

## СПЕКТРОСКОПИЯ ДВУХФОТОННЫХ ПЕРЕХОДОВ В $C_2H_4$ ПО СХЕМЕ ВЫРОЖДЕННОГО ЧЕТЫРЕХФОТОННОГО ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ

*В.Н.Варакин, В.М.Гордиенко*

Методом вырожденного четырехфотонного взаимодействия (ВЧВ) в амплитудно-поляризационном варианте исследованы двухфотонные резонансы с обертонами мод  $\nu_7$  и  $\nu_8$   $C_2H_4$ . Дана интерпретация спектра многофотонного поглощения (МФП) на линиях  $P$ -ветви полосы  $(00^{\circ}1 - 10^{\circ}0)$   $CO_2$ -лазера.

1. В последнее время значение работ по спектроскопии обертонов молекулярных колебаний заметно возросло в связи с исследованиями по многофотонному возбуждению молекул<sup>1</sup>.

Традиционные спектроскопические методы оказываются не эффективными, так как интенсивности соответствующих переходов на обертона, разрешенных вследствие ангармонизма малы.

Предлагаемый метод активной спектроскопии основан на вырожденном четырехфотонном взаимодействии и обладает тем преимуществом, что его нелинейная восприимчивость  $\chi^{(3)}(\omega_c; \omega, \omega, -\omega)$  связана только с разрешенными в гармоническом приближении колебательными переходами, что обеспечивает высокий уровень сигнала.

2. В процессе ВЧВ происходит смешение трех волн (частоты  $\omega$ ), причем если две из них (накачки) направлены навстречу, то осуществляется синхронный режим генерации сигнала как обращение волнового фронта третьей (пробной) волны.

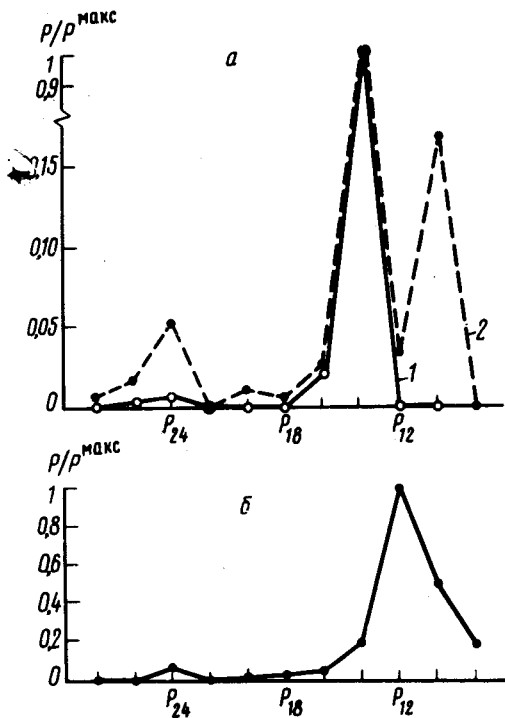
ВЧВ можно использовать для спектроскопии ИК-активных колебаний молекул и их кубических обертонов, так как кубическая восприимчивость этого процесса имеет резонансы с этими колебательными уровнями. При этом природа резонанса (одно- или двухфотонная) определяется из сравнения спектров ВЧВ, измеренных при различных углах между поляризациями волн накачки и пробной.

Возможность такого подхода обусловлена тем, что для ВЧВ, где не происходит преобразования частоты ( $\omega_c = \omega$ ), наряду с обычным для параметрических процессов механизмом генерации сигнальной волны, связанным с фазированием резонансных колебаний молекул, существует специфический механизм<sup>2</sup>. Он основан на формировании решетки показателя преломления за счет изменения разности населенностей однофотонного перехода в поле стоячей волны, образованной при интерференции волн накачки  $E_n$  и пробной  $E_{пр}$ . Рассеяние на этой решетке другой волны накачки ведет к появлению сигнальной волны, распространяющейся в направлении противоположном пробной.

При скрещивании поляризаций  $E_n$  и  $E_{пр}$  перестают интерферировать, исключая вклад в сигнал этого механизма. Поэтому появление новых пиков при переходе от спектра ВЧВ с ортогональными поляризациями волн накачки и пробной ( $P_{\perp}(\omega)$ ) к спектру с совпадающими поляризациями этих волн ( $P_{\parallel}(\omega)$ ) обусловлено однофотонными резонансами, а все остальные максимумы зависимостей  $P_{\perp}(\omega)$ ,  $P_{\parallel}(\omega)$  связаны с двухфотонными переходами.

3. Экспериментальные зависимости мощности ВЧВ в  $C_2H_4$ , измеренные на линиях  $P$ -ветви полосы  $(00^{\circ}1 - 10^{\circ}0)$   $CO_2$ -лазера, приведены на рис. а. Они получены в кювете длиной 2 см при встречных волнах накачки и малом ( $3,5^{\circ}$ ) угле между ними и пробной волной. Сигнал ВЧВ регистрировался охлаждаемым фотосопротивлением Ge – Au на запоминающем осциллографе. Для выделения сигнальной волны из фона засветок на той же частоте использовались ее свойства пространственной когерентности, а от волн накачки – различие в направлениях распространения.

