

ОБЗОРЫ АКТУАЛЬНЫХ ПРОБЛЕМ

Когерентные четырехволновые процессы в возбужденных и ионизованных газовых средах: четырехфотонная спектрохронография, эллипсометрия и визуализация пространственного распределения атомов и ионов

А.М. Желтиков, Н.И. Коротеев

Представлен обзор основных направлений развития, наиболее перспективных новых методик, а также актуальных приложений когерентных четырехфотонных методов исследования возбужденных и ионизованных газовых сред. Показано, что методы когерентного четырехволнового взаимодействия позволяют получать спектрохронографическую информацию об атомах и ионах, селективно исследовать отдельные компоненты сложных по составу нестационарных газовых и плазменных систем с использованием поляризационной техники четырехфотонной спектроскопии и когерентной эллипсометрии, а также строить оптические изображения пространственных распределений атомов и ионов в возбужденных газах и плазме.

PACS numbers: 42.62.Fi, 42.65.k, 51.70.+f, 52.25.b

Содержание

1. Введение (385).
2. Основные схемы четырехволнового взаимодействия в возбужденных газах и плазме (387).
 - 2.1. Вырожденное четырехволновое взаимодействие.
 - 2.2. Четырехволновое взаимодействие с комбинационным резонансом.
 - 2.3. Четырехволновое взаимодействие с гиперкомбинационным резонансом.
 - 2.4. Генерация третьей гармоники.
3. Эффекты фазовой расстройки и однофотонного поглощения при когерентном ЧВВ (391).
 - 3.1. Основные соотношения.
 - 3.2. Характерные пространственные масштабы задачи.
4. Экспериментальная техника (394).
5. Резонансы гиперкомбинационного типа как способ увеличения эффективности ЧВВ в лазерной плазме (395).
6. Четырехфотонная спектрохронография возбужденных состояний атомов и ионов (396).
 - 6.1. Лазерная плазма.
 - 6.2. Газоразрядная плазма.
7. Поляризационная четырехфотонная спектроскопия и когерентная эллипсометрия атомов и ионов (399).
 - 7.1. Поляризационные свойства сигнала когерентного ЧВВ из плазмы оптического пробоя.
 - 7.2. Разделение мнимой и действительной

- 7.3. Анализ близких и перекрывающихся спектральных линий.
 - 7.4. Поляризационное управление формой спектра ЧВВ.
 - 7.5. Измерение инвариантов тензора гиперкомбинационного рассеяния
 8. Когерентная четырехфотонная спектроскопия автоионизационных состояний (406).
 9. Визуализация пространственного распределения атомной и ионной компонент плазмы (407).
 - 9.1. Когерентное ЧВВ в условиях флуктуаций параметров среды и накачки.
 - 9.2. Поточечное построение двумерных изображений относительной населенности возбужденных состояний атомов и ионов в лазерной плазме.
 - 9.3. Эффекты фазового рассогласования и однофотонного поглощения.
 - 9.4. Двумерное отображение пространственного распределения атомов в лазерной плазме с помощью одномерного когерентного ЧВВ.
 - 9.5. Перспективы нелинейно-оптических методов восстановления трехмерных распределений атомов и ионов в лазерной плазме
 10. Заключение (414).
- Список литературы (415).

1. Введение

Нелинейная оптика возбужденных и ионизованных газовых сред является быстро развивающейся областью современных физических исследований. Растущий интерес к изучению нелинейно-оптических взаимодействий в газах связан как с необходимостью развития локальных невозмущающих методов диагностики быстропротекающих процессов в возбужденных газовых средах и плазме, так и с возможностью использовать нелинейности подобных сред для генерации когерентного коротковолнового излучения методом оптического преобразо-

А.М. Желтиков, Н.И. Коротеев. Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, физический факультет, Международный лазерный центр
119899 Москва, Воробьевы горы, Российская Федерация
Тел. (095) 939-39-59. Факс (095) 939-31-13
E-mail: zheltikov@nls1.ilc.msu.ru

Статья поступила 26 октября 1998 г.

вания частоты. В нелинейной спектроскопии газовых сред [1–4] сигнал рассеяния несет информацию о химическом составе, населенности квантовых уровней, температуре, распределении скоростей и других параметрах отдельных молекул или атомов. Одно из основных преимуществ подобных методов состоит в том, что они позволяют зондировать объекты, характеризующиеся высоким уровнем засветок, включая пламена [5–8], сильно возбужденные газы [9, 10] и плазму электрических [11–14] и оптических [15–18] разрядов. В частности, методы когерентной четырехфотонной спектроскопии получили широкое применение для диагностики процессов горения в автомобильных и ракетных двигателях [19, 20], исследования реакций, сопровождающих процесс парохимического напыления покрытий [21], изучения активной среды газоразрядных лазеров [22], а также для экологических приложений [23].

Хотя когерентное четырехволновое взаимодействие (ЧВВ) довольно давно и успешно применяется для исследования молекулярных и конденсированных сред, проведенные в последнее время эксперименты показали, что использование этой техники для диагностики плазмы и возбужденных газовых сред [14, 22, 24–26] требует определенных изменений в методике экспериментов и специальных исследований в теории когерентного ЧВВ. Использование хорошо разработанных методов четырехфотонной спектроскопии молекул в таких средах часто оказывается затруднительным вследствие высоких температур газа, при которых вещество в основном находится в атомарном либо ионизованном состоянии. В связи с этим возникает необходимость развития методов диагностики атомарной и ионной компонент возбужденных газов. В работах [22, 24], в частности, было показано, что эффективным методом исследования атомарной и ионной компонент газоразрядной и лазерной плазмы является спектроскопия ЧВВ с резонансами гиперкомбинационного типа. Благодаря своему высокому пространственному, временному и спектральному разрешению, а также широким возможностям поляризационной техники, спектроскопия ЧВВ с резонансами комбинационного и гиперкомбинационного типа позволяет получить существенную информацию о параметрах плазмы.

Возбужденные состояния атомов и ионов играют существенную роль при резонансном и квазирезонансном взаимодействии лазерного излучения с газом и плазмой. В связи с этим исключительно важной представляется задача экспериментального исследования временной динамики и пространственного распределения возбужденных атомарной и ионной компонент газовых и плазменных сред. В то же время нелинейно-оптические процессы, сопровождающие взаимодействие лазерного излучения с возбужденными атомарными газами, изучены достаточно глубоко и в настоящее время широко используются как для целей оптического преобразования частоты, так и для спектроскопических приложений. Результаты ранних экспериментальных и теоретических работ в этой области систематизированы и обобщены в книге [27]. Подробный теоретический анализ подобных явлений и обсуждение экспериментальных данных, полученных в этом направлении вплоть до середины 80-х годов, содержатся в монографиях [2, 28–30].

Особенно важной (и одновременно трудной) задачей современного этапа исследований нелинейно-оптических

взаимодействий в возбужденных и ионизованных газовых средах является диагностика нестационарных и пространственно неоднородных плазменных сред, включая плазму оптического пробоя и электрического разряда. Для решения данной задачи требуется сочетание экспериментальных методик, обладающих одновременно высоким пространственным и временным разрешением и позволяющих получать данные об основных параметрах среды с минимальным временем усреднения. Материал данного обзора, по нашему мнению, свидетельствует о том, что накопленный к настоящему времени арсенал средств, основанных на использовании когерентных четырехфотонных процессов, включающий когерентную спектхронографию [31] и эллипсометрию [3, 32, 33], а также построение изображений пространственных распределений физических параметров среды с использованием нелинейно-оптических методов [34, 35], позволяет успешно решать эти и подобные им трудные экспериментальные задачи.

В настоящее время нелинейно-оптические свойства лазерной плазмы активно исследуются многими научными группами в связи с перспективами эффективной генерации когерентного коротковолнового излучения [36–49]. Использование низкотемпературной лазерной плазмы в качестве нелинейной среды позволяет достичь достаточно высокой эффективности преобразования излучения импульсного Nd:YAG лазера в третью гармонику [36, 37]. В частности, недавние эксперименты [45–48] показывают, что плазма оптического пробоя в газах оказывается эффективным источником когерентного излучения третьей гармоники при использовании фемтосекундных импульсов с высокой частотой повторения (1 кГц) и относительно умеренной интенсивностью (менее либо порядка 10^{15} Вт см⁻²). В основе этих и других приложений, о которых пойдет речь в настоящем обзоре, лежит хорошо установленный к настоящему времени факт значительного (на несколько порядков) возрастания нелинейно-оптических восприимчивостей атомарных и плазменных сред по мере роста степени их возбуждения. Именно поэтому даже небольшие плотности возбужденных атомов и ионов становятся когерентными резонансными источниками сигналов ЧВВ достаточно высокой интенсивности, легко регистрируемых на фоне некогерентных засветок и маскирующих когерентных процессов с участием невозбужденных атомов.

Необходимо отметить, что увеличение нелинейно-оптической восприимчивости атомарной системы в условиях заселения возбужденных состояний было предсказано достаточно давно [50]. В ранних работах нашей группы [18, 51] было впервые показано, что квазирезонансное увеличение нелинейно-оптической восприимчивости третьего порядка возбужденных атомов в условиях оптического пробоя обеспечивает достаточный для надежной регистрации уровень сигнала когерентного четырехфотонного рассеяния. Анализу ранних экспериментов в этом направлении и обсуждению перспектив использования когерентного антистоксова рассеяния света для диагностики лазерной и газоразрядной плазмы посвящены обзоры [12, 17]. Широкому применению методов когерентной четырехфотонной спектроскопии для диагностики плазмы оптического пробоя долгое время препятствовали значительные трудности, связанные с интенсивной засветкой, высоким уровнем когерентного нерезонансного фона, сильным поглощением, а

также существенным влиянием эффектов фазового рас- согласования на определенных этапах разлета плазмы. Дополнительными факторами, значительно увеличивающими ошибки измерений, выполняемых с использованием методов четырехфотонной спектроскопии, являются неустраняемые флуктуации плазменных параметров от импульса к импульсу и сложность интерпретации четырехфотонных спектров. Обычно четырехфотонные спектры лазерной плазмы содержат значительное количество линий, которые не всегда удается однозначно идентифицировать и которые часто создают помехи для регистрации информативных спектральных компонент [52].

К счастью, когерентная четырехфотонная спектроскопия располагает богатым арсеналом средств для решения вышеперечисленных проблем. В частности, уровень некогерентной засветки существенно снижается при временном стробировании и пространственной фильтрации сигнала когерентного ЧВВ. Подавление неинформативного когерентного фона достигается путем надлежащего выбора поляризационных условий возбуждения и регистрации когерентных спектров¹. Искажения в спектральных и временных зависимостях сигнала ЧВВ, возникающие за счет нарушения условий фазового синхронизма и "движения населенностей", устраняются при правильном выборе временных задержек и интенсивностей зондирующих лазерных импульсов, а также при оптимизации геометрии эксперимента.

Как уже отмечалось выше, исключительно важной представляется задача экспериментального исследования временной динамики и пространственного распределения атомарной и ионной компонент лазерной плазмы. Возможности различных методов лазерной спектроскопии для получения информации о пространственном распределении частиц в возбужденных газовых средах довольно широко обсуждаются в последнее время. Наряду с методами эмиссионной спектроскопии и лазерно-индуцированной флуоресценции для этой цели все более широко применяется техника когерентной четырехфотонной спектроскопии, характеризующаяся высоким пространственным и временным разрешением и позволяющая достигать высокого контраста когерентного сигнала относительно уровня засветок, связанных с собственным свечением возбужденной среды. Использование процесса вырожденного четырехволнового взаимодействия (ВЧВВ) и когерентного антистоксова рассеяния света (КАРС) позволяет предложить ряд привлекательных схем построения двумерных изображений пространственного распределения параметров возбужденных газов и плазмы (см. раздел 2.1).

Основной целью данного обзора является обсуждение основных направлений развития, наиболее перспективных новых методик, а также актуальных приложений когерентных четырехфотонных методов исследования возбужденных и ионизованных газовых сред. Будут рассмотрены спектрохронографические схемы когерентного ЧВВ, позволяющие получать данные о временной эволюции спектров ЧВВ, отражающей кинетику возбуж-

дения и релаксации атомов и ионов в нестационарной неоднородной плазме. Будут проанализированы поляризационные схемы ЧВВ и методы когерентной эллипсометрии, дающие возможность селективного исследования отдельных компонент сложных по составу нестационарных газовых и плазменных систем. Мы также подробно обсудим недавно предложенные и получившие значительное развитие методы построения оптических изображений пространственных распределений атомов и ионов в возбужденных газах и плазме.

Структура данного обзора такова. Во втором разделе мы кратко остановимся на основных схемах когерентного ЧВВ, используемых для исследования возбужденных и ионизованных газов, таких как вырожденное четырехволновое взаимодействие, ЧВВ с комбинационными резонансами, включая КАРС, ЧВВ с гиперкомбинационными резонансами, а также генерация третьей гармоники. В третьем разделе мы приведем основные соотношения, позволяющие количественно проанализировать влияние эффектов фазовой расстройки и поглощения на параметры сигнала ЧВВ и качественно рассмотрим изменение режима ЧВВ в зависимости от соотношения между характерными длинами задачи. Основные принципы экспериментальной техники и методики измерений обсуждаются в четвертом разделе. В пятом разделе исследуются возможности увеличения эффективности ЧВВ в лазерной плазме за счет промежуточных резонансов гиперкомбинационного типа. Спектрохронографические схемы когерентного ЧВВ, рассматриваемые в шестом разделе, позволяют исследовать кинетику релаксации возбужденных состояний атомов и ионов в низкотемпературной плазме оптического пробоя и в газоразрядной плазме. Вопросы, связанные с поляризационной четырехфотонной спектроскопией и когерентно эллипсометрией атомов и ионов, обсуждаются в седьмом разделе. Восьмой раздел посвящен приложениям когерентной четырехфотонной спектроскопии для исследования автоионизационных состояний. В девятом разделе мы обсудим возможности методов когерентного ЧВВ для визуализации пространственного распределения атомной и ионной компонент плазмы. В частности, будут изучены особенности извлечения информации о концентрации резонансных частиц из сигнала ЧВВ, усредненного по серии измерений, в условиях флуктуаций концентрации резонансных частиц и интенсивностей лазерных пучков накачки; рассмотрены схемы ЧВВ, которые позволяют получать информацию о пространственном распределении атомов в лазерной плазме путем поточечных измерений в сканируемой относительно лазерных пучков плазме, и ЧВВ-методы восстановления пространственных распределений возбужденных атомов в лазерной плазме линия за линией и срез за срезом, а также обсуждены перспективы нелинейно-оптических методов восстановления трехмерных распределений атомов и ионов в лазерной плазме. Основные выводы кратко суммируются в заключении.

2. Основные схемы четырехволнового взаимодействия в возбужденных газах и плазме

В этом разделе мы кратко остановимся на основных схемах когерентного ЧВВ, используемых для исследования возбужденных и ионизованных газов. К числу

¹ Поляризационная техника, известная как голографическая многомерная спектроскопия (обзор применений данной техники для линий лоренцевой формы содержится в работе [53]), позволяет разрешать близкие и наложившиеся спектральные линии, относящиеся к различным плазменным частицам, и благодаря этому исследовать подобные линии независимо друг от друга.

основных схем следует отнести вырожденное четырехволновое взаимодействие (ВЧВВ), ЧВВ с комбинационными резонансами, включая КАРС, ЧВВ с гиперкомбинационными резонансами (ЧВВ ГКР), а также генерацию третьей гармоники (ГТГ). Ниже мы рассмотрим основные особенности вышеперечисленных схем и обсудим их возможности для диагностики плазмы.

2.1. Вырожденное четырехволновое взаимодействие

Техника вырожденного четырехволнового взаимодействия [54] (рис. 1а), изначально использовавшаяся как схема обращения волнового фронта [55], в последние годы получила широкое развитие как удобный и эффективный метод спектроскопии (см., например, [2, 56–59]), позволяющий, в частности, получать информацию об элементном составе [58–61] и температуре [62–66] газовых сред. Различают две основные разновидности ВЧВВ — схемы с попутной и встречной геометрией взаимодействия [2, 67]. Основные преимущества техники ВЧВВ связаны с тем, что данный подход требует использования лишь одного лазерного источника, а также позволяет автоматически удовлетворить условия фазового синхронизма независимо от дисперсии среды (см. диаграмму волновых векторов на рис. 1а). Использование широкополосного варианта спектроскопии ВЧВВ [68] позволяет измерять температуру возбужденных газов, в том числе атомарных [69], за один лазерный импульс. Схемы ВЧВВ с использованием широких неколлинеарных пучков положены в основу ряда удобных и элегантных методов для построения двумерных изображений пространственных распределений физических параметров газов [34, 70–72].

Важную роль в развитии техники ВЧВВ как метода диагностики возбужденных атомарных газов сыграли работы [56, 58], в которых наблюдался и исследовался процесс ВЧВВ с участием атомов натрия и была разработана основанная на ВЧВВ техника поточечного отображения пространственного распределения атомов натрия в пламени. В последующих работах в этом направлении была продемонстрирована возможность использования методов ВЧВВ в широких пучках для

построения двумерных изображений пространственных распределений плотности возбужденных частиц [34, 70] и температуры [71, 72] и в газовых средах. Авторами работ [73, 74] реализована методика двухступенчатого ВЧВВ. Данный подход предполагает регистрацию сигнала ВЧВВ с возбужденных состояний, селективно заселяемых дополнительным лазерным источником. В работе [74] данная техника была использована для исследования возбужденных состояний атомов золота. Важные для практических применений ВЧВВ эффекты поглощения и зависимости интенсивности сигнала ВЧВВ от длины взаимодействия в случае широкополосной накачки исследованы в работах [75, 76]. Анализ, выполненный в работе [23], показал, что при определенных условиях (например, при регистрации и построении карт распределения NO_2) ВЧВВ оказывается полезной альтернативой методу лазерно-индуцированной флуоресценции. Авторы работ [77] исследовали возможности техники неколлинеарного ВЧВВ с двухфотонным резонансом [78] как метода диагностики атомов кислорода в плазме СВЧ разряда. В ряде случаев использование данного подхода позволяет избежать искажений спектроскопической информации, содержащейся в сигнале обычного ВЧВВ с однофотонным резонансом, из-за столкновительного тушения, поглощения и высокого уровня шумов. Всесторонний анализ методологических проблем, возникающих при использовании техники ВЧВВ для построения изображений пространственного распределения частиц в газах, включая эффекты дифракции, факторы, влияющие на пространственное разрешение, построение опорных изображений и ряд других, выполнен в работе [79].

Необходимо отметить, что наряду с несомненными достоинствами метод ВЧВВ обладает рядом принципиальных ограничений. В частности, лазерное излучение, частота которого в схеме ВЧВВ удовлетворяет условиям однофотонного резонанса с молекулярным или атомным переходом, может приводить к возмущению резонансных уровней, искажая тем самым спектроскопическую информацию. Техника ВЧВВ не может быть использована для исследования низкочастотных

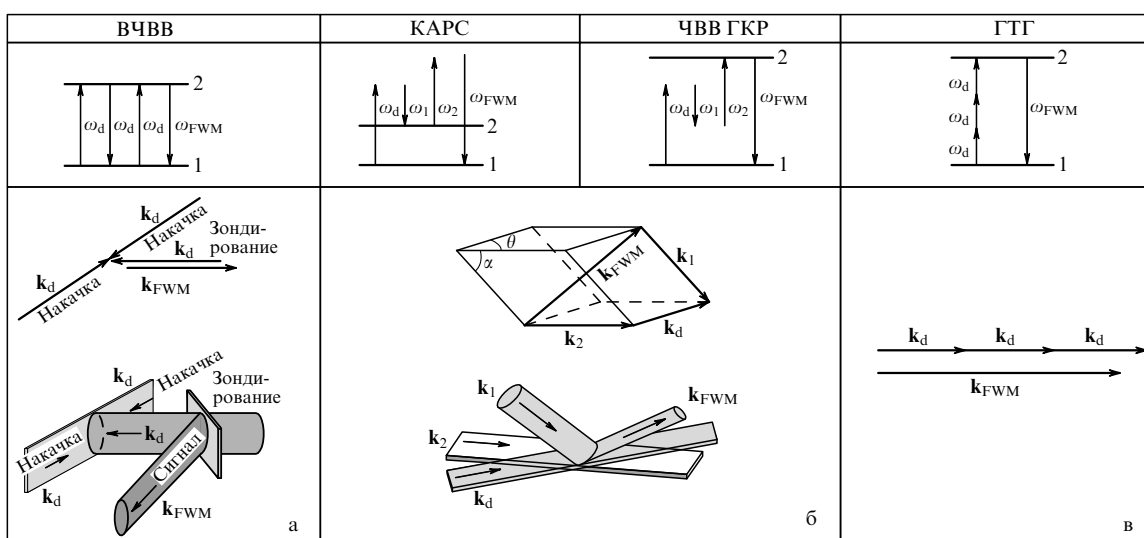


Рис. 1. Основные схемы когерентного ЧВВ, используемые для исследования возбужденных и ионизованных газов: (а) вырожденное четырехволновое взаимодействие; (б) ЧВВ с комбинационными и гиперкомбинационными резонансами; (в) генерация третьей гармоники.

