

Streszczenie

W niniejszej dysertacji zostały przedstawione wyniki badań nad przejściami między stanami wibracyjnymi i wibracyjno-elektronowymi (wibronowymi) w materii skondensowanej, wywołanymi oddziaływaniem z ultrakrótkimi impulsami światła. Procesem nierozdzielnie towarzyszącym tym oddziaływaniom jest Impulsowe Wymuszone Rozpraszanie Ramana. W celu zilustrowania różnych aspektów tego procesu zaprojektowano i przeprowadzono dwa eksperymenty oraz zaprezentowano dyskusję ich wyników. Pierwszy eksperyment dotyczy generacji superkontinuum w kryształach diamentu, na który pada ciąg impulsów laserowych o dużej energii. Wiadomo, że głównymi procesami odpowiedzialnymi za to zjawisko w kryształach są samomodulacja fazy, samostromienie impulsu oraz oddziaływanie z ładunkami powstałymi w wyniku fotojonizacji. Celem pierwszego eksperymentu jest zbadanie wpływu Impulsowego Wymuszonego Rozpraszania Ramana na ewolucję impulsu w czasie i przestrzeni w trakcie propagacji w silnie nieliniowym kryształ. Zaobserwowano, że wpływ drgań sieci krystalicznej na widmo impulsu jest niewielki, niemniej występuje i silnie zależy od energii impulsu. W widmie impulsu pojawia się pik odległy od centralnej częstości impulsu o częstość równą częstości drgań własnych diamentu. Interpretacja wyników eksperymentalnych jest wsparta wynikami symulacji numerycznej. Rozwiązano trójwymiarowe „nieliniowe równanie obwiedni” przy pomocy Fourierowskiej metody małych kroków. Model uwzględnia efekty dyspersji współczynnika załamania, dyfrakcję, samomodulację oraz jej nasycenie, samostromienie impulsu, fotojonizację, interakcję z wolnymi nośnikami oraz wymuszone rozpraszanie Ramana. Wyniki modelowania zgadzają się dobrze z wynikami pomiarów.

Drugi eksperyment dotyczył badania przejść wibronowych w cząsteczce trans- β -apo-8'-karotenu przy pomocy czasowo-rozdzielczego, femtosekundowego, wymuszonego rozpraszania Ramana (CR-FWRR). Do tego celu zbudowano układ pomiarowy o rozdzielczości czasowej 100 fs i rozdzielczości spektralnej około 25 cm^{-1} . Cząsteczka trans- β -apo-8'-karotenu była wzbudzana do elektronowego stanu S_2 a jej relaksację poprzez stan S_1 do stanu podstawowego obserwowano rejestrując widma FWRR symetrycznych, rozciągających drgań wiązania C=C. Linia ramanowska odpowiadająca drganiom cząsteczki, będącej we wzbudzonym stanie elektronowym S_2 , zanika w czasie 120 fs po wzbudzeniu, następnie pojawia się linia długo żyjącego stanu S_1 . Zaobserwowano, że podczas pierwszych 500 fs linia ta jest ujemna, co zinterpretowano jako przejaw przejściowej inwersji obsadzeń stanów wibracyjnych w elektronowym stanie S_1 . Następnie linia staje się dodatnia i dalej zanika w czasie równym czasowi życia poziomu S_1 . Jednocześnie częstość linii wzrasta. Aby opisać dynamikę tego procesu stworzono model teoretyczny, przy czym cząsteczkę opisano w obrazie kwantowym za pomocą równań Heisenberga-Langevina, używając formalizmu operatorów rzutowych. Wyniki doświadczenia przeanalizowano poprzez porównanie z wynikami obliczeń teoretycznych. Pokazano, że przewidywania modeli numerycznych są w zgodności z wynikami pomiarów. Wykazano, że do wyjaśnienia wyników doświadczalnych nie było potrzebne wprowadzenie dodatkowych poziomów elektronowych (innych niż S_0 , S_1 i S_2). Udowodniono, że istnienie podpoziomów wibracyjnych stanu elektronowego S_1 jest konieczne do wyjaśnienia redystrybucji energii ze wzbudzonego stanu S_2 .