

## **Netiesinės spektroskopijos modeliavimo metodų vystymas nerezonansinėms sąlygom**

Prof. dr. Darius Abramavičius

Daugiamatė impulsinė lazerinė netiesinė spektroskopija per paskutinius 20 metų užėmė svarbią vietą tarp visų spektroskopinių metodų. Tai yra vienas pagrindinių metodų, įgalinantis registruoti ultrasparčius femtosekundinius dinامينius procesus kvantinės atominės dujos, molekulinuose tirpaluose arba kietajame kūne. Idealiomis sąlygomis (kai žadinantys impulsai yra be galo trumpi, o jų spektras yra stačiakampės formos), gaunamas dvimatis koherentinis spektras tiksliai atspindi trečiosios eilės netiesinės sistemos atsako funkciją – sistemos kvantinius rezonansus ir sistemos tankio matricos dinamiką atvaizduojant kaip daugiamatį koreliacinį žemėlapi. Realiai lazerio impulsai niekada nebūna idealiai trumpi, impulsų gaubtinė yra deformuota, egzistuoja taip vadinamas impulsų „čirpas“, ... tokiais impulsais gaunamas spektras netiksliai atvaizduoja tankio matricą. Kita problema yra egzistuojantys nerezonansiniai netiesinių sistemų šuoliai, kurie generuoja papildomą foną. Tokiu būdu gaunamos dalinai rezonansinės arba visiškai nerezonansinės sąlygos, kai į skaičiavimus būtina įskaityti virtualius sistemų šuolius. Šioje doktorantūros paraiškoje planuojama tyrinėti antrosios ir trečiosios eilės netiesinius optinius signalus (įskaitant dvimačius koherentinius spektrus), generuojamus „skaidriose“ kvantinėse sistemose. Tas svarbu ne tik iš fundamentinės pusės, bet ir tyrinėjant rezonansinius eksperimentus, charakterizuojant aplinkos (tirpiklio arba matricos) įtaką į matuojamo signalo foną, kas dažnai ignoruojama ir gali vesti prie klaidingų išvadų.

### **Development of simulation approaches for nonlinear spectroscopy in off-resonant condition**

Multidimensional pulsed laser nonlinear spectroscopy has occupied an important place among all spectroscopic methods over the last 20 years. It is one of the main methods enabling the recording of ultrafast femtosecond dynamic processes in quantum atomic gasses, molecular solutions, or in solid state. Under ideal conditions (when the excitation pulses are infinitely short, and their spectrum is rectangular), the obtained two-dimensional coherent spectrum accurately reflects the response function of the third-order nonlinear system – it projects the quantum resonances of the system and the dynamics of the density matrix of the system onto a multidimensional map of correlations. In reality, laser pulses are never ideally short, the envelope of the pulses is deformed, there is a so-called pulse “chirp”, ... the spectrum obtained with such pulses does not accurately reflect the density matrix. Another problem is the existence of non-resonant jumps of nonlinear systems, which generate an additional background. In this way, partially resonant or completely non-resonant conditions are obtained, when in calculations it is necessary to include virtual transitions between system states. This doctoral application is devoted to study second- and third-order nonlinear optical signals (including two-dimensional coherent spectra) generated in "transparent" quantum systems. This is important not only from a fundamental point of view, but also when studying resonance experiments, where characterization of the influence of environment (solvent or solid matrix) is usually ignored, while may lead to signal misinterpretations.