переходов в молекулярных и атомарных спектрах, часто несущих важную информацию о параметрах газовой среды. Данные ограничения могут быть сняты путем изменения методики измерений и перехода к невырожденным по частоте схемам когерентного ЧВВ. В последующих разделах мы рассмотрим подробнее наиболее распространенные схемы двух- и трехчастотного ЧВВ.

2.2. Четырехволновое взаимодействие с комбинационным резонансом

Четырехфотонные процессы с резонансом комбинационного типа (в частности, КАРС) представляют собой классическую схему [80–82] нелинейно-оптической спектроскопии газов (см. левую диаграмму волновых векторов на рис. 16). Благодаря высокому пространственному, временному и спектральному разрешению, возможности исследовать объекты, характеризующиеся высоким уровнем засветки, а также богатому арсеналу поляризационной техники, четырехфотонные схемы с комбинационными резонансами (и прежде всего КАРС) получили широкое распространение для измерений температуры и концентрации в газах [4–10, 83–86], газового анализа [87], молекулярной спектроскопии высокого разрешения [88–90], исследования кинетики и путей релаксации энергии в молекулярных газах [91, 92], измерения времен дефазировки молекулярных колебаний [93, 94] и различных мультипольных компонент комбинационного рассеяния в атомарных парах [95], изучения фотохимических реакций в газовых смесях, возбужденных лазерным излучением [96] и других приложений. Широкие возможности для исследования процессов релаксации населенностей возбужденных атомных и ионных состояний, а также измерения характерных времен таких процессов открываются при сочетании когерентной четырехфотонной техники зондирования и селективной двухфотонной методики заселения возбужденных состояний. Возможности подобной комбинированной техники, сочетающей двухквантовое (комбинационное) возбуждение (ДКВ) и зондирование методом КАРС (техника ДКВ–КАРС [97]), для измерения времен релаксации возбужденных состояний атомов самария были продемонстрированы в работе [98].

Процессы когерентного ЧВВ с вычитанием частоты в атомарных газах, включая КАРС, широко исследовались в связи с задачей оптического преобразования частоты. В частности, Кунг [99] сообщал о генерации излучения с длиной волны, дискретно изменяющейся от 117 до 195 нм в результате ЧВВ в парах Хе. Оптическое преобразование частоты на основе резонансного ЧВВ было реализовано в экспериментах с парами Кг [100], Sr [101], Cs [102] и других. Обзор исследований, выполненных в данной области до начала 80-х годов, содержится в книгах Райнтжеса [2] и Архипкина и Попова [30].

Возможность использования когерентной четырехфотонной спектроскопии с резонансами комбинационного типа для диагностики низкотемпературной лазерной плазмы была продемонстрирована в работе [103], в которой наблюдался процесс когерентного четырехфотонного рассеяния на комбинационном переходе возбужденных состояний атома олова. Однако использование схем ЧВВ с комбинационными резонансами для диагностики сильно возбужденных и ионизованных газовых сред не всегда возможно, так как уменьшение разности населенностей возбужденных состояний атомов и ионов

в подобных средах приводит к падению интенсивности сигнала [12].

Еще в ранних работах по когерентному антистоксову рассеянию света была предложена схема измерений с использованием широких пучков накачки, позволяющая получать информацию о пространственном распределении параметров одновременно для целой области среды [5]. Авторы [104, 105] использовали технику КАРС для исследования пространственного распределения характеристик газовых потоков, производя регистрацию сигнала КАРС, генерируемого в каждой точке вдоль линии пересечения широких пучков накачки. Результаты, представленные в работе [106], показывают, что при правильном выборе геометрии фокусирующих и коллимирующих оптических элементов метод КАРС позволяет также производить измерения температуры газа вдоль некоторой линии за один лазерный импульс. Важные усовершенствования в методике сбора информации о параметрах газовой среды, позволяющие одновременно регистрировать сигнал КАРС от молекул различного сорта, были предложены авторами работ [107–109], разработавшими схему двойного широкополосного КАРС, и авторами [110, 111], реализовавшими схему КАРС, в которой спектральное разрешение достигалось разнесением сигналов от молекул CO и N₂ по угловой координате.

Среди разновидностей схем когерентного ЧВВ с комбинационным резонансом следует упомянуть схему трехчастотного ЧВВ, в которой одно из полей, участвующих в процессе, имеет нулевую частоту [112]. Данная схема была предложена как метод исследования постоянных полей в газоразрядной плазме [113]. В работе [114] обосновывается возможность применения поляризационного варианта данной схемы для определения направления и измерения величины постоянного поля в газоразрядной плазме, а также обсуждаются возможности получения информации о статистике плазменных микрополей на основании данных поляризационных измерений с использованием данного подхода.

2.3. Четырехволновое взаимодействие с гиперкомбинационным резонансом

Как упоминалось выше, использование процессов ЧВВ с резонансом комбинационного типа не всегда удобно для диагностики ранних стадий разлета плазмы оптического пробоя из-за резкого падения интенсивности сигнала ЧВВ вследствие выравнивания населенностей уровней, связанных комбинационным переходом, которые, как правило, имеют близкие энергии. Предпочтительным для таких условий представляется использование спектроскопии ЧВВ с гиперкомбинационными резонансами (ЧВВ ГКР), или когерентного антистоксова гиперкомбинационного рассеяния света (рис. 16, правая диаграмма волновых векторов). Особенности амплитудных и поляризационных свойств сигнала ЧВВ ГКР связаны с тем, что компоненты тензора нелинейно-оптической кубической восприимчивости среды, ответственного за процесс данного типа, определяются инвариантами тензора гиперкомбинационного рассеяния (ГКР). Резонансы ГКР в спектре сигнала ЧВВ из лазерной плазмы были впервые зарегистрированы в работе [115] на возбужденных состояниях атома Fe. В последующих работах спектроскопия ЧВВ ГКР была осуществлена для различ-

ных атомов и ионов, образованных в плазме оптического пробоя [24, 116, 117] и в газоразрядной плазме активной среды лазера на парах меди [14, 22, 24].

Использование метода когерентного четырехфотонного рассеяния света с однофотонным резонансом позволяет экспериментально определять существенные параметры возбужденных и автоионизационных состояний атомов и ионов в плазме. В частности, в работах [25, 118–120] развиты экспериментальные методики временных и поляризационных измерений, основанные на четырехфотонном рассеянии с однофотонным резонансом. Метод когерентной эллипсометрии автоионизационных состояний на основе активной спектроскопии гиперкомбинационного рассеяния предложен в работе [121]. Техника когерентного ЧВВ с резонансом гиперкомбинационного типа может быть эффективно использована в качестве основы методики двумерного отображения относительной населенности возбужденных состояний атомов и ионов в низкотемпературной плазме [35, 122, 123]. Этот экспериментальный подход характеризуется высоким пространственным, временным и спектральным разрешением и представляется, благодаря этому, особенно перспективным для исследования быстропротекающих пространственно неоднородных процессов в лазерной плазме. Однако необходимо иметь в виду, что для получения информации о параметрах системы из экспериментальных спектров четырехфотонного рассеяния в условиях однофотонного резонанса необходим учет условий фазового синхронизма для волн, участвующих в процессе, и анализ влияния фазовой расстройки на форму спектра четырехфотонного рассеяния. Существенной особенностью рассматриваемого процесса является также наличие однофотонного поглощения, которое, наряду с дисперсией среды, может оказывать заметное влияние на форму спектра на выходе из исследуемой среды [124–127].

Как и в случае процессов ЧВВ с резонансом комбинационного типа, сочетание когерентного четырехфотонного зондирования с резонансом гиперкомбинационного типа и селективной двухфотонной методики заселения возбужденных состояний открывает широкие возможности для измерения характеристик возбужденных атомных и ионных состояний. Преимущества подобного комбинированного подхода для исследования процессов заселения возбужденных состояний атомов натрия в нагрываемой кювете были продемонстрированы в работе [128].

Резонансы гиперкомбинационного типа также представляют значительный интерес с точки зрения повышения эффективности преобразования частоты лазерного излучения в схемах когерентного ЧВВ [129]. Подробнее данный аспект ЧВВ с гиперкомбинационными резонансами будет рассмотрен в разделе 5.

2.4. Генерация третьей гармоники

Аналогично вырожденному четырехволновому взаимодействию генерация третьей гармоники (рис. 1в) является вырожденным по частоте процессом ЧВВ. Однако, в отличие от ВЧВВ, на процесс генерации третьей гармоники, как правило, существенное влияние оказывают эффекты фазового рассогласования [130]. Явление генерации третьей гармоники в газах интенсивно исследуется в связи с задачей оптического преобразования частоты мощного лазерного излучения.

Наряду с возбужденными газовыми средами [2, 131–140] в последнее время для этой цели активно используется плазма оптического пробоя [36–49]. Несмотря на впечатляющие результаты, достигнутые в области генерации гармоник высокого порядка и получения когерентного коротковолнового излучения (с длиной волны менее 2,4 нм [141]) в струе инертного газа, в рамках данного экспериментального подхода, основанного на использовании сфокусированных лазерных пучков, не удается получить высокую эффективность преобразования частоты даже для гармоник низкого порядка. Использование лазерной плазмы при определенных условиях позволяет достичь сравнительно высоких эффективностей генерации гармоник низкого порядка [36, 37, 45–48].

В связи с задачей оптического преобразования частоты значительный интерес представляет возможность эффективной генерации третьей гармоники (а также гармоник более высоких порядков) с использованием техники полых волноводов [142]. Существенное (на три порядка) увеличение эффективности нелинейно-оптического взаимодействия в полном диэлектрическом волноводе, заполненном газом, было предсказано теоретически и продемонстрировано экспериментально для процесса КАРС Майлсом с сотрудниками еще в 1977 г. [143], т.е. за 20 лет до использования техники полых волноводов для ГТГ. Идея использования полых волноводов для компрессии сверхкоротких лазерных импульсов на основе другого нелинейно-оптического процесса третьего порядка — фазовой самомодуляции, предложенная и реализованная в работах [144, 145], оказалась настолько плодотворной, что компрессоры на основе полых волноводов с успехом используются в настоящее время в передовых фемтосекундных лазерных системах [146].

Эксперименты [147] показали, что при ГТГ в полых волноводах, заполненных инертными газами, возможна частичная компенсация фазовой расстройки, связанной с дисперсией газа, за счет дисперсии волноводных мод, что позволяет достичь высоких эффективностей преобразования частоты лазерного излучения при генерации третьей гармоники (0,2 %) и параметрическом четырехволновом взаимодействии (13 %). При этом, как было показано в работах [148, 149], имеется возможность управления нелинейным фазовым сдвигом и длительностью третьей гармоники за счет эффекта фазовой кросс-модуляции. Результаты экспериментов [147] стимулировали интенсивные исследования нелинейно-оптических процессов преобразования частоты в полых волноводах [150, 151]. В частности, было показано, что путем компенсации фазовой расстройки в полых волноводах удается увеличить эффективность преобразования частоты при генерации гармоник вплоть до 45-го порядка в 100–1000 раз по сравнению с величинами, достигаемыми в экспериментах с газовыми струями.

Эффект ГТГ используется не только для получения когерентного коротковолнового излучения. Он дает ценную информацию о спектроскопических характеристиках газа [18], о динамике его ионизации, а также позволяет понять особенности нелинейно-оптического отклика возбужденной атомарной системы на сильное световое поле и выявить каналы управления параметрами возбужденной газовой среды, включая оптические разряды.

3. Эффекты фазовой расстройки и однофотонного поглощения при когерентном ЧВВ

Эффекты фазового рассогласования и поглощения оказывают заметное влияние на процесс когерентного четырехволнового смешения в случае схем ЧВВ с однофотонным резонансом [126, 127, 152]. Эффективность процесса ЧВВ в среде с нелинейностью третьего порядка, идущего по схеме $\omega_{\text{FWM}} = \omega_1 + \omega_2 - \omega_3$, где $\omega_1, \omega_2, \omega_3$ — частоты волн накачки, определяется кубической восприимчивостью среды $\chi^{(3)}$ (ω_{FWM} ; $\omega_1, \omega_2, -\omega_3$) (в дальнейшем для краткости частотные аргументы будут опускаться). При настройке комбинации частот $\omega_1 + \omega_2 - \omega_3$ в резонанс с частотой перехода между электронными состояниями атома или иона можно ожидать резонансного возрастания восприимчивости $\chi^{(3)}$. Однако вследствие возрастания однофотонного поглощения на частоте ω_{FWM} и изменения условий фазового согласования этот эффект не всегда приводит к увеличению эффективности преобразования частоты в результате ЧВВ.

В данном разделе мы приведем основные соотношения, позволяющие количественно проанализировать влияние эффектов фазовой расстройки и поглощения на параметры сигнала ЧВВ, качественно рассмотрим изменение режима ЧВВ в зависимости от соотношения между характерными длинами задачи и подробнее остановимся на зависимости сигнала ЧВВ от плотности резонансных частиц с учетом эффектов фазовой расстройки и поглощения на различных этапах эволюции лазерной плазмы.

3.1. Основные соотношения

Для анализа влияния эффектов фазовой расстройки и однофотонного поглощения воспользуемся формулой, описывающей мощность сигнала ЧВВ P_{FWM} на выходе из нелинейной среды в случае сфокусированных гауссовых пучков накачки [2, 153–155]:

$$P_{\text{FWM}} \propto |\chi_r^{(3)} + \chi_{\text{nr}}^{(3)}|^2 P_1 P_2 P_3 G. \quad (1)$$

Здесь P_1, P_2, P_3 — мощности волн накачки, G — фактор фазового согласования, $\chi_r^{(3)}$ — резонансная и $\chi_{\text{nr}}^{(3)}$ — нерезонансная части нелинейно-оптической кубической восприимчивости среды; последняя в общем случае включает квазирезонансную компоненту кубической восприимчивости [25, 26], связанную с близкими резонансами плазменных частиц и переходами с участием непрерывного спектра. В случае сфокусированных гауссовых световых пучков накачки фактор G может быть представлен в виде [2, 153–155]

$$G = 2\pi \int_0^\infty |I|^2 r dr, \quad (2)$$

$$I = \exp(-\kappa_1 L) \int_{-\xi}^{\xi} d\xi' \frac{\exp[(i\Delta k - \kappa + \kappa_1)(\xi - \xi')(b/2)]}{(1 + i\xi')(a - i\xi')H} \times \exp\left(-\frac{r^2}{H}\right). \quad (3)$$

Здесь $\Delta k = k_4 - k'$, $k' = k_1 + k_2 - k_3$, k_4 — волновой вектор ЧВВ волны в нелинейной среде, k_1, k_2, k_3 — волновые вектора волн накачки в среде, κ и κ_1 — мнимые части волновых векторов k_4 и k' соответственно, $k'' = k_1 + k_2 + k_3$; $a = k''/k'$, $b = 2\pi a_{0i} n(\lambda_i)/\lambda_i$ — конфокальный параметр ($i = 1, 2, 3$), a_{0i} — радиус перетяжки

гауссова пучка с длиной волны λ_i , $\xi = 2(L - f)/b$ и $-\xi = -2f/b$ — границы нелинейной среды в безразмерных координатах, f — координата центра перетяжки гауссовых пучков, L — длина нелинейной среды,

$$H = \frac{1 + \xi'^2}{a - i\xi'} + i(\xi - \xi'). \quad (4)$$

Резонансная часть нелинейно-оптической восприимчивости пропорциональна разности населенностей N_1 и N_2 нижнего и верхнего резонансных состояний:

$$\chi_r^{(3)} = (N_1 - N_2)\bar{\chi}_r^{(3)}, \quad (5)$$

где $\bar{\chi}_r^{(3)}$ — резонансная нелинейно-оптическая кубическая восприимчивость в расчете на один атом (ион).

В случае, когда спектральная линия, соответствующая исследуемому резонансному переходу, имеет лоренцеву форму, выражения для коэффициента поглощения и фазовой расстройки линейных оптических параметров среды имеют вид

$$\kappa(\delta) = \kappa_{\text{el}} + \frac{\kappa_{\text{max}} N_R}{\delta^2 + 1}, \quad (6)$$

$$\Delta k(\delta) = \Delta k(0) + \frac{\delta \kappa_{\text{max}} N_R}{\delta^2 + 1}, \quad (7)$$

где κ_{max} характеризует резонансный вклад ионной компоненты в дисперсию и поглощение, слагаемые κ_{el} и $\Delta k(0)$ описывают нерезонансный вклад электронной компоненты, который может быть рассчитан по известным формулам для дисперсии плазмы [127, 156], N_R — концентрация резонансных атомов (или ионов), δ — отстройка от центральной частоты резонанса, нормированная на ширину линии. При выводе формул (6) и (7) предполагалось, что нерезонансные составляющие κ и Δk , связанные с вкладом дискретных состояний атомов и ионов, малы по сравнению с резонансными составляющими.

Как следует из выражений (1)–(7), информация относительно кинетики и пространственных распределений резонансных частиц, содержащаяся во временных и пространственных зависимостях сигнала ЧВВ, искажается вследствие влияния фазовой расстройки, поглощения, а также интерференции резонансной и нерезонансной составляющих кубической восприимчивости. Данные эффекты могут также оказывать существенное влияние на временную эволюцию сигнала ЧВВ.

В расширяющейся лазерной плазме населенности N_1 и N_2 резонансных уровней и их разность $N = N_1 - N_2$ являются функциями времени. Вследствие этого нелинейно-оптическая восприимчивость также является функцией времени. Строго говоря, зависящие от времени нелинейно-оптические восприимчивости в спектральном представлении (определяемые как фурье-образы нелинейно-оптических восприимчивостей во временном представлении) могут быть последовательным образом введены только в том случае, когда временной масштаб изменения величин $\chi_r^{(3)}$ и $\chi_{\text{nr}}^{(3)}$ существенно превышает длительность периода световых полей, участвующих в рассматриваемом процессе. При такой иерархии временных масштабов мы имеем дело с проблемой нелинейной спектхронографии [31], когда требуется определить свойства нелинейно-оптических восприимчивостей не только в спектральном, но и во временном представлении (см. табл. 1).

Таблица 1. Сравнительная характеристика возможностей четырехфотонной спектхронографии, когерентной эллипсометрии и построения ЧВВ изображений. P_{FWM} — мощность сигнала ЧВВ; G — интеграл фазового согласования; N — плотность резонансных частиц; $\chi^{(3)}$ — нелинейно-оптическая кубическая восприимчивость среды; ψ, χ — угол наклона эллипса поляризации и эллиптичность сигнала ЧВВ; $P^{(3)}$ — нелинейная поляризация среды третьего порядка; ξ_i, η_i — координаты точки в плоскости приемника (см. табл. 3); x_i, y_i — координаты точки среды; фигурные скобки обозначают массив данных, получаемых в одном измерении.

	Четырехфотонная спектхронография		Когерентная эллипсометрия		Построение ЧВВ изображений	
	Спектроскопия	Временные измерения	Спектральные измерения	Временные измерения	Поточечные измерения	Двумерные изображения
Измеряемый параметр	$P_{\text{FWM}}(\omega)$	$P_{\text{FWM}}(t)$	$\psi(\omega), \chi(\omega)$	$\psi(t), \chi(t)$	$P_{\text{FWM}}(\xi_i, \eta_i)$	Образ сечения Σ_i
Информация о системе	$G(\omega)\chi^{(3)}(\omega)$	$G(t)N^2(t)$	$\text{Im}\chi^{(3)}(\omega)$ $\text{Re}\chi^{(3)}(\omega)$	$P^{(3)}(t)$	$G(x_i, y_i)N^2(x_i, y_i)$	$\{G(x_i, y_i)N^2(x_i, y_i)\}$
Источники экспериментальных ошибок и методы их устранения						
Источник	Флуктуации параметров среды					
Метод	Широкополосная схема измерений	Усреднение	Широкополосная схема измерений	Усреднение		
Источник	Флуктуации параметров излучения накачки					
Метод	Опорный канал					
Метод	Широкополосная схема измерений	Усреднение	Широкополосная схема измерений	Усреднение		
Источник	Фазовая расстройка и поглощение					
Метод	Подбор синхронного режима с малым поглощением Измерение и учет эффектов фазовой расстройки и поглощения					
Источник	Интерференция с когерентным фоном					
Метод	Поляризационное подавление когерентного фона		Измерение поляризационных параметров когерентного фона		Поляризационное подавление когерентного фона	
Источник	Интерференция близких спектральных линий				Интерференция близких спектральных линий	
Метод	Поляризационное разрешение линий	Селективное исследование с помощью поляризационной техники			Селективное исследование с помощью поляризационной техники	

Влияние фазового рассогласования на форму спектра четырехволнового смещения в условиях однофотонного резонанса было исследовано в работах [125–127, 156]. В частности, было показано, что для получения спектроскопической информации о тензоре кубической восприимчивости из спектров четырехфотонного рассеяния с однофотонными резонансами необходимо корректно учитывать влияние фазовой расстройки и однофотонного поглощения в среде. В работе [126] было рассмотрено влияние эффекта однофотонного насыщения на форму спектра четырехфотонного рассеяния. Учет эффекта насыщения особенно важен для анализа спектров четырехфотонного рассеяния в условиях однофотонного резонанса на частоте накачки [24, 116], когда воздействие мощного излучения перестраиваемого по частоте лазера на красителе может привести к существенному изменению населенностей электронных состояний атомарной системы.

