей хода. Разумеется, интервалы между импульсами должны быть малыми по сравнению с временами T_1 и T_2 релаксации среды.

В качестве примера мы рассчитали относительные интенсивности $I_j^{(Q)}$ линий Q -ветви колебательной полосы перехода между основным $^1\Sigma^+$ и возбужденным $^1\Pi$ состояниями гетероядерной двухатомной молекулы

$$I_j^{(Q)} = \text{const} \cdot w_j \cdot \frac{1}{[J(J+1)]^4} \cdot \sum_{M=1}^J M^8 \cdot S_1(\omega_j) S_2(\omega_j) S_3(\omega_j), \quad (2)$$

где $S_i(\omega_j)$ — спектральная интенсивность i -й волны на частоте ω_j данного перехода, J — вращательное квантовое число (одинаковое для начального и конечного состояний), w_j — населенность зеемановских подуровней начального состояния (среда подразумевается изотропной, а w_j — не зависящей от проекций момента). Выражения для дипольных моментов переходов взяты из [8]. При выводе (2) подразумевалось, что ширина спектра $S_i(\omega_j)$ много меньше колебательной частоты молекулы, что дает возможность пренебречь интерференцией каналов возбуждения DFWM с разными промежуточными колебательными состояниями.

Следует подчеркнуть, что в (2) все значения w_j относятся к одному и тому же моменту времени, когда с помощью одного ультракороткого импульса делается "моментальный снимок" состояния среды. В этом отличие предлагаемого метода от метода медленного сканирования

частоты лазера с узким спектром. С другой стороны, в настоящее время существуют методики, обеспечивающие практически 100%-ную воспроизводимость спектров ультракороткого импульса [9]. Следовательно, в нашем случае мгновенные значения населенностей вращательных состояний могут быть в принципе найдены по результатам отдельного измерения, соответствующего одному лазерному импульсу.

Авторы выражают признательность проф. Ю.А. Толмачеву и проф. Т. Негеру за полезные обсуждения.

Список литературы

- [1] *Eicher H.J., Gunter P., Pohe D.W.* // In: Laser-Induced Dynamic Gratings. Springer Series in Optical Sciences. Vol. 50. Berlin, Springer, 1986.
- [2] *Farow R.L., Rakestraw D.J.* // Science. 1992. V. 256. P. 1894–1900.
- [3] *Meacher D.R., Smith P.G.R., Ewart P., Cooper J.* // Phys. Rev. A. 1992. V. 46. N 5. P. 2718–2725.
- [4] *Smith P.G.R., Ewart P.* // Phys. Rev. A. 1996. V. 54. N 3. P. 2347–2355.
- [5] *Ferrier J.L., Wu Z., Nguyen Phu X., Rivoire G.* // Opt. Commun. 1982. V. 41. N 3. P. 207–212.
- [6] *Vorobiev N.S., Ruddock I.S., Illingworth R.* // Opt. Commun. 1982. V. 41. N 3. P. 216–218.
- [7] *Coic H., Roblin M.L., Gires F., Grousson R.* // J. Opt. Soc. Am. B. 1994. V. 11. N 11. P. 2232–2240.
- [8] *Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М.* Квантовая механика. М.: Наука, 1989. 767 с.
- [9] *Choi K.J., Topp M.R.* // In: Proc. 2nd Int. Conf. on Picosecond Phenomena. Berlin, Springer, 1980. P. 12–16.