4. Из сравнения экспериментальных зависимостей  $P_{\perp}(\omega)$  и  $P_{\parallel}(\omega)$  следует, что на линиях  $P_{14}$ ,  $P_{16}$  и  $P_{24}$ ,  $P_{26}$  локализованы двухфотонные резонансы с  $2\nu_7$  и  $2\nu_8$ , ближе к  $P_{14}$  и  $P_{24}$  соответственно, а на  $P_{10}$ ,  $P_{12}$  – однофотонные резонансы.



а – Частотные зависимости мощностей ВЧВ в  $C_2H_4$  при ортогональных (1) и совпадающих (2) поляризациях волн накачки и пробной. Давления газа 20 и 30 Тор соответственно; б – частотная зависимость мощности ТГ при давлении  $C_2H_4$  40 Тор

5. Данную интерпретацию спектров подтверждают исследования зависимостей отношения  $P_{\perp}/P_{\parallel}$  от давлений  $C_2H_4$  или буферного газа (Ar) во вне- и внутрирезонаторном вариантах процесса. Они показали различный характер насыщения  $P_{\perp}$  и  $P_{\parallel}$  в сильном поле. Это связано с тем, что сигнал  $P_{\perp}$  определяется двухфотонными, а  $P_{\parallel}$  – также и однофотонными резонансами.

Представленный на рис. а спектр ВЧВ при взаимно ортогональных поляризациях волн накачки и пробной получен при помещении кюветы с  $C_2H_4$  в резонатор ТЕА  $CO_2$ -лазера, что обеспечило условия насыщения однофотонных переходов на изучаемых частотах.

Контрольный эксперимент в  $SF_6$ , где согласно <sup>2</sup>, на  $P_{16}$  достигается двухфотонный резонанс, показал что в реализованных в настоящей работе условиях спектр сигнала  $P_{\perp}$  отражает двухфотонные переходы.

6. Значительный интерес представляет использование ВЧВ для идентификации трехфотонных резонансов в спектре генерации третьей гармоники. В  $C_2H_4$  зарегистрирована третья гармоники (ТГ)  $CO_2$ -лазера (рис. б), обусловленная резонансами с обертонами мод  $\nu_7$  и  $\nu_8$  <sup>3</sup>. Максимум ТГ на  $P_{12}$ , где отсутствует сигнал  $P_{\perp}$  ВЧВ, а значит, нет двухфотонных резонансов, можно объяснить как результат трехфотонного резонанса с  $3\nu_7$ .

Полученная с помощью ВЧВ информация о частотах обертонов позволяет дать интерпретацию спектра многофотонного поглощения в  $C_2H_4$ . Максимумы МФП <sup>1</sup> обусловлены двухфотонными ( $P_{14}$ ,  $P_{26}$ ) и трехфотонным ( $P_{10}$ ) резонансами с  $2\nu_7$ ,  $2\nu_8$  и  $3\nu_7$  соответственно. Отметим, что на этих линиях наблюдается также заметное однофотонное поглощение, что благоприятно для набора молекулой энергии и снижает эффективность параметрических процессов. Поэтому существует некоторое различие частот максимумов в спектрах МФП и ТГ. Трехфотонная природа резонанса на  $P_{12}$ ,  $P_{10}$  объясняет тенденцию смещения к  $P_{10}$  максимума МФП при повышении интенсивности возбуждающего поля.

7. В заключение подчеркнем, что зависимость кубической восприимчивости ВЧВ лишь от дипольных моментов разрешенных в гармоническом приближении переходов определяет возможность применения ВЧВ для спектроскопии слабоангармонических колебаний, продемонстрированное в настоящей работе на примере моды  $\nu_7$   $C_2H_4$ . Эта особенность обус-

ловливает также большую величину  $\chi^{(3)}$  и перспективность этого метода с непрерывными лазерами <sup>4</sup>.

Авторы признательны С.А.Ахмакову за внимание к работе и полезные обсуждения.

#### Литература

1. Баграташвили В.Н., Летохов В.С., Макаров А.А., Рябов Е.А. Многофотонные процессы в молекулах в инфракрасном лазерном поле, 1980, М.: ВИНТИ.
2. Steel D.G., Lind R.C., Lam J.F. Phys. Rev., 1981, A23, 2513.
3. Варакин В.Н., Гордиенко В.М. Квантовая электроника, 1981, 8, 1593.
4. Aubourg P., Bettini J.P., Agrawal G.P., Cottin P., Guerin D., Mennier O., Boulnoir J.L. Opt. Lett., 1981, 6, 383.

Московский  
государственный университет  
им. М.В.Ломоносов

Поступила в редакцию  
17 января 1983 г.