Выражения (1)–(4) могут быть записаны в существенно более простом виде для ряда предельных случаев. В частности, компактные аналитические формулы с ясным физическим смыслом могут быть получены для режима плоских волн [125], жесткой фокусировки [126] и сильного поглощения [127]. Однако для анализа эффектов фазовой расстройки и поглощения в общем случае требуется выполнение численных расчетов с использованием выражений (1)–(4). Результаты численных расчетов с использованием формул (1)–(7) подробно обсуждаются в работе [127]. Здесь мы кратко суммируем основные результаты этих работ.

Во-первых, при больших концентрациях резонансных атомов зависимость мощности сигнала ЧВВ может существенно отличаться от закона N^2 (рис. 2). Это обстоятельство связано как с увеличением однофотонного поглощения генерируемой волны, так и с ухудшением условий фазового согласования (параметр Δk увеличивается). Такие эффекты становятся особенно заметными при больших концентрациях резонансных атомов. С учетом этого обстоятельства можно сделать вывод, что увеличение концентрации резонансных частиц не всегда приводит к росту эффективности нелинейно-оптического преобразования. Во-вторых, отклонение мощности сигнала ЧВВ от квадратичного

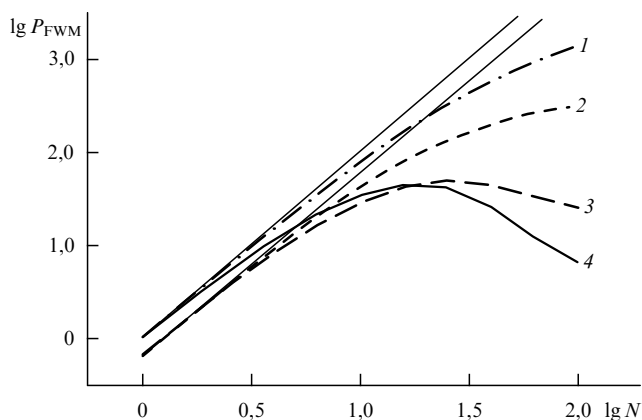


Рис. 2. Зависимость мощности сигнала ЧВВ от концентрации резонансных атомов (ионов) N при $L = 0,8$ см, $\varkappa_{\max} = 0,1$ см $^{-1}$, $\delta = -1$ для различных параметров фокусировки: $f = 0,8$ см (1, 2), $f = 0$ см (3, 4); $b = 0,8$ см (2, 3), $b = 0,3$ см (1, 4). Прямые линии соответствуют квадратичной зависимости мощности сигнала ЧВВ.

закона N^2 зависит от параметров фокусировки (рис. 2). В-третьих, рассматриваемая зависимость мощности сигнала ЧВВ от концентрации оказывается чувствительной к отстройке от однофотонного резонанса δ и параметру \varkappa_{\max} . При заданных параметрах фокусировки характер исследуемой зависимости определяется соотношением длины поглощения и длины синхронизма для генерируемой волны. В-четвертых, при малых отстройках от однофотонного резонанса основным фактором, ограничивающим эффективность нелинейно-оптического преобразования частоты, является резонансное поглощение генерируемой волны. При больших отстройках наибольшее влияние на мощность сигнала ЧВВ оказывают эффекты фазового рассогласования между генерируемой волной и нелинейной поляризацией, наведенной в среде волнами накачки.

3.2. Характерные пространственные масштабы задачи

При качественном обсуждении влияния эффектов фазового согласования и однофотонного поглощения на когерентное ЧВВ с резонансом гиперкомбинационного типа на частоте сигнала ЧВВ удобно использовать следующие характерные величины: длину синхронизма $l_{\text{coh}} = \pi/(2|\Delta k|)$, длину поглощения для волн накачки и для сигнала ЧВВ $l_i = 1/\varkappa_i$ ($i = 1, 2, 3$; \varkappa_i — нерезонансные коэффициенты поглощения на частотах волн накачки) и $l_{\text{FWM}} = 1/\varkappa_r$ (\varkappa_r — резонансный коэффициент поглощения на частоте сигнала ЧВВ), длину взаимодействия l_{int} , которая определяется геометрией взаимодействия, и расстояние l_s , которое проходит сигнал ЧВВ от области взаимодействия до выходной границы среды (верхняя граница данного пространственного масштаба — длина среды L). Информация о концентрации резонансных частиц, содержащаяся в сигнале когерентного ЧВВ, не искажается эффектами фазового рассогласования и поглощения в случае, когда выполняются неравенства

$$l_{\text{int}} < l_{\text{coh}}, \quad (8a)$$

$$L < l_{\text{FWM}}, l_1, l_2, l_3. \quad (8b)$$

В общем случае расчет величин, входящих в выражения (1)–(7), а следовательно, и характерных пространственных масштабов задачи с учетом их временных зависимостей в процессе разлета плазмы представляет собой довольно сложную задачу, для решения которой требуется привлечение модельных представлений о динамике плазмы. В работах [24, 117] оптические характеристики расширяющейся лазерной плазмы, влияющие на эффективность процесса ЧВВ, были рассчитаны с использованием радиационно-столкновительной модели кинетики многокомпонентной плазмы. Такой подход обеспечивает удовлетворительное согласие между результатами расчетов и экспериментальными данными и дает достаточно ясное понимание влияния эффектов фазового рассогласования и поглощения при ЧВВ в лазерной плазме. На рисунке 3а изображена экспериментальная временная зависимость интенсивности сигнала ЧВВ для резонанса гиперкомбинационного типа на частоте перехода между возбужденными состояниями атомов свинца в лазерной плазме; сплошной линией показаны результаты расчетов, выполненных в рамках радиационно-столкновительной модели кинетики многокомпонентной плазмы [160, 161]. На рисунке 3б — то же для атомов азота [129].

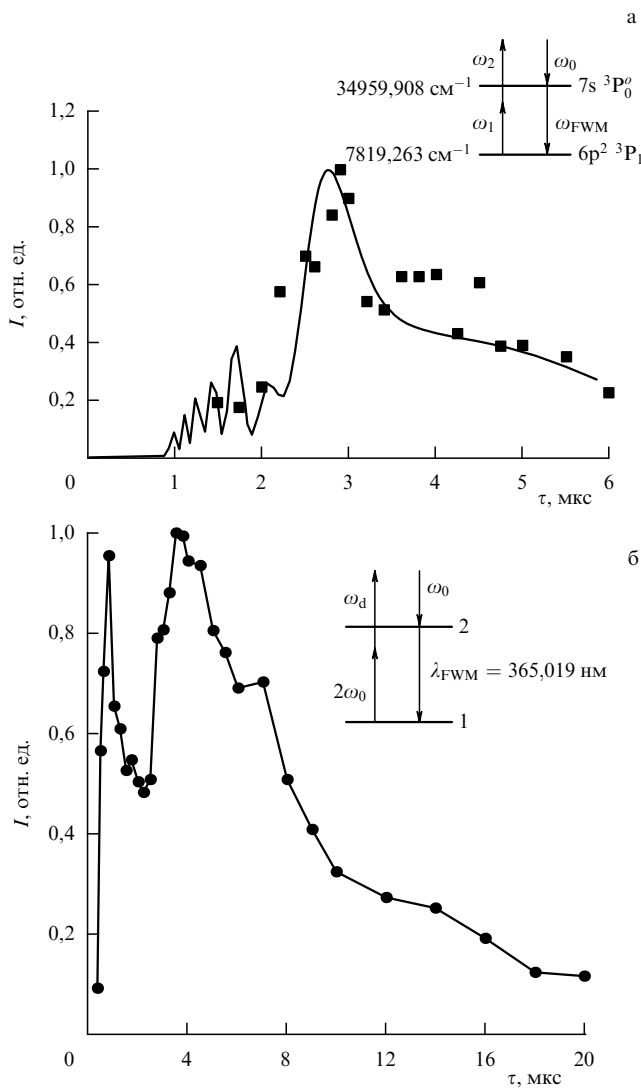


Рис. 3. Интенсивность сигнала ЧВВ в зависимости от времени задержки между импульсами трехцветной накачки и импульсом, создающим плазму, для резонанса гиперкомбинационного типа на частоте перехода между возбужденными состояниями атомов Pb (а) и атомов N (б) в лазерной плазме. Символы — экспериментальные точки, сплошная линия — расчет. На вставках: схемы четырехфотонных процессов для атомов Pb (а) и N (б).

На рисунке 4 представлены временные зависимости фазовой расстройки Δk , резонансного коэффициента поглощения χ_r и характерных пространственных масштабов l_{coh} и l_{FWM} для процесса ЧВВ, идущего по схеме $\omega_{\text{FWM}} = \omega_1 - \omega_0 + \omega_2$ (ω_0 — частота основного излучения Nd:YAG лазера, ω_1 — частота второй гармоники Nd:YAG лазера, ω_2 — частота лазера на красителе) с резонансом гиперкомбинационного типа на частоте перехода между состояниями $7s^3P_0^o$ и $6p^2^3P_1$ атомов свинца (см. вставку на рис. 3а) в лазерной плазме с начальной электронной плотностью 10^{18} см^{-3} и начальной температурой 0,73 эВ, расширяющейся в соответствии с уравнениями точечного взрыва [157–159]. На рисунке показаны также длина взаимодействия l_{int} для некомпланарной схемы ЧВВ, реализованной в работах [160, 161], и длина среды L . Как видно из приведенных зависимостей, длины l_1 , l_2 и l_3 существенно превышают длину взаимодействия для данной некомпланарной

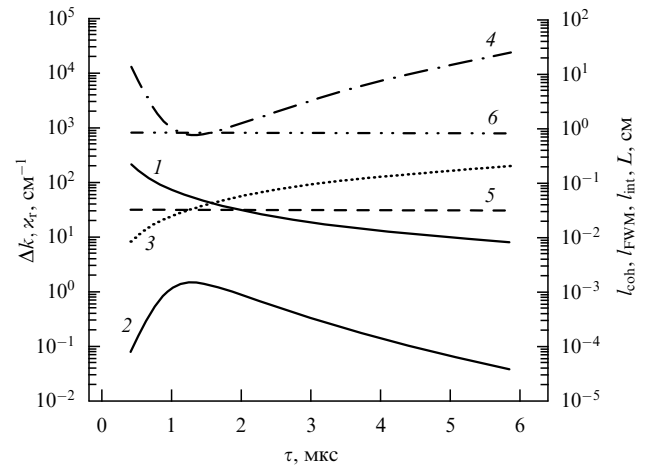


Рис. 4. Временные зависимости фазовой расстройки Δk (1), резонансного коэффициента поглощения χ_r (2) и характерных пространственных масштабов l_{coh} (3) и l_{FWM} (4), рассчитанные в работе [161]. Для сравнения показаны длина взаимодействия узкого интервала вблизи $\tau = 1,3$ мкс. Однако когерентная длина l_{coh} оказывается меньше длины взаимодействия для малых времен задержки. При уменьшении концентрации резонансных атомов и электронов в процессе расширения и остывания плазмы длина l_{coh} увеличивается и становится равной l_{int} при $\tau \approx 1,2$ мкс (точка пересечения кривой 3 и прямой 5 на рис. 4). Данное предсказание поведения поглощения и фазовой расстройки в лазерной плазме согласуется с экспериментальными результатами. Таким образом, для малых τ , когда $l_{\text{int}} > l_{\text{coh}}$ и/или $L \sim l_{\text{FWM}}$, зависимость мощности сигнала ЧВВ P_{FWM} от концентрации резонансных атомов может отличаться от N^2 . При этих условиях процедура извлечения информации о концентрации плазменных частиц из сигнала ЧВВ становится более сложной и должна выполняться с учетом эффектов фазового рассогласования и поглощения. При $\tau > 2,0$ мкс условия (8а) и (8б) оказываются выполненными, мощность P_{FWM} может быть описана квадратичной функцией N и сигнал ЧВВ позволяет непосредственно судить о пространственном распределении и кинетике концентрации резонансных частиц.

схемы ЧВВ во всем диапазоне времен задержки τ между созданием плазмы и ее зондированием. Длина поглощения сигнала ЧВВ l_{FWM} при этом превышает длину среды L всюду за исключением узкого интервала вблизи $\tau = 1,3$ мкс. Однако когерентная длина l_{coh} оказывается меньше длины взаимодействия для малых времен задержки. При уменьшении концентрации резонансных атомов и электронов в процессе расширения и остывания плазмы длина l_{coh} увеличивается и становится равной l_{int} при $\tau \approx 1,2$ мкс (точка пересечения кривой 3 и прямой 5 на рис. 4). Данное предсказание поведения поглощения и фазовой расстройки в лазерной плазме согласуется с экспериментальными результатами. Таким образом, для малых τ , когда $l_{\text{int}} > l_{\text{coh}}$ и/или $L \sim l_{\text{FWM}}$, зависимость мощности сигнала ЧВВ P_{FWM} от концентрации резонансных атомов может отличаться от N^2 . При этих условиях процедура извлечения информации о концентрации плазменных частиц из сигнала ЧВВ становится более сложной и должна выполняться с учетом эффектов фазового рассогласования и поглощения. При $\tau > 2,0$ мкс условия (8а) и (8б) оказываются выполненными, мощность P_{FWM} может быть описана квадратичной функцией N и сигнал ЧВВ позволяет непосредственно судить о пространственном распределении и кинетике концентрации резонансных частиц.

4. Экспериментальная техника

В этом разделе мы рассмотрим основные принципы и технические решения, характерные для экспериментального исследования возбужденных и ионизованных газов методами когерентного ЧВВ (см., например, [122, 123]). На рисунке 5 в обобщенном виде приведена диаграмма экспериментальной установки для подобных исследований, состоящей из зондирующей лазерной системы, лазерной системы для создания плазмы оптического пробоя, системы синхронизации и системы регистрации.

Задающий Nd:YAG генератор зондирующей лазерной системы, работающий в режиме модуляции добротности, позволяет получать излучение с длиной волны $\lambda_0 = 1,06$ мкм (основное излучение), длительностью

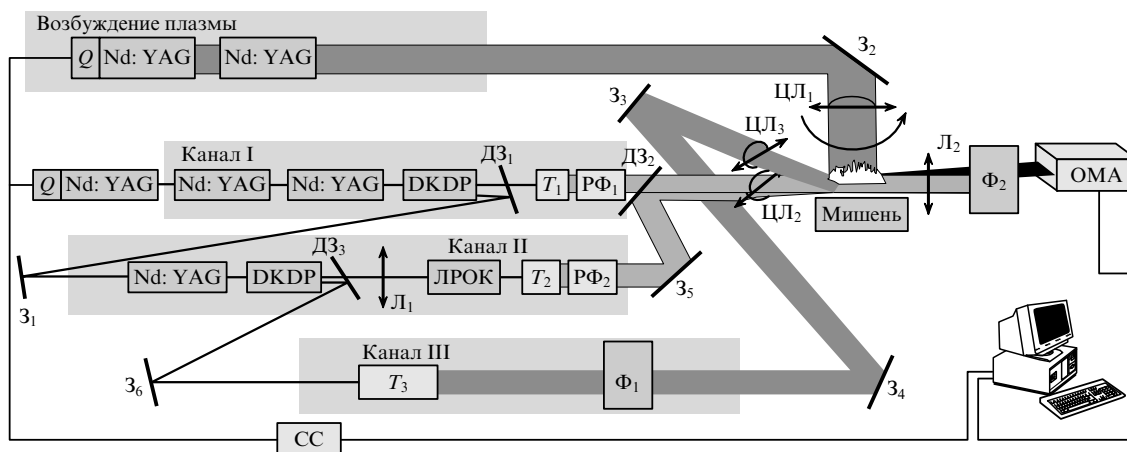


Рис. 5. Диаграмма экспериментальной установки для исследования возбужденных и ионизованных газов методами когерентного ЧВВ в низкотемпературной лазерной плазме [160, 161]: ДЗ₁–ДЗ₃ — дихроичные зеркала, РФ₁, РФ₂ — ромбы Френеля, З₁–З₆ — поворотные зеркала, Т₁–Т₃ — телескопы, Ф₁, Ф₂ — светофильтры, ОМА — оптический многоканальный анализатор, СС — система синхронизации, ЦЛ₁–ЦЛ₃ — цилиндрические линзы, Л₁, Л₂ — сферические линзы.

$\tau_p = 15$ нс. Основное излучение усиливается с помощью двух усилителей канала I на Nd:YAG и преобразуется во вторую гармонику с помощью кристалла CDA. Непреобразованное излучение основной частоты усиливается с помощью усилителя на Nd:YAG канала II и преобразуется во вторую гармонику с помощью кристалла CDA. Излучение на частоте второй гармоники используется для накачки лазера на растворе органического красителя, перестраиваемого в области $\lambda_d = 0,56\text{--}0,60$ мкм. Поляризация излучения с длиной волны $\lambda_0 = 1,06$ мкм остается фиксированной. Поляризация излучения второй гармоники и лазера на растворе органического красителя изменяется с помощью двойного ромба Френеля. Излучение на длине волны λ_0 , излучение второй гармоники $\lambda_0/2 = 0,53$ мкм и излучение лазера на красителе λ_d используются в качестве волн накачки при нелинейно-оптическом взаимодействии, происходящем в плазме оптического пробоя. Максимальные энергии волн накачки с длинами волн λ_0 , λ_1 и λ_2 составляют 120, 40 и 5 мДж соответственно. Максимальная длина плазменного слоя, соответствующая зондированию плазмы в продольной геометрии, составляет 1 см. В экспериментах используются как узкополосный (ширина линии генерации около $0,5\text{ см}^{-1}$), так и широкополосный (ширина линии примерно 200 см^{-1}) лазеры на красителе. Использование широкополосного лазера на красителе позволяет получать ЧВВ-спектр исследуемой среды в достаточно большом диапазоне длин волн за один импульс лазерной системы. Одна из основных проблем широкополосной ЧВВ-спектроскопии связана с тем обстоятельством, что использование широкополосного лазера на красителе обычно приводит к значительным погрешностям измерений из-за флуктуаций спектрального состава излучения [162, 163]. Возможным способом решения этой проблемы является использование безмодового лазера на красителе, предложенного в работе [164] и примененного в дальнейшем для мультиплексной поляризационной спектроскопии плазмы и пламен [165–167].

Система создания плазмы оптического пробоя собрана на основе генератора на Nd:YAG в режиме модуляции добротности. Излучение с длиной волны

$\lambda_0 = 1,06$ мкм усиливается с помощью каскада усиления и фокусируется на поверхность мишени цилиндрической линзой с фокусным расстоянием $f = 10$ см. Образующаяся в результате пробоя на поверхности искра имеет цилиндрическую форму и ориентирована параллельно направлению распространения зондирующего пикосекундного излучения. В зависимости от энергии лазерного излучения образующаяся в условиях наших экспериментов плазма имеет электронную плотность $N_e \approx 10^{16}\text{--}10^{19}\text{ см}^{-3}$ и электронную температуру $T_e \approx 1\text{--}10$ эВ.

Система синхронизации позволяет варьировать временную задержку между лазерными импульсами накачки и импульсом, используемым для создания плазмы оптического пробоя. Таким образом, изменяя временную задержку, можно исследовать различные стадии разлета плазмы оптического пробоя.

При исследовании спектральных характеристик лазерной плазмы сигнал ЧВВ проходит через монохроматор и регистрируется с помощью оптического многоканального анализатора, сопряженного с персональным компьютером. Такая система регистрации позволяет записывать спектры широкополосного ЧВВ за один импульс лазерной системы, что является чрезвычайно важным в условиях наличия неустраимых флуктуаций параметров плазмы от импульса к импульсу [122]. Исследование пространственного распределения плазменных частиц производится путем построения изображения сигнала ЧВВ, выделенного при помощи системы фильтров, непосредственно на оптическом многоканальном анализаторе.

5. Резонансы гиперкомбинационного типа как способ увеличения эффективности ЧВВ в лазерной плазме

В последнее время проблема получения когерентного коротковолнового излучения методом оптического смешения частоты интенсивно исследуется многими научными группами. В частности, генерация оптических гармоник высокого порядка в струях инертных газов с использованием мощных лазерных импульсов ультрако-

роткой длительности позволяет преобразовывать лазерное излучение в область дальнего ультрафиолета и мягкого рентгеновского излучения [131–141]. Активно обсуждается возможность использования в качестве нелинейной среды наряду с инертными газами, низкотемпературной лазерной плазмы. Как известно уже в течение достаточно длительного времени, лазерная плазма позволяет достичь относительно высокой эффективности преобразования излучения Nd:YAG лазера в третью гармонику [36, 37]. Недавно выполненные эксперименты [45–48] показывают, что плазма оптического пробоя в газах позволяет осуществить эффективную когерентную генерацию третьей гармоники с высокой частотой повторения (1 кГц) при использовании фемтосекундных импульсов умеренной интенсивности (порядка 10^{15} Вт см⁻²).

Роль возбужденных состояний атомов и ионов при генерации оптических гармоник и смещении частоты в газах, в частности возможность увеличения эффективности преобразования за счет промежуточных резонансов и улучшения условий фазового согласования в плазме за счет вклада связанных состояний, исследовалась теоретически [124, 168] и экспериментально [156], в том числе методом четырехфотонной спектроскопии [117]. Возможность использования возбужденных состояний атомов и ионов для генерации перестраиваемого по длине волны излучения в УФ и ВУФ диапазонах была убедительно продемонстрирована в целой серии экспериментов (например, [169–171]).

В экспериментах [116, 117, 122, 123, 160, 161] использование промежуточных резонансов гиперкомбинационного типа позволило добиться существенного увеличения эффективности когерентного ЧВВ в плазме и, тем самым, кардинально повысить чувствительность нелинейно-оптической диагностики плазмы, основанной на двух- и трехчастотном ЧВВ. В частности, в работах [122, 123] исследовался переход между возбужденными состояниями атома азота, соответствующий спектральной линии на 365,019 нм. При настройке комбинации частот $2\omega_0 + \omega_d - \omega_0$ (см. вставку на рис. 3б) в резонанс с переходом между возбужденными состояниями атома азота наблюдался интенсивный резонанс в спектре сигнала ЧВВ. Необходимо отметить, что при определенных выше условиях экспериментов сигнал в спектре свечения, соответствующий данному резонансу, был довольно слабым (амплитуда такого сигнала примерно в два раза превышала уровень засветки). Вместе с тем эффективность четырехволнового взаимодействия была такова, что ЧВВ-сигнал мог наблюдаться невооруженным глазом на экране после фильтра УФС-2.

Процедура оптимизации эффективности нелинейно-оптического преобразования излучения предполагала выбор оптимального времени задержки между созданием и зондированием плазмы и оптимальной геометрии фокусировки пучков трехчастотной накачки. На рисунке 3б показана зависимость интенсивности сигнала ЧВВ от времени задержки между импульсами трехцветной накачки и импульсом, создающим плазму. Как видно из приведенных экспериментальных данных, надлежащим выбором времени задержки можно существенно увеличить эффективность нелинейно-оптического преобразования частоты.

Резонансное увеличение эффективности процесса ЧВВ наблюдается в спектральной области шириной

примерно 0,4 нм. Эффективность преобразования в излучение на длине волны 365 нм в максимуме перестроечной кривой составляла 0,2% по отношению к энергии лазера на красителе. Резонансный выигрыш в центре перестроечной кривой по отношению к эффективности нерезонансного ЧВВ, измеренной для длины волны 363 нм, составил около 10^3 [129]. При этом не наблюдается сколько-нибудь заметного насыщения эффективности преобразования частоты как функции интенсивностей волн накачки, что позволяет рассчитывать на то, что эффективность данного процесса может быть повышена при использовании импульсов пикосекундной длительности.

6. Четырехфотонная спектрохронография возбужденных состояний атомов и ионов

Метод когерентной четырехфотонной спектрохронографии оказывается эффективным способом получения информации о спектральных свойствах и временной эволюции возбужденных атомарных и ионных систем [22, 24, 116, 117]. В частности, использование схем когерентного ЧВВ с резонансами комбинационного и гиперкомбинационного типа для исследования временных зависимостей спектральных параметров атомов и ионов в плазме оптического пробоя [116, 117] и газоразрядной плазме [14, 22] позволяет определить основные закономерности и измерить характеристики релаксации населенностей возбужденных состояний атомов и ионов.

В ранних экспериментах по когерентной ЧВВ-спектроскопии атомов, выполнявшихся с атомами натрия в пламени [58], использовался метод ВЧВВ. Данный подход дает важную спектроскопическую информацию о свойствах возбужденной атомарной системы и, как было показано в последующих экспериментах [34], выполнявшихся с использованием широких пучков, оказывается удобным методом визуализации пространственного распределения параметров возбужденных атомов в пламени. Схемы невырожденного по частоте когерентного ЧВВ, включая ЧВВ с резонансами комбинационного и гиперкомбинационного типа, позволяют выполнять измерения для атомарных и ионных переходов в широком спектральном диапазоне и обеспечивают богатые возможности поляризационного управления как формой спектра изолированного резонанса, так и формой спектра группы близких по частоте атомарных переходов (поляризационная техника когерентного ЧВВ обсуждается в разделе 7). В связи с этим ЧВВ с комбинационными и гиперкомбинационными резонансами представляется удобной схемой спектрохронографического анализа возбужденных атомов и ионов. Различные схемы когерентной четырехфотонной спектроскопии атомов с комбинационными и гиперкомбинационными резонансами активно применяются в последнее время для прикладных исследований, включая исследование процессов, определяющих эффективность работы лазеров на парах меди и бромида меди [14, 22]. Использование спектроскопии КАРС атомов брома и йода позволяет получать также важную информацию о распределении температуры и концентрации частиц в работающих вольфрам-галогенных и газоразрядных лампах [172]. В этом разделе мы подробнее остановимся на методике таких измерений.

6.1. Лазерная плазма

Первые эксперименты по четырехфотонной спектроскопии атомов в плазме оптического пробоя на поверхности твердой мишени были выполнены в работе [103]. Плазма в этих экспериментах создавалась импульсами излучения лазера на гранате с неодимом длительностью 15 нс и энергией 160 мДж. В качестве бигармонической накачки использовались световые пучки на частоте ω_1 второй гармоники лазера на гранате с неодимом и излучение перестраиваемого по частоте ω_2 лазера на красителе. При настройке разности частот $\omega_1 - \omega_2$ в резонанс с частотой перехода между состояниями $5p^2\ ^3P_2$ и $5p^2\ ^3P_1$ тонкой структуры атома олова $\Omega = 1736\text{ см}^{-1}$ наблюдался интенсивный резонанс в спектре КАРС, позволявший исследовать кинетику населенности возбужденных состояний атома олова.

Данный эксперимент наглядно продемонстрировал, что схемы когерентного ЧВВ с комбинационными резонансами оказываются эффективными на поздних стадиях разлета лазерной плазмы и позволяют исследовать возбужденные состояния атомов с не слишком высокими энергиями. Для исследования ранних стадий разлета плазмы, когда важно иметь возможность получать спектрохронографическую информацию о высоколежащих состояниях атомов и ионов, в целом ряде случаев более удобными оказываются когерентные процессы ЧВВ с резонансами гиперкомбинационного типа [24]. Спектрохронографические и эллипсометрические исследования атомов и ионов различной кратности в лазерной плазме с использованием когерентного ЧВВ с гиперкомбинационными резонансами были выполнены в работах [116–120]. Подход, основанный на использовании когерентного ЧВВ с резонансом гиперкомбинационного типа оказался достаточно эффективным как для изучения атомов и ионов элементов мишени, так и для диагностики атомов и ионов элементов окружающего газа и атомарно-ионной компоненты плазмы оптического пробоя, создаваемого в кюветах с инертными газами [24, 173]. Использование когерентного ЧВВ с гиперкомбинационными резонансами позволяет получить информацию о распределении населенностей по возбужденным состояниям атомов и ионов в лазерной плазме и изменении распределения населенностей в процессе разлета плазмы, а также о пространственном распределении атомов и ионов в плазме.

На рисунке 6 представлены временные зависимости интенсивности свечения и сигнала ЧВВ, наблюдавшихся на длине волны 504,5 нм, соответствующей частотам переходов между возбужденными состояниями $3s\ ^3P_2^o$ и $3p\ ^3S_1$ иона азота N II [116, 117]. Серия аналогичных резонансов в спектре ЧВВ была зарегистрирована в области 500,1–500,5 нм, в которой проявлялись переходы $3p\ ^3D_J \rightarrow 3d\ ^3F_{J+1}^o$ иона N II ($J = 1, 2, 3$, длины волн $\lambda_1 = 500,113\text{ нм}$, $\lambda_2 = 500,147\text{ нм}$, $\lambda_3 = 500,514\text{ нм}$). Интенсивность сигнала ЧВВ в максимуме для всех спектральных линий была на 1–2 порядка выше интенсивности свечения. Необходимо отметить также, что кинетика интенсивности сигнала ЧВВ с гиперкомбинационным резонансом в распадающейся плазме существенно отличается от кинетики интенсивности атомарных и ионных линий свечения плазмы (см. рис. 6). В частности, эффективность когерентного ЧВВ остается достаточно высокой для надежной диагностики атомарно-ионной компоненты плазмы в условиях, когда свечение атомарных и

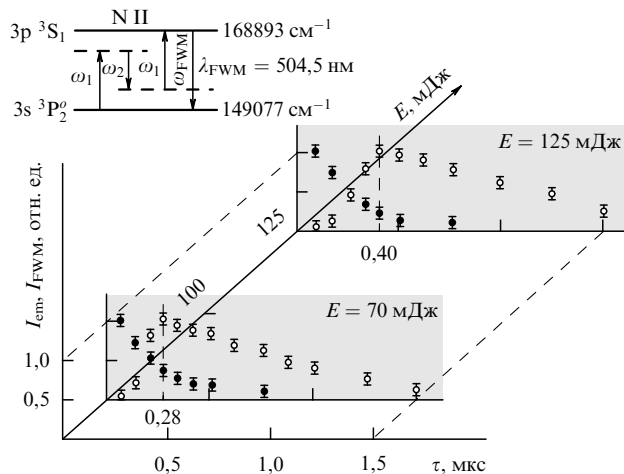


Рис. 6. Зависимости интенсивности свечения I_{em} (●) и сигнала ЧВВ с резонансом гиперкомбинационного типа I_{FWM} (○) от времени задержки между созданием и четырехфотонным зондированием плазмы для переходов $3s\ ^3P_2^o \rightarrow 3p\ ^3S_1$ и иона N II в плазме оптического пробоя. Зависимости измерены при энергии излучения, создающего плазму, $E = 70\text{ мДж}$ и 125 мДж . Схема процесса КАРС приведена на вставке.

ионных линий плазмы уже не может быть зарегистрировано. Данное различие во временных зависимостях когерентного и некогерентного сигналов связано с характером изменения населенностей возбужденных состояний атомов и ионов в процессе распада плазмы.

Основные особенности наблюдаемых временных зависимостей интенсивности сигнала ЧВВ и свечения плазмы удастся качественно воспроизвести в рамках квазиравновесной радиационно-столкновительной модели разлетающейся плазмы на основе теории модифицированного диффузионного приближения (см., например, [174]) с учетом выхода линейчатого излучения из плазмы.

6.2. Газоразрядная плазма

Экспериментальные исследования атомарной компоненты газоразрядной плазмы активной среды лазеров на парах меди и бромида меди с малыми добавками водорода методами когерентной четырехфотонной спектроскопии были выполнены в работах [14, 22]. Проведенные эксперименты показали, что в спектре ЧВВ проявляются резонансы, связанные с рассеянием комбинационного и гиперкомбинационного типа на возбужденных и автоионизационных состояниях атомов в газоразрядной плазме. Изучение кинетики рассеянного сигнала дало возможность получить данные о процессах релаксации населенностей возбужденных состояний атомов.

Измерения производились в газоразрядных трубках (ГРТ) лазеров на парах меди и бромида меди. Процессы релаксации населенности метастабильных состояний в газоразрядной плазме активных лазерных сред существенно влияют на характеристики генерации лазеров на парах металлов [175], поэтому исследование данных процессов представляет собой актуальную задачу. Метод когерентной четырехфотонной спектроскопии с гиперкомбинационными резонансами использовался для исследования процесса релаксации возбужденных метастабильных состояний атомов меди в активной

среде лазера на парах бромида меди с добавками водорода. Исследовались резонансы в спектре ЧВВ, проявляющиеся при совпадении частоты сигнала ЧВВ с частотой перехода ${}^2P_{3/2}^o \rightarrow {}^2D_{5/2}$ (резонанс на частоте сигнала ЧВВ, $\lambda_{\text{FWM}} = 510,5$ нм), а также частоты излучения лазера на красителе с частотой перехода ${}^2P_{1/2}^o \rightarrow {}^2D_{3/2}$ (резонанс на длине волны излучения лазера на красителе, $\lambda_2 = 578,2$ нм). Характерные времена распада метастабильных состояний атомов меди в активной среде лазера на парах бромида меди ($\tau_1 = 1,0 \pm 0,2$ мкс для состояния ${}^2D_{3/2}$ и $\tau_2 = 3,0 \pm 0,4$ мкс для состояния ${}^2D_{5/2}$ при средней мощности, вкладываемой в плазму разряда, равной 1,3 кВт), измеренные в работах [14, 22], в пределах ошибок эксперимента совпадают с данными, полученными другими методами [176].

В экспериментах в ГРТ лазера на парах бромида меди были обнаружены резонансы в спектре сигнала ЧВВ, связанные с переходами между возбужденными электронными состояниями атомов брома в плазме разряда. Резонансы наблюдались на длинах волн сигнала ЧВВ $\lambda_{\text{FWM}} = 468,1$ нм, что соответствует резонансу частоты излучения накачки ($\lambda_2 = 616,1$ нм) с электронным переходом $7d^4D_{7/2} \rightarrow 5p^4D_{7/2}^o$ (схема процесса на рис. 7а) и $\lambda_{\text{FWM}} = 463,0$ нм, что соответствует резонансу антистоксовой частоты с переходом $5s^4P_{1/2} \rightarrow 5p^2P_{3/2}^o$ (схема на рис. 7б). На рисунках 7а, б приведены зависимости интенсивности антистоксова излучения от времени задержки и средней мощности, вкладываемой в плазму разряда, а также схемы исследуемого процесса ЧВВ. При

фиксированном времени задержки, равном 100 нс, была измерена зависимость интенсивности сигнала ЧВВ для возбужденных атомов Вг от средней мощности, вкладываемой в плазму разряда (см. вставки на рис. 7а, б).

Как показано в работах [176, 177], существенное влияние на работу лазера на парах бромида меди оказывают малые добавки водорода. Метод когерентного ЧВВ позволяет исследовать влияние малых добавок водорода на кинетику процессов заселения и опустошения возбужденных состояний атомов в активной среде лазера на парах бромида меди. Для этой цели рассеянный сигнал регистрировался на длинах волн $\lambda_{\text{FWM}} = 467,4$ нм (рис. 7в) и $\lambda_{\text{FWM}} = 465,1$ нм (рис. 7г) в плазме разряда лазера на парах бромида меди как с добавками водорода, так и без них. Измерения проводились с двумя одинаковыми газоразрядными трубками при средней мощности, вкладываемой в разряд, 0,7 кВт. Как видно на рис. 7в, г, скорость возрастания интенсивности сигнала КАРС падает приблизительно в 2 раза при добавлении в плазму лазера на парах CuBr 0,3 Торр водорода. Так как эффективность нелинейно-оптического процесса определяется квадратом разности населенностей состояний, на которых происходит рассеяние, то результаты проведенных измерений позволяют получить существенную для моделирования процессов в активной среде лазера информацию о влиянии малых добавок водорода на скорость возбуждения и кинетику относительных населенностей высоколежащих состояний в газоразрядной плазме.

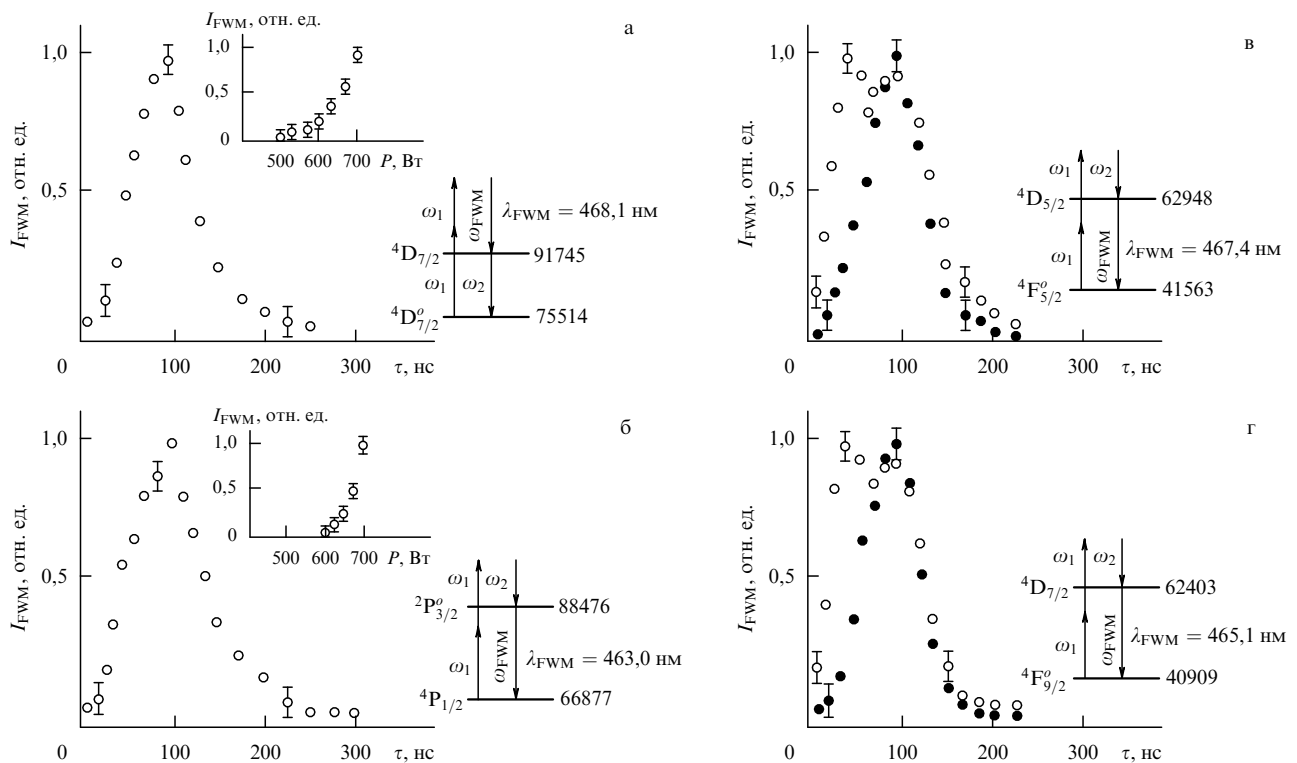


Рис. 7. Кинетика интенсивности сигнала ЧВВ с гиперкомбинационным резонансом на возбужденных состояниях атомов брома на длине волны $\lambda_{\text{FWM}} = 468$ нм (а) и $\lambda_{\text{FWM}} = 463,0$ нм (б), а также атомов меди на длине волны $\lambda_{\text{FWM}} = 467,4$ нм (в) и $\lambda_{\text{FWM}} = 465,1$ нм (г). Светлые и темные точки показывают сигнал ЧВВ из активной среды лазера на парах бромида меди в отсутствие и в присутствии 0,3 Торр примеси водорода. Показаны также схемы четырехфотонных процессов, использованных для исследования плазмы газового разряда. На вставках представлены зависимости интенсивности сигнала ЧВВ от средней мощности, вкладываемой в плазму разряда (а, б). Энергии уровней даны в см^{-1} .

В плазму активной среды лазера на парах металлов вводятся большие тепловые средние мощности при высоких частотах повторения импульсов (до 20 кГц), что приводит к нагреву газа до высоких температур, причем температурные профили имеют существенные радиальные градиенты по сечению газоразрядной трубки [178]. Это ведет к возникновению неоднородностей в пространственном распределении рабочих атомов металла и буферного газа [178]. Благодаря высокому временному и пространственному разрешению методы четырехфотонной спектроскопии могут служить эффективным средством исследования пространственного распределения возбуждения атомов по сечению и вдоль ГРТ лазера на парах металлов. В экспериментах [22] исследовалось распределение интенсивности сигнала ЧВВ по сечению ГРТ лазера на парах бромида меди с малыми добавками водорода. На рисунке 8 приведены интенсивности сигналов когерентного ЧВВ с участием возбужденных атомов меди CuI в зависимости от расстояния до оси газоразрядной трубки на длинах волн $\lambda_{\text{FWM}} = 467,4$ нм и $\lambda_{\text{FWM}} = 465,1$ нм (рис. 8а, б), а также аналогичные распределения для возбужденных атомов брома ВгI (рис. 8в, г) при фиксированном времени задержки 100 нс.

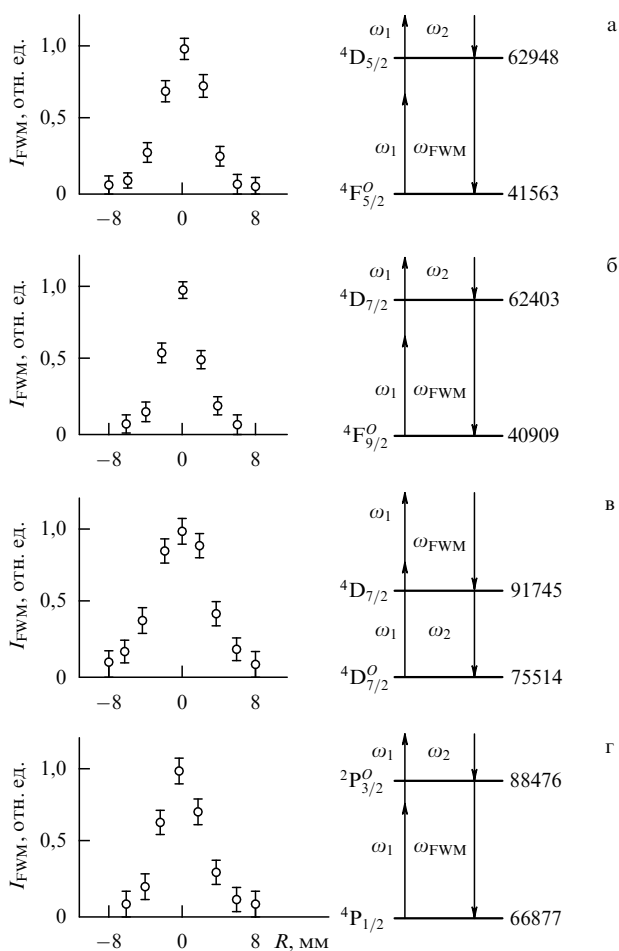


Рис. 8. Интенсивность сигнала ЧВВ с гиперкомбинационными резонансами на переходах $^4\text{F}_{5/2}^o \rightarrow ^4\text{D}_{5/2}$ (а) и $^4\text{F}_{9/2}^o \rightarrow ^4\text{D}_{7/2}$ (б) между возбужденными состояниями атомов меди, а также на переходах $^4\text{D}_{7/2}^o \rightarrow ^4\text{D}_{7/2}$ (в) и $^4\text{P}_{1/2} \rightarrow ^2\text{P}_{3/2}^o$ (г) между возбужденными состояниями атомов брома как функция расстояния от оси газоразрядной трубки R при фиксированном времени задержки 100 нс. Энергии уровней даны в см^{-1} .

Схема четырехфотонной спектроскопии с резонансом комбинационного типа (двухчастотное КАРС) позволяет исследовать возбужденные состояния конфигурации $3d^9 4s 4p$ атома меди в активной среде лазера на парах меди. В частности, в работе [22] наблюдались резонансы в спектре КАРС на длинах волн антистоксова сигнала $\lambda_a = 510, 508$ и 512 нм, соответствующих резонансу комбинационной частоты $\omega_1 - \omega_2$ с частотами комбинационных переходов $^4\text{P}_{1/2}^o \rightarrow ^4\text{P}_{3/2}^o$, $^4\text{D}_{5/2}^o \rightarrow ^4\text{D}_{7/2}^o$, $^4\text{F}_{3/2}^o \rightarrow ^4\text{F}_{5/2}^o$ атома меди, соответственно.

Эксперименты, выполненные в работах [14, 22], показали, что когерентная четырехфотонная спектроскопия с резонансами комбинационного и гиперкомбинационного типа оказывается удобным средством диагностики газоразрядной плазмы, в том числе газоразрядной плазмы активных сред лазеров на парах металлов. Техника четырехфотонной спектроскопии, обладающая высоким пространственным, временным и спектральным разрешением, развитой методикой поляризационных измерений, позволяет получить существенную информацию о параметрах плазмы активной среды газоразрядных лазеров и вместе с традиционными методами линейной спектроскопии может быть использована для улучшения параметров газоразрядных лазеров.

7. Поляризационная четырехфотонная спектроскопия и когерентная эллипсометрия атомов и ионов

Методы поляризационной четырехфотонной спектроскопии оказываются эффективным средством решения ряда важных задач, связанных с исследованием атомарных и молекулярных резонансов (см. табл. 1). В частности, выбирая надлежащим образом поляризации световых волн накачки, а также управляя состоянием поляризации регистрируемого сигнала, можно значительно понизить уровень когерентного фона, связанного с нерезонансным четырехволновым взаимодействием, и существенно повысить тем самым чувствительность четырехфотонной спектроскопии [3, 122, 123]. При определенных условиях поляризационная техника спектроскопии ЧВВ позволяет независимым образом измерять действительную и мнимую части соответствующей нелинейно-оптической восприимчивости третьего порядка [179], разрешать близкие линии в спектрах ЧВВ молекул [3, 180] и атомов [26], увеличивать контрастность дисперсионной кривой нелинейно-оптической восприимчивости вблизи комбинационных резонансов [181, 182], исследовать интерференцию колебательных комбинационных резонансов с однофотонными и двухфотонными электронными резонансами в спектрах КАРС [183], измерять характеристики комбинационных резонансов для сложных молекул [184] и т.д. Методы поляризационной четырехфотонной спектроскопии активно развиваются уже в течение четверти столетия (см., например, [32, 87, 185–192]). Подробный обзор поляризационных методик, используемых для целей молекулярной спектроскопии, содержится в книге [3].

Поляризационные характеристики излучения, генерируемого в результате ЧВВ, определяются свойствами нелинейной, кубической по внешнему полю поляризации среды. Важным для анализа поляризационных свойств сигнала ЧВВ является учет интерференции резонансных

компонент сигнала ЧВВ, связанных с определенными (молекулярными или атомными) переходами в среде, и нерезонансного когерентного фона. В частности, именно интерференция резонансной составляющей ЧВВ с нерезонансным когерентным фоном обеспечивает возможность полной записи спектральной информации об исследуемом резонансе, включая информацию о фазе резонансного ЧВВ [53, 118].

Когерентная эллипсометрия, т.е. измерение параметров эллипса поляризации сигнала ЧВВ — одна из широко используемых разновидностей поляризационной четырехфотонной спектроскопии. Как показано в монографии [3], для линий лоренцевой формы когерентная эллипсометрия позволяет в ряде важных случаев решить задачу независимого исследования частотных зависимостей действительной и мнимой частей нелинейно-оптической кубической восприимчивости. В работе [193] данный подход был обобщен на случай автоионизационных состояний, описываемых контуром Фано, и на случай слабого резонанса с произвольной формой линии, наблюдаемого на фоне сильного нерезонансного сигнала. В работах [118–120] были развиты основы когерентной эллипсометрии нелоренцевых линий.

Плазменные и сильно возбужденные газовые среды — новая и весьма перспективная область приложения поляризационных методов когерентного ЧВВ. В данном разделе мы подробнее остановимся на поляризационной методике разрешения близких линий произвольной формы в спектрах ЧВВ в плазме оптического пробоя и технике получения информации об относительной фазе резонансных составляющих ЧВВ сигналов. Мы рассмотрим также возможность восстановления частотных и временных зависимостей интерферирующих составляющих нелинейной поляризации среды третьего порядка на основании данных когерентной эллипсометрии.

7.1. Поляризационные свойства сигнала когерентного ЧВВ из плазмы оптического пробоя

В общем случае параметры сигнала когерентного ЧВВ определяются свойствами кубической по полю поляризации среды, наведенной пучками накачки на частоте сигнала ЧВВ. Наряду с интенсивностью сигнала ЧВВ

$$I \propto |P_x|^2 + |P_y|^2, \quad (9)$$

где P_x и P_y — x - и y -компоненты нелинейной поляризации среды, соответствующей рассматриваемому процессу ЧВВ, реально измеримыми параметрами являются эллиптичность χ и угол наклона большой оси ψ эллипса поляризации сигнала ЧВВ. Параметры эллипса поляризации сигнала ЧВВ могут быть выражены через декартовы компоненты суммарной нелинейной поляризации среды следующим образом [3]:

$$\tan 2\psi = \tan 2\beta \cos \delta, \quad (10a)$$

$$\sin 2\chi = \sin 2\beta \sin \delta, \quad (10b)$$

где β и δ определяются формулами

$$\tan \beta = \left| \frac{P_y}{P_x} \right|, \quad (11a)$$

$$\delta = \arg P_y - \arg P_x. \quad (11b)$$

Как видно из выражений (9)–(11), в отличие от спектра интенсивности ЧВВ сигнала, спектральные зависимости параметров эллипса поляризации сигнала ЧВВ содержат информацию о фазе резонансной компоненты ЧВВ. Благодаря этому обстоятельству, имеется возможность получения информации о действительной и мнимой составляющих нелинейной резонансной поляризации среды на основании измеренных спектральных зависимостей параметров эллипса поляризации сигнала ЧВВ.

Исследование свойств поляризации сигнала четырехфотонного рассеяния света в плазме оптического пробоя показывает, что возбуждение атомарной системы приводит не только к увеличению эффективности многофотонных процессов за счет заселения возбужденных состояний атомов и ионов [152], но и к изменению состояния поляризации сигнала четырехфотонного рассеяния [51]. В частности, как показали эксперименты [194], поляризация ЧВВ сигнала даже вдали от резонансов является эллиптической. Данный факт свидетельствует о том, что нелинейная поляризация среды третьего порядка вдали от рассматриваемого резонанса не может быть представлена в виде действительного вектора, как это обычно делается при анализе четырехфотонных спектров в отсутствие взаимодействия между комбинационными резонансами и электронными состояниями (см. [3]). Отметим, что необходимость учета мнимой части нерезонансной составляющей нелинейно-оптической кубической восприимчивости в условиях двухфотонного резонанса или двух близких комбинационных мод была отмечена еще в классической работе Левенсона и Бломбергена [186].

Таким образом, существенные особенности сигнала ЧВВ в возбужденных газах и плазме связаны с наличием эллиптически поляризованной компоненты кубической поляризации среды, характеризующейся слабой зависимостью от частоты. При исследовании спектров и параметров поляризации сигнала четырехфотонного рассеяния в данных условиях необходимо принимать во внимание интерференцию различных составляющих нелинейно-оптической восприимчивости.

Рассмотрим четырехфотонный процесс, идущий по схеме $\omega_{\text{FWM}} = \omega_1 - \omega_0 + \omega_2$ (для традиционной постановки экспериментов [118–120, 122, 123] ω_{FWM} — частота сигнала четырехволнового смешения, ω_0 — частота основного излучения Nd:YAG лазера, ω_1 — частота второй гармоники Nd:YAG лазера, ω_2 — частота лазера на красителе). Вектор нелинейной поляризации среды $\mathbf{P}^{(3)}(\omega_{\text{FWM}})$, соответствующий данному процессу, можно представить в виде суммы

$$\frac{\mathbf{P}^{(3)}(\omega_{\text{FWM}})}{E_1 E_2 E_0^*} = \mathbf{P}^{(3)\text{NR}} + \mathbf{P}^{(3)\text{QR}}, \quad (12)$$

где

$$\mathbf{P}^{(3)\text{NR}} = 2\chi_{1111}^{(3)\text{NR}} [\mathbf{e}_2(\mathbf{e}_1\mathbf{e}_0^*) + \mathbf{e}_1(\mathbf{e}_2\mathbf{e}_0^*) + \mathbf{e}_0^*(\mathbf{e}_2\mathbf{e}_1)] \quad (13)$$

— вектор нерезонансной нелинейной поляризации среды, \mathbf{e}_0 , \mathbf{e}_1 , \mathbf{e}_2 — единичные векторы (в общем случае комплексные) поляризации плоских волн с частотами ω_0 , ω_1 , ω_2 соответственно, $\mathbf{P}^{(3)\text{QR}}$ описывает вклад в нелинейную поляризацию среды множества квазирезонансных переходов между возбужденными состояниями

и состояниями непрерывного спектра в лазерной плазме. Предполагается, что нерезонансная компонента тензора кубической восприимчивости $\chi_{1111}^{(3)NR}$ описывается действительной величиной.

Остановимся подробнее на свойствах вектора $\mathbf{P}^{(3)QR}$, который может рассматриваться как важная характеристика возбужденной газовой среды. Заметим, что эта величина не описывает вклад какого-либо конкретного атомарного или ионного резонанса, а относится ко всему множеству переходов между возбужденными состояниями, частоты которых близки частотам падающих световых волн (или их линейным комбинациям). Другими словами, когда речь идет о каком-либо конкретном резонансе, данная величина может рассматриваться как медленно меняющаяся функция частоты по сравнению с истинно резонансной составляющей нелинейно-оптической поляризации третьего порядка. Учитывая аномалии поляризационных свойств сигнала четырехфотонного рассеяния в возбужденных газовых средах, удобно дать определение составляющей $\mathbf{P}^{(3)QR}$ в терминах параметров поляризации излучения. Данная величина может быть интерпретирована как часть кубической поляризации среды, характеризующаяся слабой частотной зависимостью и имеющая направление (состояние поляризации), в общем случае отличное от состояния поляризации, описываемого соотношением (13).

Очевидно, что информация о квазирезонансной составляющей нелинейно-оптической восприимчивости среды чрезвычайно важна для поляризационных измерений, выполняемых по схеме ЧВВ в возбужденных и ионизованных газах. В связи с этим обсудим подробнее имеющиеся экспериментальные данные и экспериментальную методику когерентной ЧВВ-эллипсометрии возбужденных газов и плазмы в условиях, когда необходимо принимать во внимание особенности поляризации когерентного фона.

Поляризационные измерения, выполненные для процесса двухчастотного ЧВВ (рис. 9), показывают, что в отсутствие лазерной плазмы сигнал ЧВВ линейно поляризован [194]. Для угла θ между вектором поляризации сигнала ЧВВ и вектором поляризации излучения на частоте ω_1 строго выполняется соотношение $\tan \theta = 1/3 \tan \varphi$, где φ — угол между векторами поляризации волн накачки.

При включении системы возбуждения плазмы наблюдается существенное (более чем на порядок) возрастание интенсивности сигнала ЧВВ [194]. Одновременно наблюдалось изменение состояния поляризации излучения на частоте ω_{FWM} . Измерения с помощью фазовых пластин позволяют убедиться в том, что сигнал ЧВВ из лазерной плазмы имеет эллиптическую поляризацию. На рисунках 9а, б приведены отношение полуосей эллипса поляризации $\tan \chi$, где χ — эллиптичность, и угол наклона главной оси эллипса поляризации ψ , измеренный относительно поляризации сигнала нерезонансного ЧВВ в отсутствие плазмы оптического пробоя. Как видно из приведенных графиков, параметры эллипса поляризации существенно зависят от времени задержки между возбуждением и зондированием плазмы. Заметим, что поведение исследуемых характеристик поляризации коррелирует с временной зависимостью интенсивности сигнала ЧВВ в условиях оптического пробоя (рис. 9в). При больших временах задержки поляризация сигнала становится линейной, а интенсивность излучения

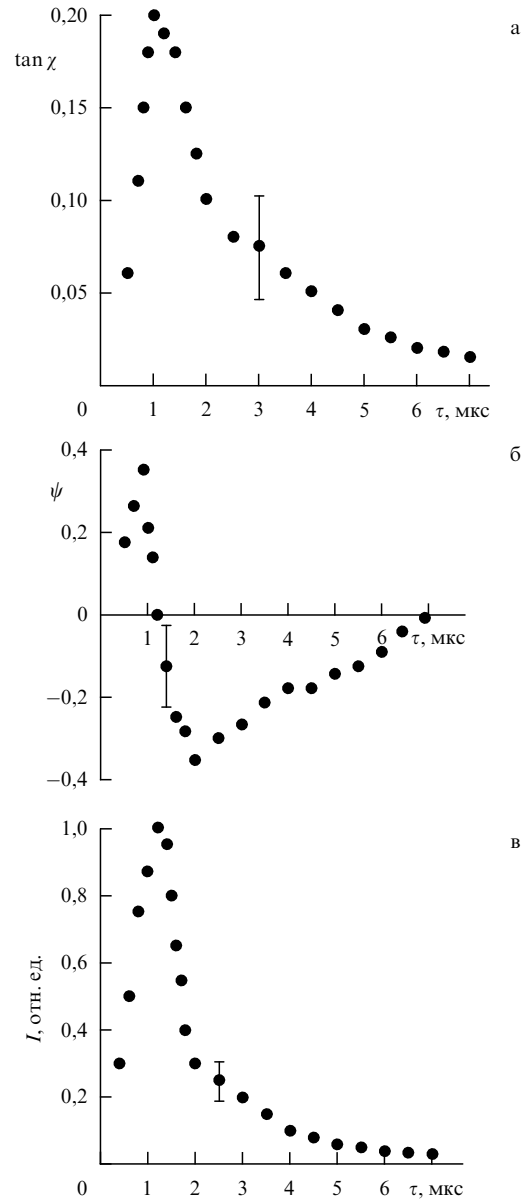


Рис. 9. Зависимость параметров эллипса поляризации $\tan \chi$ (а) и ψ (б) и интенсивности сигнала ЧВВ (в) от времени задержки между моментом создания лазерной плазмы и моментом зондирования.

ЧВВ выходит на уровень интенсивности сигнала нерезонансного ЧВВ из воздуха.

Изменение состояния поляризации сигнала четырехфотонного рассеяния в условиях оптического пробоя может быть объяснено влиянием интерференции различных компонент тензора нелинейной восприимчивости $\chi^{(3)}$, в том числе вкладом квазирезонансных связанных состояний атомов и ионов, заселяемых в условиях оптического пробоя [25, 26], и влиянием состояний непрерывного спектра [121]. В пользу такой интерпретации полученных результатов свидетельствует качественная и количественная корреляция временных зависимостей интенсивности сигнала четырехфотонного рассеяния и характеристик поляризации этого сигнала.

Результаты экспериментов [194] показывают, что возбуждение атомарной системы приводит к изменению состояния поляризации сигнала четырехфотонного рас-

сеяния. Чувствительность параметров эллипса поляризации сигнала четырехфотонного рассеяния к квазирезонансным компонентам нелинейной оптической восприимчивости, включая вклад состояний непрерывного спектра, позволяет предложить рассмотренную выше экспериментальную технику в качестве эффективной схемы когерентной эллипсометрии квазирезонансных атомарных систем.

7.2. Разделение мнимой и действительной части кубической восприимчивости

Как упоминалось выше, возможность получения информации о мнимой и действительной части нелинейно-оптической восприимчивости среды связана с тем обстоятельством, что интерференция резонансной составляющей ЧВВ с нерезонансным когерентным фоном обеспечивает запись фазовой информации об исследуемом резонансе [3, 53, 118]. Начнем анализ данного вопроса с класса задач, которые позволяют считать, что нелинейная поляризация среды, соответствующая процессу ЧВВ, может быть представлена в виде суммы нерезонансной и резонансной составляющих, описываемых действительным вектором \mathbf{P}_{nr} и комплексным вектором \mathbf{P}_r . Направляя ось x вдоль вектора \mathbf{P}_{nr} , запишем суммарную кубическую по полю поляризацию среды в виде

$$P_x = P_{nr} + P_r \exp(i\varphi) \cos \alpha \quad (14a)$$

$$P_y = P_r \exp(i\varphi) \sin \alpha, \quad (14b)$$

где φ — фаза резонансной составляющей нелинейной поляризации, α — угол между векторами резонансной и нерезонансной составляющих. Как следует из определения этих величин, параметры β и α могут быть измерены экспериментально.

Вводя φ^* для обозначения комплексной фазы P_y , имеем

$$\tan \varphi^* = \frac{\sin \varphi}{\cos \varphi + \eta / \cos \alpha}, \quad (15)$$

$$\tan^2 \beta = \frac{\sin^2 \alpha}{(\cos \varphi \cos \alpha + \eta)^2 + \sin^2 \varphi \cos^2 \alpha}, \quad (16)$$

где $\eta = P_{nr}/P_r$ характеризует величину нерезонансного фона относительно резонансной составляющей.

Рассматривая соотношение (16) как квадратное уравнение относительно η , находим

$$\eta = \cos \alpha \left(-\cos \varphi \pm \sqrt{\frac{\tan^2 \alpha}{\tan^2 \beta} - \sin^2 \varphi} \right). \quad (17)$$

Подставив формулу (17) в (15), получим выражение для φ^* :

$$\tan \varphi^* = \frac{\pm \sin \varphi^*}{(\tan^2 \alpha / \tan^2 \beta - \sin^2 \varphi)^{1/2}}. \quad (18)$$

Учитывая, что $\delta = \varphi - \varphi^*$, имеем

$$\tan(\delta - \varphi) = \frac{\pm \sin \varphi}{(\tan^2 \alpha / \tan^2 \beta - \sin^2 \varphi)^{1/2}}. \quad (19)$$

Зная параметры эллипса, с помощью (11a) и (11b) можно легко вычислить значение δ , после чего использо-

вание формул (17) и (19) позволяет найти η и φ . Таким образом, описанная выше процедура расчета, в принципе, решает задачу о нахождении действительной и мнимой составляющих резонансной нелинейной поляризации на основании экспериментальных данных, получаемых методом поляризационной спектроскопии ЧВВ (для $\alpha = 0$ решение данной системы по очевидным причинам оказывается неоднозначным). Необходимо особо отметить, что, так как при построении данной процедуры мы не использовали в явном виде информацию о форме спектра резонансной составляющей ЧВВ, по существу, имеется возможность обобщения метода определения спектральных зависимостей действительной и мнимой части нелинейно-оптической восприимчивости третьего порядка, развитого в [3] для лоренцевых линий, на случай произвольных спектральных линий, что особенно важно для ЧВВ-диагностики плазмы. Возможности предложенной выше процедуры не ограничиваются определением спектральных зависимостей действительной и мнимой части нелинейной поляризации среды. Аналогичный подход может быть использован во временном представлении (см. [118]). Другими словами, при наличии соответствующих экспериментальных спектрохронографических зависимостей предлагаемая процедура позволяет восстановить не только спектр, но и временную зависимость действительной и мнимой части нелинейной поляризации среды.

В важном частном случае, когда резонансная составляющая ЧВВ сигнала может рассматриваться как малая поправка к нерезонансной компоненте, т.е.

$$\eta \gg 1, \quad (20)$$

общая процедура получения информации о действительной и мнимой части нелинейной поляризации среды существенно упрощается и допускает наглядное физическое истолкование. При выполнении условия (20) имеют место следующие простые соотношения:

$$\psi = \beta \cos \varphi \propto \operatorname{Re} P, \quad (21a)$$

$$\chi = \beta \sin \varphi \propto \operatorname{Im} P. \quad (21b)$$

Таким образом, спектральные или временные зависимости параметров эллипса поляризации сигнала ЧВВ ψ и χ в данном случае повторяют соответственно спектральные или временные зависимости действительной и мнимой компонент резонансной составляющей нелинейной поляризации.

В противоположном предельном случае сильного резонанса справедливо соотношение

$$\eta \ll 1, \quad (22)$$

которое, очевидно, применимо лишь в диапазоне спектра, где резонансная составляющая нелинейной поляризации среды значительно больше нерезонансной, имеем следующие соотношения [118, 120]:

$$\psi' = \psi - \alpha = \frac{P_{nr} \sin(-\alpha)}{P_r} \cos \varphi, \quad (23a)$$

$$\chi = \frac{P_{nr} \sin \alpha}{P_r} \sin \varphi, \quad (23b)$$

где ψ' — угол поворота оси эллипса поляризации относительно резонансной составляющей. Выражения

(23а) и (23б) удобно записать в более компактном виде:

$$P_r \exp(i\varphi) = \frac{P_{nr} \sin \alpha}{-\psi' + i\chi}. \quad (24)$$

Таким образом, поляризационные измерения в схеме когерентного ЧВВ позволяют получить полную информацию о резонансной составляющей нелинейной поляризации среды, включая ее фазу (см. табл. 1).

Выражения, приведенные выше, были получены в предположении, что резонансная и нерезонансная компоненты сигнала ЧВВ могут быть представлены в виде комплексных векторов. Однако в целом ряде практически важных случаев одна из составляющих сигнала ЧВВ сама по себе поляризована эллиптически. Это имеет место, например, если в качестве нелинейной среды выступает лазерная плазма. Тогда, как показали эксперименты [194], в результате интерференции вкладов дискретного и непрерывного спектров нерезонансная компонента сигнала ЧВВ оказывается эллиптически поляризованной. Обобщение техники поляризационных измерений для данного случая было выполнено в работе [118].

7.3. Анализ близких и перекрывающихся спектральных линий

Актуальной задачей четырехфотонной спектроскопии многокомпонентных возбужденных и ионизованных газовых сред является анализ близких и перекрывающихся линий в спектре ЧВВ. В монографии [3] содержится детальный анализ путей решения данной проблемы с использованием поляризационных измерений для линий лоренцевой формы. Однако приближение лоренцевых линий в ряде случаев оказывается неприменимым. В частности, спектральные линии атомов и ионов, возбужденных в лазерной плазме, не всегда могут быть представлены в виде лоренцевых контуров. В работах [118–120] получены выражения, устанавливающие связь между компонентами кубической поляризации среды и параметрами эллипса поляризации сигнала ЧВВ для нелоренцевых линий при произвольном соотношении амплитуд резонансной (квазирезонансной) и нерезонансной составляющих кубической поляризации среды. Развитый подход был использован для анализа данных ЧВВ-спектроскопии и когерентной эллипсометрии низкотемпературной лазерной плазмы [120].

Рассмотрим случай, когда спектр ЧВВ содержит два близких резонанса. Покажем, что если величина одного из резонансов мала по сравнению с другим резонансом в некотором интервале частот (например, вблизи максимума сильного резонанса), а влиянием нерезонансного фона можно пренебречь, данный резонанс может выступать в качестве опорного для получения информации об относительной фазе сильного резонанса.

Поляризации источников будем считать линейными. Пусть P_{r1} — амплитуда поляризации среды, соответствующая сильному резонансу, P_{r2} — амплитуда поляризации среды, соответствующая слабому резонансу. Предполагая, что $P_{r1} \gg P_{r2}$, имеем [118, 120]

$$\psi' = \psi - \tilde{\alpha} = \frac{P_{r2} \sin(-\alpha)}{P_{r1}} \cos \varphi, \quad (25a)$$

$$\chi = \frac{P_{r2} \sin \alpha}{P_{r1}} \sin \varphi, \quad (25б)$$

где малый угол ψ' отсчитывается от вектора поляризации сильной линии, которая составляет угол $\tilde{\alpha}$ с осью x лабораторной системы координат, φ — разность фаз рассматриваемых резонансных компонент, α — угол между векторами поляризации двух резонансных источников. Данные соотношения показывают, что слабый резонанс выполняет роль опорного сигнала для записи информации о фазе близкого сильного резонанса.

Возводя в квадрат и складывая (25а) и (25б), получаем

$$|P_{r2}|^2 \sin^2 \alpha = (\psi'^2 + \chi^2) |P_{r1}|^2. \quad (26)$$

Выражение (26) позволяет обобщить поляризационную методику разрешения близких линий в спектре ЧВВ, развитую в работах [182, 183], на случай спектральных линий произвольной формы.

Проиллюстрируем данную возможность на примере пары близких линий в спектре ЧВВ из лазерной плазмы, исследовавшихся в работе [118] при помощи четырехфотонного процесса, идущего по схеме трехчастотного ЧВВ $\omega_{\text{FWM}} = \omega_1 - \omega_0 + \omega_2$, где ω_{FWM} — частота сигнала четырехволнового смещения, ω_0 — частота основного излучения Nd:YAG лазера, ω_1 — частота второй гармоники Nd:YAG лазера, ω_2 — частота излучения лазера на красителе. В спектре четырехфотонного рассеяния наблюдались интенсивные резонансы на частотах переходов между возбужденными состояниями атомов и ионов в плазме оптического пробоя, создаваемой на поверхности мишеней из нержавеющей стали. В частности, были зарегистрированы резонансы в спектре сигнала ЧВВ, связанные с переходом ${}^5\text{F} \rightarrow {}^5\text{G}^o$ между возбужденными состояниями атомов железа (длина волны 0,3618 мкм) и переходом ${}^3\text{S} \rightarrow {}^3\text{P}^o$ между возбужденными состояниями ионов азота NII (длина волны 0,3615 мкм).

Как видно из рис. 10а, спектр интенсивности сигнала трехчастотного ЧВВ не позволяет надежно зарегистрировать резонанс, обусловленный переходами между возбужденными состояниями атомов железа. Для анализа исследуемой пары линий можно использовать следующую процедуру [118–120]. Будем полагать в первом приближении, что вблизи максимума сильного резонанса на рис. 10а вкладом слабой составляющей в интенсивность сигнала ЧВВ можно пренебречь, так что угол ψ' можно считать равным 0 и, следовательно, $\psi = \tilde{\alpha}$. Используем далее формулу (6) для определения величины $P_{r2} \sin \alpha$ на участке спектра 361,30–361,60 нм, предполагая, что отклонение измеренных в эксперименте параметров эллипса поляризации ψ и χ (рис. 10б) от $\tilde{\alpha}$ и нуля соответственно связано с влиянием слабого резонанса. При этом, так как расчеты производятся в области вблизи максимума сильного резонанса, предполагается, что интенсивность сигнала ЧВВ можно использовать в качестве оценки величины $(P_{r1})^2$.

Спектральная зависимость слабой резонансной компоненты и разность фаз резонансных компонент, полученные в результате обработки спектров в соответствии с описанной процедурой, приведены на рис. 10в, г соответственно. Как видно из рис. 10в, для длин волн, больших 361,50 нм, условия принятого приближения не выполняются, так как вклад левого резонанса в этой области становится сопоставим с вкладом правого резонанса. Немонотонный ход спектральных зависимостей величины $P_{r2} \sin \alpha$ и разности фаз в данной области, по-

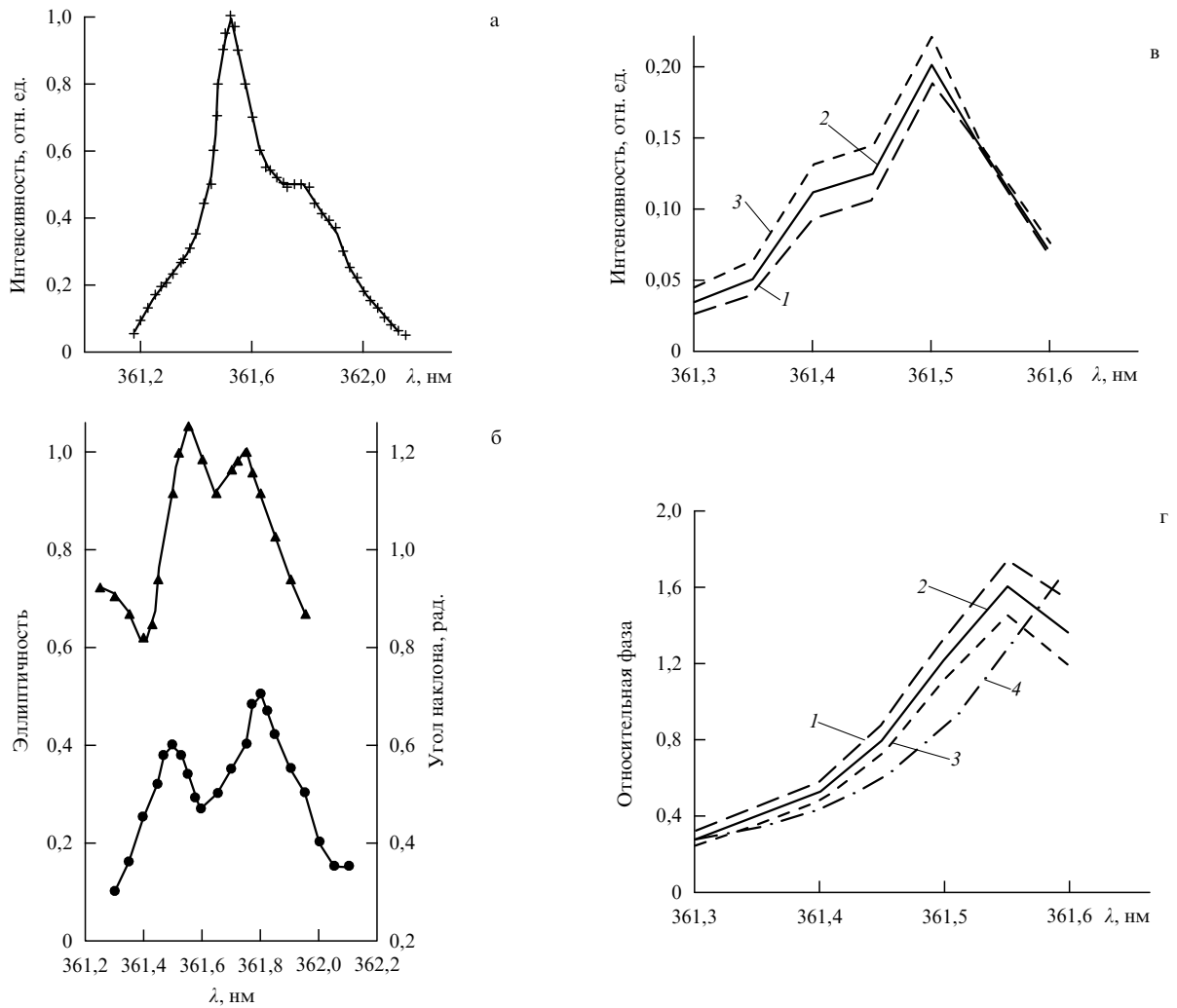


Рис. 10. Частотные зависимости интенсивности (а), эллиптичности (кружки) и угла наклона эллипса поляризации (треугольники) (б) сигнала четырехфотонного рассеяния света, измеренные вблизи резонансов с переходами $^5F \rightarrow ^5G^o$ атомов железа и $^3S \rightarrow ^3P^o$ ионов азота NII в плазме оптического пробоя на поверхности стальной мишени [120]. Символами обозначены экспериментальные точки для полного сигнала ЧВВ. Использование описанной в тексте процедуры позволяет восстановить спектральные зависимости слабой резонансной компоненты (в) и разности фаз резонансных компонент (г). Представлены результаты расчета для $\tilde{\alpha} = 1,20$ (1), $\tilde{\alpha} = 1,25$ (2), $\tilde{\alpha} = 1,30$ (3) и для резонансов лоренцевой формы (4).

видимому, не соответствует реальному поведению этих параметров. Оценка для угла $\tilde{\alpha}$ (соответствовавшего началу отсчета угла ψ'), полученная на начальном этапе процедуры, составляла 1,25 рад (сплошные линии на рис. 10в, г). Для наглядности на рис. 10в, г представлены зависимости, соответствующие $\tilde{\alpha} = 1,20$ (длинные штрихи) и 1,30 рад (короткие штрихи). Штрихпунктирной линией на рис. 10г показана разность фаз между двумя резонансами в предположении, что данные резонансы имеют лоренцеву форму с шириной сильной и слабой линий 0,1 и 0,05 нм соответственно и расстоянием между центрами линий 0,25 нм [120]. Следует отметить, что основная трудность процедуры восстановления спектральной зависимости слабой резонансной компоненты и нахождения разности фаз для рассмотренной пары резонансов связана с тем, что отношение амплитуд рассмотренных резонансов составляет величину порядка 0,5. В данных условиях предложенный подход должен применяться с известной осторожностью. Корректная процедура получения информации о паре спектральных линий, включая определение относительной фазы, в данном случае может быть построена

при наличии дополнительных экспериментальных данных. Заметим также, что предложенная процедура дает информацию о разности фаз резонансных компонент, не позволяя при этом в полной мере восстановить спектральную зависимость действительной и мнимой части близких резонансов.

Поляризационная техника, аналогичная описанной выше в данном разделе, может быть использована для разделения интерферирующих компонент поляризации среды третьего порядка во временном представлении. В частности, имеется возможность восстановления временной зависимости относительной фазы для составляющих сигнала ЧВВ. Такая процедура была использована для обработки данных когерентной ЧВВ-эллипсометрии лазерной плазмы в работе [118]. Важно отметить также, что, в отличие от амплитудных спектров ЧВВ, частотные зависимости параметров поляризации сигнала ЧВВ оказываются нечувствительными к фазовой расстройке и однофотонному поглощению световых волн, участвующих в ЧВВ [193] (см. табл. 1). Это позволяет использовать методы когерентной эллипсометрии при исследовании возбужденных газов и плазмы

для получения спектроскопических данных, свободных от искажений, связанных с фазовым рассогласованием и однофотонным поглощением.

7.4. Поляризационное управление формой спектра ЧВВ

Существенной особенностью широкополосных спектров ЧВВ является чувствительность относительных интенсивностей спектральных линий в данных спектрах к относительной поляризации волн накачки и ориентации анализатора. В частности, при изменении углов между векторами поляризации \mathbf{e}_0 , \mathbf{e}_1 и \mathbf{e}_2 и осью анализатора имеется возможность подавления определенных компонент в спектре четырехволнового смешения [26] (рис. 11). Очевидно, возможность такого поляризационного управления формой спектра сигнала широкополосного ЧВВ исключительно полезна для исследования многокомпонентных сред, спектры которых содержат большое количество близких и перекрывающихся линий (см. табл. 1). Данная экспериментальная техника позволяет исследовать интерферирующие спектральные линии, соответствующие различным компонентам возбужденного газа либо плазмы, независимо друг от друга [26, 122, 123] (основы поляризационной техники в спектроскопии КАРС были развиты в работах [182–191]).

С физической точки зрения возможность управления формой спектров когерентного ЧВВ связана с тензорной природой нелинейно-оптической кубической восприимчивости $\chi^{(3)}$, а также с тем обстоятельством, что форма спектров ЧВВ определяется условиями интерференции соответствующих резонансных составляющих $\chi^{(3)}$ и нерезонансного когерентного фона, величина которого зависит от нерезонансной составляющей кубической восприимчивости $\chi^{(3)}$. Выражение для интенсивности $I_{\text{ФВМ}}$ сигнала ЧВВ при этом может быть записано в следующем виде [195]:

$$\frac{I_{\text{ФВМ}}}{I_0 I_1 I_2} \propto \left| P^{\text{NR}} \sin \varepsilon + \sum_{\sigma} f_{\sigma}(\Delta_{\sigma}) P^{\text{R}\sigma} \sin(\varepsilon - \theta_{\sigma}) \right|^2, \quad (27)$$

где I_0 , I_1 , I_2 — интенсивности волн накачки; $P^{\text{R}\sigma}$, P^{NR} — модули векторов резонансной и нерезонансной составляющих нелинейной поляризации среды третьего порядка; ε — угол между осью анализатора поляризации и нормалью к вектору \mathbf{P}^{NR} , $f_{\sigma}(\Delta_{\sigma})$ — форма спектральной линии, θ_{σ} — угол между векторами \mathbf{P}^{NR} и $\mathbf{P}^{\text{R}\sigma}$,

$$\mathbf{P}^{\text{R}\sigma} = \bar{\chi}_{1122}^{(3)\text{R}\sigma} \mathbf{e}_2(\mathbf{e}_1 \mathbf{e}_0^*) + \bar{\chi}_{1212}^{(3)\text{R}\sigma} \mathbf{e}_1(\mathbf{e}_2 \mathbf{e}_0^*) + \bar{\chi}_{1221}^{(3)\text{R}\sigma} \mathbf{e}_0^*(\mathbf{e}_2 \mathbf{e}_1), \quad (28)$$

$\bar{\chi}_{1122}^{(3)\text{R}\sigma}$, $\bar{\chi}_{1212}^{(3)\text{R}\sigma}$, $\bar{\chi}_{1221}^{(3)\text{R}\sigma}$ — компоненты резонансной кубической восприимчивости среды.

Резонансы в спектре ЧВВ, относящиеся к различным атомным и ионным переходам (даже в том случае, когда они имеют близкие частоты), могут характеризоваться различными соотношениями между компонентами тензора $\chi^{(3)}$ и иметь различные фазы относительно друг друга и когерентного фона. В этом случае путем вращения векторов поляризации волны накачки и зондирующего излучения и изменения ориентации анализатора поляризации можно изменять условия интерференции различных компонент в спектрах ЧВВ и, таким образом, управлять формой четырехфотонных спектров. Для иллюстрации возможностей данного подхода представляется полезной аналогия с голографической записью [53], когда фазовая информация, записанная в образце,

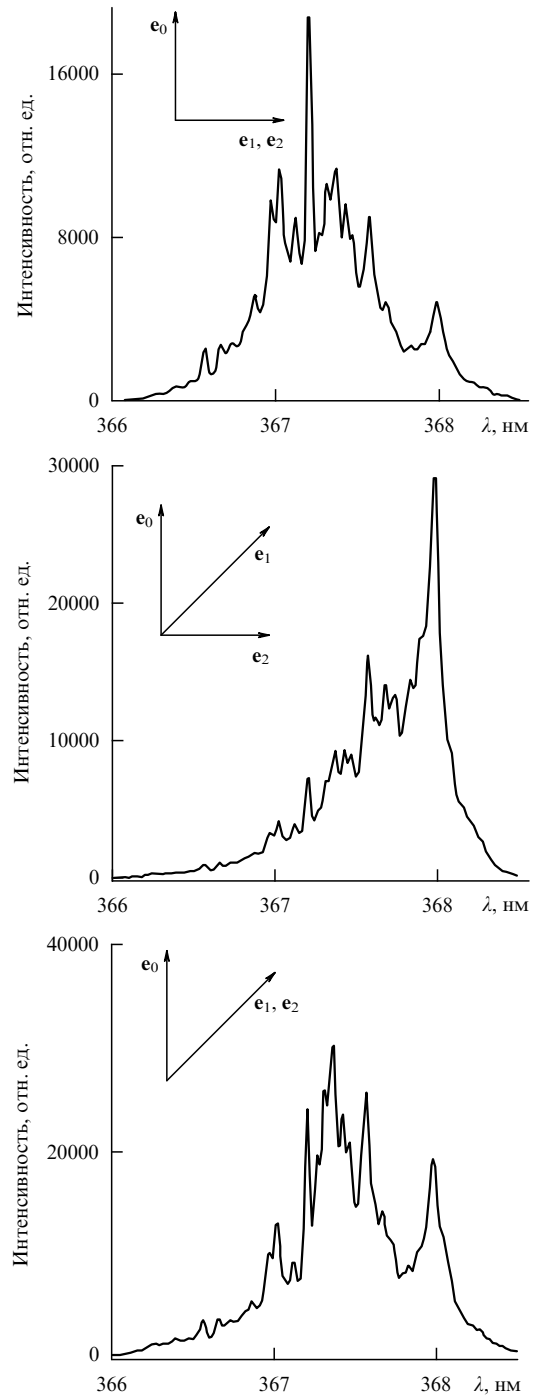


Рис. 11. Поляризационное управление формой спектра сигнала широкополосного ЧВВ при исследовании многокомпонентной лазерной плазмы. На вставках показаны относительные ориентации векторов поляризации волн накачки.

позволяет обнаружить новые детали записанной картины при рассматривании голограммы под разными углами зрения. Обзор экспериментальных и теоретических исследований в области многомерной голографической спектроскопии содержится в работе [53].

7.5. Измерение инвариантов тензора гиперкомбинационного рассеяния

Четырехфотонный процесс с резонансом гиперкомбинационного типа связан с гиперкомбинационным рассея-

Таблица 2. Соотношения между неприводимыми компонентами векторной части тензора ГКР, измеренные с помощью поляризационной техники ЧВВ для переходов между возбужденными состояниями атомов и ионов в лазерной и газоразрядной плазме.

Атом/ион	Переход	ρ	$\beta_2^{(1)}/\beta_0^{(1)}$	Способ создания плазмы	Литература
NI	$3d^3F_2^o \rightarrow 3p^3D_1$	$-0,31 \pm 0,03$	$7,7 \pm 0,9$	оптический пробой	[117]
ArII	$4p^2D_{3/2}^o \rightarrow 4s^2P_{1/2}$	$4,1 \pm 0,4$	$-0,75 \pm 0,09$	оптический пробой	[24]
InII	$7g^3G_5 \rightarrow 4f^3F_4^o$	$-0,10 \pm 0,01$	$3,1 \pm 0,5$	оптический пробой	[116]
CuI	$4s^2D_{5/2} \rightarrow 4p^2P_{3/2}^o$	$-6,9 \pm 1,0$	$-1,4 \pm 0,2$	газовый разряд	[22]
CuI	$4p^4F_{7/2}^o \rightarrow 4s^4D_{7/2}$	$0,14 \pm 0,03$	$1,5 \pm 0,1$	газовый разряд	[22]
CuI	$4p^4F_{5/2}^o \rightarrow 4s^4D_{5/2}$	$0,08 \pm 0,02$	$1,8 \pm 0,1$	газовый разряд	[22]
CuI	$4p^4F_{9/2}^o \rightarrow 4s^4D_{7/2}$	$0,21 \pm 0,04$	$1,2 \pm 0,1$	газовый разряд	[22]
BrI	$5s^4P_{1/2} \rightarrow 5p^2P_{3/2}^o$	$4,2 \pm 0,3$	$-0,76 \pm 0,07$	газовый разряд	[24]

нием (ГКР) [3, 22, 24] на электронных состояниях атомов и ионов. Вследствие этого обстоятельства компоненты тензора нелинейной кубической восприимчивости $\chi^{(3)}$, ответственные за данный четырехфотонный процесс, оказываются связанными с неприводимыми компонентами векторной части тензора ГКР. Таким образом, состояние поляризации сигнала ЧВВ с гиперкомбинационными резонансами несет информацию об инвариантах тензора ГКР.

Рассмотрим методику проведения соответствующих поляризационных измерений [22, 24] для двухчастотного ЧВВ, происходящего по схеме $\omega_{\text{ФВМ}} = 2\omega_1 - \omega_2$. Пусть поля накачки линейно поляризованы и их векторы поляризации составляют угол φ . Тогда, измеряя угол ψ между вектором поляризации сигнала ЧВВ и вектором поляризации излучения на частоте ω_1 и вычисляя, согласно [3], коэффициент деполяризации

$$\rho = \frac{\chi_{1221}^{(3)}}{\chi_{1111}^{(3)}} = \frac{\tan \psi}{\tan \varphi}, \quad (29)$$

можно найти соотношение инвариантов тензора ГКР при помощи следующего выражения [22, 24]:

$$\frac{\beta_2^{(1)}}{\beta_0^{(1)}} = \sqrt{5} \frac{1 - \rho}{2\rho + 1}. \quad (30)$$

В таблице 2 приведены относительные значения неприводимых компонент векторной части тензора ГКР, рассчитанные согласно (29) и (30) для возбужденных состояний атомов и ионов в лазерной [24] и газоразрядной [14, 22] плазме на основании измерений, выполненных с помощью поляризационной техники двухчастотного ЧВВ с резонансом гиперкомбинационного типа.

8. Когерентная четырехфотонная спектроскопия автоионизационных состояний

Исследование автоионизационных (АИ) состояний [196–199] представляет значительный интерес в связи с различными задачами фундаментального и прикладного характера. В частности, АИ состояния с узкой шириной линии оказываются перспективными для целей селективной многофотонной ионизации атомов. Сечения переходов с участием таких АИ состояний могут на несколько порядков величины превышать сечения прямой фотоионизации через состояния непрерывного спектра. Данное обстоятельство позволяет повысить эффективность процессов фотоионизации [200, 201] и генерации ультрафиолетового излучения [202]. Информация о спектре АИ

состояний необходима также для различных спектроскопических приложений, таких, как регистрация микропримесей и лазерное разделение изотопов [203]. С другой стороны, изучение АИ состояний позволяет глубже понять физику многоэлектронных атомов. Так как АИ состояния находятся выше порога ионизации, характерные особенности таких состояний тесно связаны с интерференцией энергетических уровней дискретного и непрерывного спектра, приводящей к изменению непрерывного спектра атома. Развитие различных методов нелинейной лазерной спектроскопии дает возможность исследовать широкий набор АИ состояний с различными угловыми моментами [204, 205], которые обязательно должны быть связаны с основным состоянием атома однофотонными переходами. В частности, как показано в работах [199, 200, 206, 207], ценная информация о свойствах автоионизационных и автоионизационно-подобных состояний может быть получена при помощи когерентной многофотонной спектроскопии. Авторами работы [208] разработан экспериментальный метод для идентификации полного углового момента АИ состояний, основанный на двухфотонной поляризационной спектроскопии. В работах [209, 210] экспериментально и теоретически исследован линейный и круговой дихроизм, проявляющийся при фотоионизации атомов Ва через АИ состояния. Наконец, в работе [211] изучалось угловое распределение фотоэлектронов, испускаемых при трехфотонной ионизации атомов Ва с участием АИ состояний.

Резонансы в спектре четырехфотонного рассеяния с участием АИ состояний впервые наблюдались в работе [202] в парах атомов металлов. Большое число работ посвящено исследованию влияния индуцированных лазерным излучением автоионизационно-подобных [199] резонансов на эффективность многофотонных процессов в атомах (например, [206, 207]). В экспериментах [212] исследовались автоионизационные состояния атома меди в газоразрядной плазме. Изучался спектр КАРС в условиях резонанса между частотой $\omega_{\text{ФВМ}}$ (длина волны $\lambda_{\text{ФВМ}} = 467,4$ нм) и частотой перехода между АИ состоянием $4D_{5/2}$ и дискретным возбужденным состоянием $4F_{5/2}^o$ атома меди (рис. 12, вставка). АИ резонанс в спектре четырехфотонного рассеяния с гиперкомбинационным резонансом исследовался как в узкополосном (ширина линии генерации лазера на красителе $\Delta\omega_2 = 0,5$ см⁻¹), так и в широкополосном ($\Delta\omega_2 = 16$ см⁻¹) варианте спектроскопии ЧВВ.

Автоионизационный резонанс в спектре когерентного ЧВВ имеет асимметричную форму (рис. 12, точки). Для описания формы спектра АИ резонанса в спектре четырехфотонного рассеяния воспользуемся известным выра-

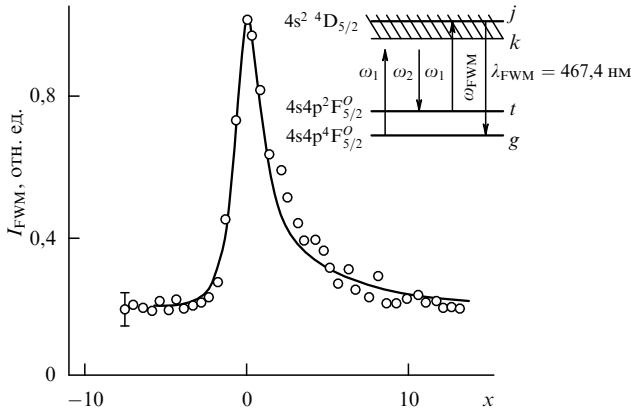


Рис. 12. Спектр сигнала ЧВВ с гиперкомбинационным резонансом на переходе в автоионизационное состояние атома меди: точки — экспериментальные данные, сплошная линия — результаты расчета с использованием формулы (35). На вставке показана схема процесса ЧВВ.

жением для нелинейно-оптической кубической восприимчивости [213]:

$$\chi^{(3)} \propto \sum_{k,t,j} \frac{d_{gj}d_{ji}d_{tk}d_{kg}}{(\omega_{kg} - \omega_1)(\omega_{tg} - \omega_1 + \omega_2)(\omega_{jg} - \omega_{FWM})}. \quad (31)$$

Здесь d_{gj} , d_{ji} , d_{tk} и d_{kg} — матричные элементы дипольных моментов, индекс g относится к начальному состоянию, индексы k и t относятся к виртуальным состояниям, а j относится к АИ состоянию. В рассматриваемом случае комбинационная частота $\omega_1 - \omega_2$ близка к частоте ω_{tg} перехода $4F_{5/2}^o \rightarrow 2F_{5/2}^o$ (отстройка составляет 437 см^{-1} , рис. 12). Удерживая в сумме по t в выражении (31) лишь одно слагаемое с квазирезонансным знаменателем $\omega_{tg} - \omega_1 + \omega_2 = \Delta\omega$, получаем:

$$\chi^{(3)AI} \propto \frac{1}{\Delta\omega} \sum_k \frac{d_{tk}d_{kg}}{\omega_{kg} - \omega_1} \int \frac{d_g(E)d_t(E)}{E - \hbar\omega_{FWM}} dE. \quad (32)$$

Аналогично [200], имеем следующее выражение для нелинейно-оптической кубической восприимчивости:

$$\chi^{(3)AI} \propto \frac{\pi N}{2\omega} d_{g\psi_E} d_{\psi_E t} \frac{q_1 q_2 - i(q_1 + q_2 - x)}{x - i}. \quad (33)$$

Здесь

$$N = \sum_k \frac{d_{tk}d_{kg}}{\omega_{kg} - \omega_1}$$

(где помимо суммирования по связанным состояниям предполагается интегрирование по состояниям непрерывного спектра),

$$x = \frac{E_s - \hbar\omega_{FWM}}{\pi|V_E|^2}, \quad (34a)$$

$$q_1 = \frac{\langle \Phi | d | \varphi_g \rangle}{\pi V_E^* \langle \psi_E | d | \varphi_g \rangle},$$

$$q_2 = \frac{\langle \Phi | d | \varphi_t \rangle}{\pi V_E^* \langle \psi_E | d | \varphi_t \rangle} \quad (34b)$$

— параметры Фано; φ_t , φ_g — волновые функции связанных состояний (в нашем случае φ_t — волновая функция состояния $2F_{5/2}^o$); ψ_E — волновая функция состояния непрерывного спектра; Φ — волновая функция модифицированного дискретного состояния с энергией E_s ; V_E — недиагональный матричный элемент [196, 197].

Для режима жесткой фокусировки, условия которого были реализованы в экспериментах [212], мощность антистоксова излучения в пренебрежении вкладом нерезонансной составляющей кубической восприимчивости может быть вычислена согласно следующей формуле [126]:

$$P_{FWM} \propto \frac{(q_1 q_2)^2 + (q_1 + q_2 - x)^2}{x^2 + 1} \times \exp \left[-2\kappa_0(L - f) \frac{(q_1 - x)^2}{x^2 + 1} \right]. \quad (35)$$

Сравнение данных эксперимента с результатами расчета формы спектра четырехфотонного рассеяния в соответствии с выражением (35) позволяет путем подгонки определить значения параметров q_1 и q_2 . Удовлетворительное согласие достигается при значениях параметров Фано $q_1 = -1,8$ и $q_2 = 1,1$ (сплошная линия на рис. 12).

Как показывают эксперименты [22, 212], исследование АИ состояний важно для понимания процессов, происходящих в плазме электрического разряда. Методика, разработанная в [126, 212], позволяет определять параметры Фано АИ состояний путем измерения спектров когерентного ЧВВ с резонансами гиперкомбинационного типа. Как показано в работе [121], полезная информация об интерференции вкладов дискретного и непрерывного спектра атома может быть получена с помощью поляризационных измерений в спектроскопии ЧВВ. В работе [193] предложена и обоснована экспериментальная техника для исследования АИ состояний, основанная на поляризационном резонансном ЧВВ. На основе теории Фано АИ состояний получены аналитические выражения для эллиптичности и угла наклона главной оси эллипса поляризации световой волны, возникающей в результате когерентного ЧВВ с участием АИ состояний. Вследствие интерференции вкладов энергетических состояний дискретного и непрерывного спектров сигнал ЧВВ оказывается эллиптически поляризованным. Исследование поляризационных параметров сигнала ЧВВ дает возможность определить факторы Фано соответствующих АИ состояний и содержит информацию о влиянии непрерывного спектра атома на нелинейно-оптический отклик системы. Показано, что когерентная ЧВВ-эллипсометрия позволяет независимым образом определять частотные зависимости действительной и мнимой частей нелинейно-оптической восприимчивости вблизи АИ резонансов.

9. Визуализация пространственного распределения атомной и ионной компонент плазмы

С физической точки зрения возможность получения информации о пространственном распределении частиц в плазме основана на том обстоятельстве, что интенсивность сигнала ЧВВ определяется концентрацией частиц, дающих вклад в процесс четырехфотонного рассеяния

света (см. табл. 1). В общем случае, как можно видеть из выражений (1)–(5), зависимость интенсивности сигнала ЧВВ от концентрации частиц оказывается довольно сложной из-за интерференции резонансной и нерезонансной составляющих кубической восприимчивости, а также из-за влияния эффектов фазовой расстройки и поглощения (см. [125–127]). Однако в тех случаях, когда удается обнаружить достаточно сильные резонансы в спектре ЧВВ, а также установить в какой степени зависимость интенсивности сигнала ЧВВ от концентрации резонансных частиц отклоняется от квадратичной функции (см. выражения (1)–(7)), сигнал когерентного ЧВВ может быть использован для получения информации о пространственном распределении частиц в плазме (см. табл. 1 и 3). В частности, благодаря высокой эффективности когерентного ЧВВ, идущего с участием некоторых возбужденных состояний атомов и ионов, техника когерентного ЧВВ оказывается удобным методом визуализации пространственного распределения атомарной и ионной компонент лазерной плазмы [122, 123] (впервые такая техника была использована для построения изображения возбужденных частиц в лазерной плазме в работе [215]). Особенно перспективными в этом отношении представляются схемы ЧВВ с некопланарными широкими пучками [5, 34, 104, 105, 214], позволяющие получать информацию о распределении атомов или ионов в некотором сечении плазмы за один лазерный импульс (см. [160, 161], а также табл. 1 и 3).

В данном разделе мы рассмотрим вопросы, связанные с особенностями извлечения информации о концентрации резонансных частиц из сигнала ЧВВ, усредненного по серии измерений, в условиях флуктуаций концентрации резонансных частиц и интенсивности лазерных пучков накачки. Мы обсудим схемы ЧВВ, которые позволяют получать информацию о пространственном распределении атомов в сканируемой относительно лазерных пучков плазме путем поточечных измерений, а также восстанавливать пространственные распределения возбужденных атомов в лазерной плазме линия за линией и срез за срезом.

9.1. Когерентное ЧВВ в условиях флуктуаций параметров среды и накачки

В связи с тем, что интенсивность сигнала когерентного ЧВВ является нелинейной (квадратичной) функцией концентрации резонансных частиц, усреднение по серии измерений, производимое для сглаживания скачков интенсивности сигнала ЧВВ от импульса к импульсу, приводит к систематическим отклонениям среднего сигнала ЧВВ от квадрата среднего значения концентрации резонансных частиц. В частности, карта распределения интенсивности сигнала ЧВВ может отличаться от истинного распределения квадрата средней концентрации резонансных атомов или ионов. Иными словами, усредненная интенсивность сигнала ЧВВ не сходится к квадрату средней величины измеряемой концентрации резонансных частиц [161]. Еще одним источником экспериментальных ошибок являются флуктуации интенсивности лазерных пучков, используемых для генерации сигнала ЧВВ.

Оценим статистическое отклонение средней мощности сигнала когерентного ЧВВ от квадрата среднего значения концентрации резонансных частиц для типичных условий экспериментов по ЧВВ в плазме оптиче-

ского пробоя. С учетом формулы (1) малые флуктуации мощности сигнала ЧВВ ΔP_{FWM} могут быть выражены через флуктуации $\Delta(P_1 P_2 P_3)$ мощностей лазерных пучков накачки и флуктуации $\Delta\chi$ кубической восприимчивости среды $\chi = \chi_r^{(3)} + \chi_{\text{nr}}^{(3)}$ (за счет флуктуаций параметров плазмы) следующим образом:

$$\Delta P_{\text{FWM}} = 2a\chi\Delta\chi P_1 P_2 P_3 + a\chi^2\Delta(P_1 P_2 P_3), \quad (36)$$

где a — константа. Для относительных флуктуаций мощности сигнала ЧВВ имеем

$$\delta P_{\text{FWM}} \equiv \frac{\Delta P_{\text{FWM}}}{\langle P_{\text{FWM}} \rangle} = 2\delta\chi + \delta(P_1 P_2 P_3), \quad (37)$$

где $\delta\chi = \Delta\chi/\langle\chi\rangle$, $\delta(P_1 P_2 P_3) = \Delta(P_1 P_2 P_3)/\langle P_1 P_2 P_3 \rangle$, угловые скобки означают усреднение по серии измерений. С учетом (37) получаем следующее выражение для относительной дисперсии мощности сигнала ЧВВ:

$$\frac{\sigma_{\text{FWM}}^2}{\langle P_{\text{FWM}} \rangle^2} = \frac{\sigma_\chi^2}{\langle\chi\rangle^2} + \frac{\sigma_L^2}{\langle P_1 P_2 P_3 \rangle^2}, \quad (38)$$

где σ_{FWM}^2 — дисперсия мощности сигнала ЧВВ, σ_χ^2 — дисперсия нелинейно-оптической восприимчивости, σ_L^2 — дисперсия мощностей излучения накачки.

Таким образом, флуктуации сигнала ЧВВ определяются флуктуациями плотности резонансных частиц и флуктуациями мощности излучения накачки. В условиях, когда флуктуации параметров лазерного излучения приводят к существенному снижению точности измерений, необходимо использование опорного канала, в котором сигнал когерентного ЧВВ генерируется в стационарной среде (различные схемы опорного канала, используемые в экспериментах по когерентной четырехфотонной спектроскопии, обсуждаются в работах [79, 216]). Нормировка сигнала ЧВВ из исследуемой среды на сигнал ЧВВ из опорного канала в каждом импульсе позволяет устранить влияние флуктуаций лазерного излучения на точность измерений, так как при этом измеримой является величина

$$P = \frac{P_{\text{FWM}}}{aP_1 P_2 P_3} = \chi^2,$$

ошибки измерения которой определяются только флуктуациями параметров среды.

В условиях экспериментов по когерентному ЧВВ в лазерной плазме [35, 122, 123, 160, 161] флуктуации мощности сигнала ЧВВ ($\sigma_{\text{FWM}}^2/\langle P_{\text{FWM}} \rangle^2 \approx 0,16$) существенно превышали флуктуации мощности лазерного излучения ($\sigma_L^2/\langle P_1 P_2 P_3 \rangle^2 \leq 0,01$), что дает основания пренебречь вторым слагаемым в правой части выражения (38). Для данных условий введение опорного канала, приводящее к значительному усложнению схемы и не позволяющее существенным образом уменьшить ошибки измерений, представляется нецелесообразным. При этом, предполагая, что флуктуации величины χ распределены по гауссову закону, имеем

$$\langle P_{\text{FWM}} \rangle = aP_1 P_2 P_3 \langle \chi^2 \rangle = b(\langle \chi \rangle^2 + \sigma_\chi^2), \quad (39)$$

$$\langle P_{\text{FWM}}^2 \rangle = b^2 \langle \chi^4 \rangle = b^2(\langle \chi \rangle^4 + 6\sigma_\chi^2 \langle \chi \rangle^2 + 3\sigma_\chi^4), \quad (40)$$

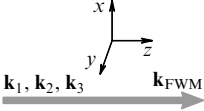
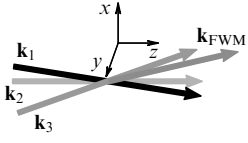
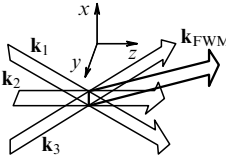
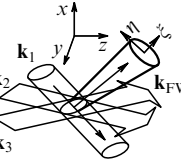
		Коллинеарное ЧВВ в узких пучках	Неколлинеарное ЧВВ в узких пучках	Некомпланарное ЧВВ в широких пучках с одномерной регистрацией сигнала	Некомпланарное ЧВВ в широких пучках с двумерной регистрацией сигнала			
Диаграмма процесса								
Способ построения карт пространственного распределения параметров среды		сканирование точка за точкой	сканирование точка за точкой	сканирование линия за линией	сканирование сечение за сечением			
Способ восстановления трехмерных распределений параметров среды		решение обратной задачи	точка за точкой	линия за линией	сечение за сечением			
Влияние факторов, искажающих изображение	фазовое рассогласование	вся область взаимодействия	область пересечения пучков	область пересечения пучков	область пересечения пучков			
	поглощение, рассеяние	вся область взаимодействия и участок до выходной границы среды	область пересечения пучков и участок до выходной границы среды	область пересечения пучков и участок до выходной границы среды	область пересечения пучков и участок до выходной границы среды			
Информация о мгновенном распределении параметров среды		карты усредненных параметров	карты усредненных параметров	вдоль линий	в сечении			
Пространственное разрешение	вдоль k_{FWM}	отсутствует	длина области взаимодействия	длина области взаимодействия	длина области взаимодействия			
	вдоль η	поперечный размер пучка	поперечный размер области взаимодействия	поперечный размер области взаимодействия	разрешение системы построения изображений			
	вдоль ξ	поперечный размер пучка	поперечный размер области взаимодействия	разрешение системы построения изображений	разрешение системы построения изображений			
Реализованные схемы	процесс	КАРС	ЧВВ ГКР	КАРС	ВЧВВ	КАРС	ЧВВ ГКР	ВЧВВ
	объект	пламена, газовые потоки, процессы горения, лазерная и газоразрядная плазма	лазерная и газоразрядная плазма	пламена, газовые потоки, процессы горения	пламена, газовые потоки, процессы горения	пламена, газовые потоки, процессы горения	лазерная плазма	пламена, процессы горения
	параметр	$N(x, y), T(x, y)$	$N(x, y)$	$N(x, y), T(x, y)$	$N(x, y), T(x, y)$	$N(x, y), T(x, y)$	$N(x, y)$	$N(x, y), T(x, y)$
	Литература	[3–18]	[115–120]	[110, 111, 228]	[56–66]	[104, 105]	[160, 161]	[34, 70–72]

Таблица 3. Схема когерентного ЧВВ для диагностики газовых сред. $N(x, y)$, $T(x, y)$ — пространственные распределения концентрации частиц и температуры газа соответственно.

где $b = aP_1P_2P_3$. Воспользовавшись формулами (39) и (40), получаем

$$\langle \chi \rangle = \frac{1}{\sqrt{b}} \left[\frac{1}{2} (3 \langle P_{\text{FWM}} \rangle^2 - \langle P_{\text{FWM}}^2 \rangle) \right]^{1/4} = \frac{1}{\sqrt{b}} \left(\langle P_{\text{FWM}} \rangle^2 - \frac{\sigma_{\text{FWM}}^2}{2} \right)^{1/4}, \quad (41)$$

$$\sigma_{\chi}^2 = \frac{1}{b} \left(\langle P_{\text{FWM}} \rangle - \sqrt{\langle P_{\text{FWM}} \rangle^2 - \frac{\sigma_{\text{FWM}}^2}{2}} \right). \quad (42)$$

В случае малых флуктуаций сигнала ЧВВ, $\sigma_{\text{FWM}}^2 / (2 \langle P_{\text{FWM}} \rangle^2) \ll 1$, имеем

$$\sigma_{\chi}^2 \approx \frac{\sigma_{\text{FWM}}^2}{4b \langle P_{\text{FWM}} \rangle}. \quad (43)$$

Наконец, если нерезонансная часть кубической восприимчивости мала по сравнению с резонансной составляющей, получаем простое соотношение между средней плотностью резонансных частиц и измеряемыми статистическими характеристиками сигнала ЧВВ в случае малых флуктуаций последнего:

$$\langle N \rangle \approx \frac{\sqrt{\langle P_{\text{FWM}} \rangle}}{\chi_r^{(3)} \sqrt{b}} \left(1 - \frac{\sigma_{\text{FWM}}^2}{8 \langle P_{\text{FWM}} \rangle^2} \right). \quad (44)$$

Таким образом, вследствие нелинейной зависимости сигнала ЧВВ от плотности резонансных частиц метод когерентного ЧВВ, как следует из выражений (39) и (44), дает в общем случае завышенное значение плотности резонансных частиц. Однако для типичных условий экспериментов [35, 122, 123, 160, 161], когда $\sigma_{\text{FWM}}^2 / \langle P_{\text{FWM}} \rangle^2 \approx 0,16$, отклонение истинного распределения концентраций возбужденных атомов в плазме от карты сигнала ЧВВ характеризовалось достаточно малой величиной (около 2 %).

9.2. Поточечное построение двумерных изображений относительной населенности возбужденных состояний атомов и ионов в лазерной плазме

Для экспериментального исследования пространственного распределения населенностей возбужденных состояний атомов в плазме оптического пробоя в работах [35, 122, 123, 215] использовался четырехфотонный процесс, идущий по схеме $\omega_{\text{FWM}} = \omega_1 + \omega_2 - \omega_0$, где ω_0 — частота основного излучения лазера на Nd:YAG, ω_1 — частота излучения второй гармоники лазера на Nd:YAG, ω_2 — варьируемая частота лазера на красителе. Частота излучения лазера на красителе выбиралась таким образом, чтобы частота ЧВВ сигнала ω_{FWM} оказалась резонансной некоторому переходу между электронными состояниями атомарной системы (резонанс гиперкомбинационного типа).

Анализ зависимости сигнала ЧВВ от пространственных координат с учетом влияния фазового рассогласования и однофотонного поглощения дает возможность получения информации о пространственном распределении относительных населенностей резонансных уровней атомов и ионов в плазме. Для визуализации относительной населенности исследуемых резонансных уровней интенсивность ЧВВ сигнала, измеренная для данной спектральной компоненты как функция пространственных координат, представляется в виде двумерной карты с

помощью уровней серого тона (см. [35, 122, 123]). На рисунке 13 представлены двумерные карты относительной интенсивности сигнала ЧВВ с резонансом на частоте перехода между состояниями $7s^3P_0^o$ и $6p^2^3P_1$ атомов Рb и между возбужденными состояниями атомов N, построенные в работе [123] при зондировании плазмы в продольном направлении. Аналогичные карты, полученные при поперечном зондировании плазмы, показаны на рис. 14. Каждая точка на двумерной карте представляет собой результат усреднения по 100 лазерным импульсам (условия корректности процедуры усреднения подробно обсуждались в разделе 9.1). Пространственное разрешение реализованной процедуры поточечного построения двумерных карт в плоскости сканирования плазмы (плоскость yz на рис. 13 для продольного и плоскость xz на рис. 14 для поперечного сканирования плазмы) определяется размерами зондирующих лазерных пучков в фокусе. В обсуждаемых экспериментах максимальный диаметр перетяжки лазерных пучков составляет 100 мкм. Вследствие того, что при проведении измерений использовалась коллинеарная геометрия нелинейно-оптического взаимодействия, данные, представленные на двумерных картах, построенных при помощи описанной выше методики, не могут быть разрешены в направ-

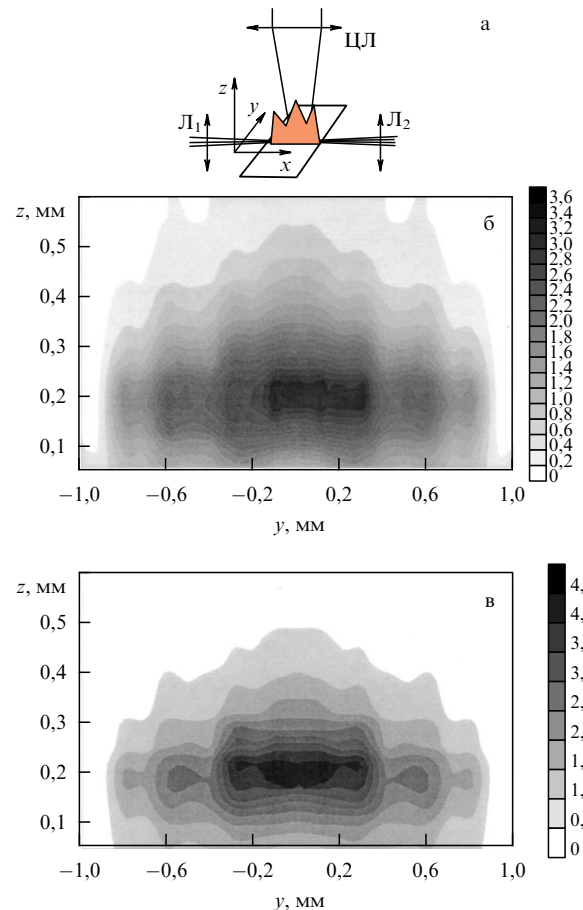


Рис. 13. Схема построения двумерных карт пространственного распределения атомов при зондировании плазмы в продольном направлении (а). Двумерные карты относительной интенсивности сигнала ЧВВ с резонансом на частоте перехода между состояниями $7s^3P_0^o \rightarrow 6p^2^3P_1$ атомов Рb (длина волны спектральной линии 368,3 нм) (б) и между возбужденными состояниями атомов N (длина волны 365,0 нм) (в).

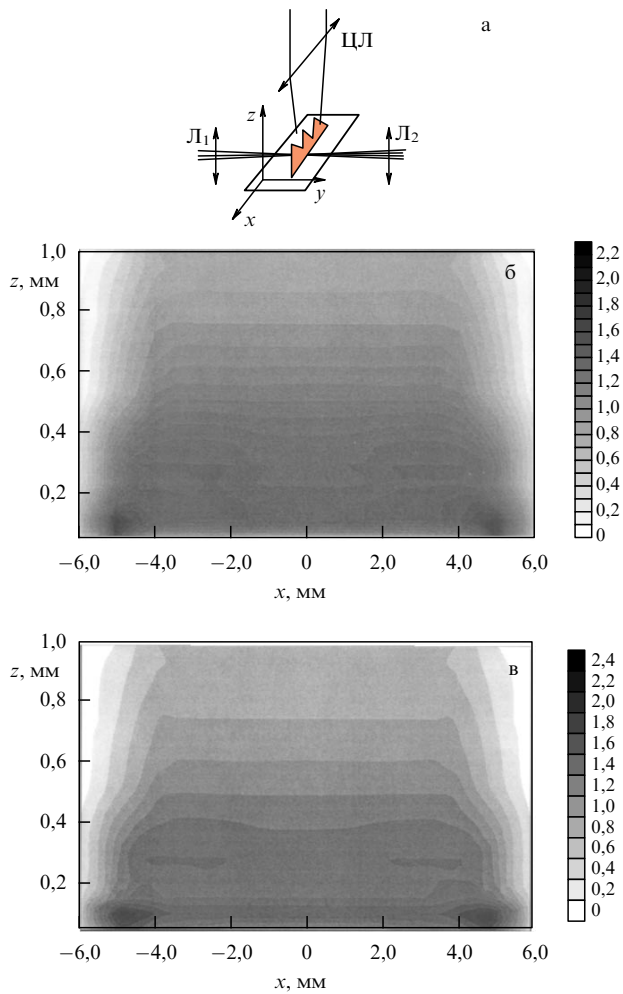


Рис. 14. То же, что на рис. 13, в случае поперечного зондирования плазмы.

лении зондирования (вдоль оси x при продольном и вдоль оси y при поперечном зондировании).

9.3. Эффекты фазового рассогласования и однофотонного поглощения

Как показано в разделе 2, эффекты фазового рассогласования и однофотонного поглощения могут приводить к отклонению от квадратичной зависимости интенсивности сигнала ЧВВ от плотности резонансных частиц. В связи с этим возникает необходимость проведения измерений, которые позволили бы непосредственно оценить влияние эффектов фазового рассогласования и однофотонного поглощения на режим, нелинейно-оптического взаимодействия в лазерной плазме с приведенными выше параметрами. В работах [122, 123] были экспериментально определены области времен задержки, при которых резонансное и нерезонансное ЧВВ происходят в режиме, близком к синхронному, и не подвержены заметному влиянию однофотонного поглощения. Для этой цели исследовалась зависимость интенсивности сигнала ЧВВ на выходе из плазмы от эффективной длины плазмы, в которой происходило нелинейно-оптическое взаимодействие. Для изменения эффективной длины плазмы угол между лазерными пучками, участвующими в ЧВВ, и осью лазерной

искры варьировался путем вращения цилиндрической линзы ЦЛ₁ (см. рис. 5).

На рисунке 15 представлены результаты этих измерений для нерезонансного ЧВВ и ЧВВ с резонансом гиперкомбинационного типа на частоте перехода $7s^3P_0^o \rightarrow 6p^2^3P_1$ атомов Pb. Интенсивность сигнала нерезонансного ЧВВ является квадратичной функцией эффективной длины плазмы для всех времен задержки τ , представляющих практический интерес. В случае резонансного ЧВВ при малых временах задержки, зависимость сигнала ЧВВ из лазерной плазмы от эффективной длины плазмы существенно отличается от квадратичной функции (светлые квадраты на рис. 15). В данной области получение информации о пространственном распределении относительных населенностей резонансных уровней оказывается особенно сложным. Для времен задержки порядка 4 мкс (темные квадраты на рис. 15) можно выделить область эффективных длин плазмы, в которой зависимость сигнала ЧВВ P_{FWM} от L с удовлетворительной точностью описывается квадратичной функцией.

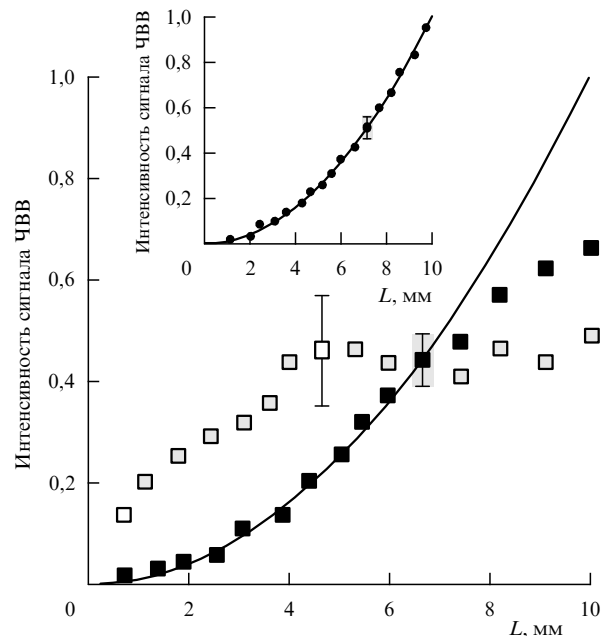


Рис. 15. Зависимость интенсивности сигнала ЧВВ с резонансом на частоте перехода $7s^3P_0^o \rightarrow 6p^2^3P_1$ атомов свинца от длины плазмы L при $\tau = 0,5$ мкс (\square) и $\tau \approx 4$ мкс (\blacksquare). На вставке показана зависимость интенсивности нерезонансного ЧВВ сигнала от L .

Следуя описанной выше методике измерений, можно непосредственно определить в соответствии с формулами (1)–(5) характерную длину синхронного взаимодействия, т.е. наименьший из параметров l_{coh} и $l_{abs} = \min(l_i, l_{FWM})$, $i = 1, 2, 3$. Действительно, поскольку измерения в [122, 123] выполнялись в условиях, когда $b > L$, для качественного описания экспериментальных результатов можно воспользоваться приближением плоских волн. При этом, пока $L < l_{coh}, l_{abs}$, следует ожидать, что интенсивность сигнала ЧВВ на выходе из лазерной плазмы будет изменяться как квадрат длины нелинейной среды, как это имеет место в случае нерезонансного ЧВВ (вставка на рис. 15) и для определенного диапазона эффективной длины плазмы в случае резонансного ЧВВ при достаточно больших временах задержки. Для эффек-

тивной длины плазмы более 6 мм при больших τ наблюдается заметное отклонение мощности сигнала ЧВВ от квадратичной зависимости. Таким образом, для ЧВВ с резонансом на переходе $7s^3P_0^o \rightarrow 6p^2^3P_1$ атома Pb в условиях описанных выше экспериментов на временах задержки порядка 4 мкс имеем следующую оценку: $\min(l_{coh}, l_{abs}) \approx 6$ мм. На малых временах задержки характерные размеры l_{coh} и l_{abs} оказываются достаточно малы, так что зависимость мощности сигнала ЧВВ от длины среды существенно отличается от квадратичной уже при малой толщине плазменного слоя. Для нерезонансного ЧВВ, как можно заключить из вставки к рис. 15, выполняется соотношение $l_{int} < l_{coh}, l_{abs}$.

Таким образом, реализованная в работах [35, 122, 123, 215] экспериментальная процедура позволяет количественно характеризовать влияние однофотонного поглощения и фазовой расстройки на зависимость мощности сигнала ЧВВ от концентрации резонансных частиц. Использование приведенных выше экспериментальных данных совместно с результатами теоретического анализа позволяет корректным образом решить задачу исследования пространственного распределения населенностей возбужденных состояний атомов и ионов.

9.4. Двумерное отображение пространственного распределения атомов в лазерной плазме с помощью одномерного когерентного ЧВВ

Как было показано в разделе 9.2, основные недостатки процедуры поточечного построения двумерных изображений относительных населенностей возбужденных состояний атомов и ионов в плазме связаны с тем, что данный подход требует достаточно большого количества измерений и не обеспечивает разрешения по одной из пространственных координат (см. табл. 3). Необходимо учитывать также, что одна из основных проблем диагностики лазерной плазмы связана с флуктуациями параметров плазмы от импульса к импульсу. Так как каждый лазерный импульс, по существу, создает новую плазменную среду, любая процедура усреднения приводит к потере полезной информации, которая оказывается особенно важной при исследовании нестационарных процессов в пространственно неоднородной плазме.

Эти недостатки могут быть устранены путем перехода от поточечных измерений к построению изображений целых срезов лазерной плазмы с использованием ЧВВ-сигнала, генерируемого в соответствующей области плазмы при пересечении широких неколлинеарных пучков накачки (см. табл. 3). Принципиальное преимущество такого подхода связано с тем, что при этом двумерные изображения распределения интенсивности сигнала ЧВВ могут быть построены за один лазерный импульс. Таким образом можно получать мгновенные изображения пространственного распределения частиц в плазме, что существенно уменьшает потери полезной информации. Аналогично методикам, используемым для исследования газовых потоков [217], получение мгновенных распределений плазменных характеристик за один импульс представляется важным, в частности, для описания плазмы в терминах ее статистических параметров, а также для исследования пространственных корреляций флуктуаций в плазме. Разумеется, использование схем когерентного ЧВВ в широких пучках предполагает достаточный запас по интенсивности сигнала ЧВВ. Как показывают оценки, выполненные в

работе [214], такая процедура представляется перспективной для исследования быстропротекающих пространственно неоднородных процессов в многокомпонентной лазерной плазме.

Техника построения двумерных изображений пространственного распределения атомов в лазерной плазме, основанная на схеме одномерного ЧВВ, в которой сигнал ЧВВ генерируется одновременно вдоль некоторой линии (рис. 16), была реализована в работах [160, 161]. Как и в случае поточечного построения изображений, использовался четырехфотонный процесс с резонансом гиперкомбинационного типа, идущий по схеме $\omega_{\text{FWM}} = \omega_1 + \omega_2 - \omega_0$, где ω_0 — частота основного излучения лазера на Nd:YAG, ω_1 — частота излучения второй гармоники лазера на Nd:YAG, ω_2 — варьируемая частота лазера на красителе. Частота излучения лазера на красителе выбиралась таким образом, чтобы частота сигнала ЧВВ ω_{FWM} оказалась резонансной переходу между состояниями $7s^3P_0^o$ и $6p^2^3P_1$ атома Pb (длина волны 368,45 нм, см. вставку на рис. 3а). Одномерный сигнал ЧВВ, генерируемый в неколлинеарной схеме ЧВВ (рис. 16), использовался для построения изображения пространственного распределения атомов свинца в некотором сечении плазмы линия за линией. В данной схеме пара компланарных широких световых пучков с частотами $\omega_1 = 2\omega_0$ и ω_2 и волновыми векторами \mathbf{k}_1 и \mathbf{k}_2 , образующими малый угол θ , фокусируется цилиндрической линзой и облучает тонкий слой плазмы в плоскости, параллельной плоскости мишени. Световой пучок с частотой ω_0 и волновым вектором \mathbf{k}_0 , составляющим угол α с плоскостью векторов \mathbf{k}_1 и \mathbf{k}_2 , фокусируется цилиндрической линзой и направляется в лазерную плазму сверху. Сигнал ЧВВ генерируется при этом из области пересечения трех широких световых пучков с волновыми векторами \mathbf{k}_0 , \mathbf{k}_1 , \mathbf{k}_2 в направлении вектора \mathbf{k}_{FWM} , определяемого условиями фазового синхронизма и образующего угол β с плоскостью мишени. Карта пространственного распределения возбужденных атомов свинца в некотором сечении плазмы восстанавлива-

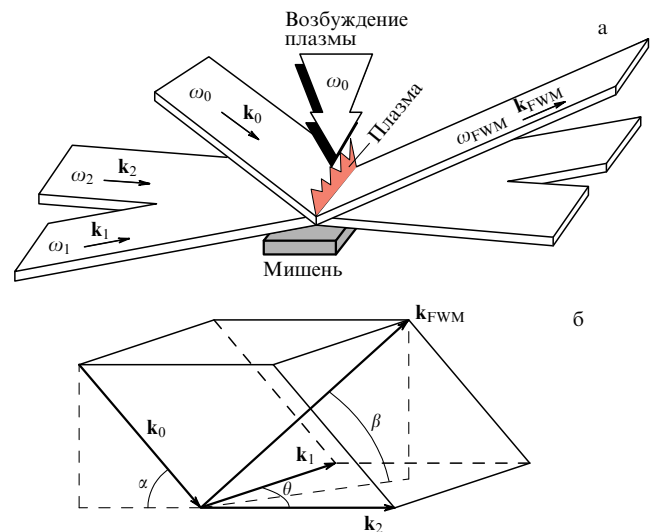


Рис. 16. Построение двумерных изображений пространственного распределения атомов в лазерной плазме на основе схемы одномерного ЧВВ: диаграмма неколлинеарного ЧВВ в широких пучках (а), диаграмма волновых векторов (б).

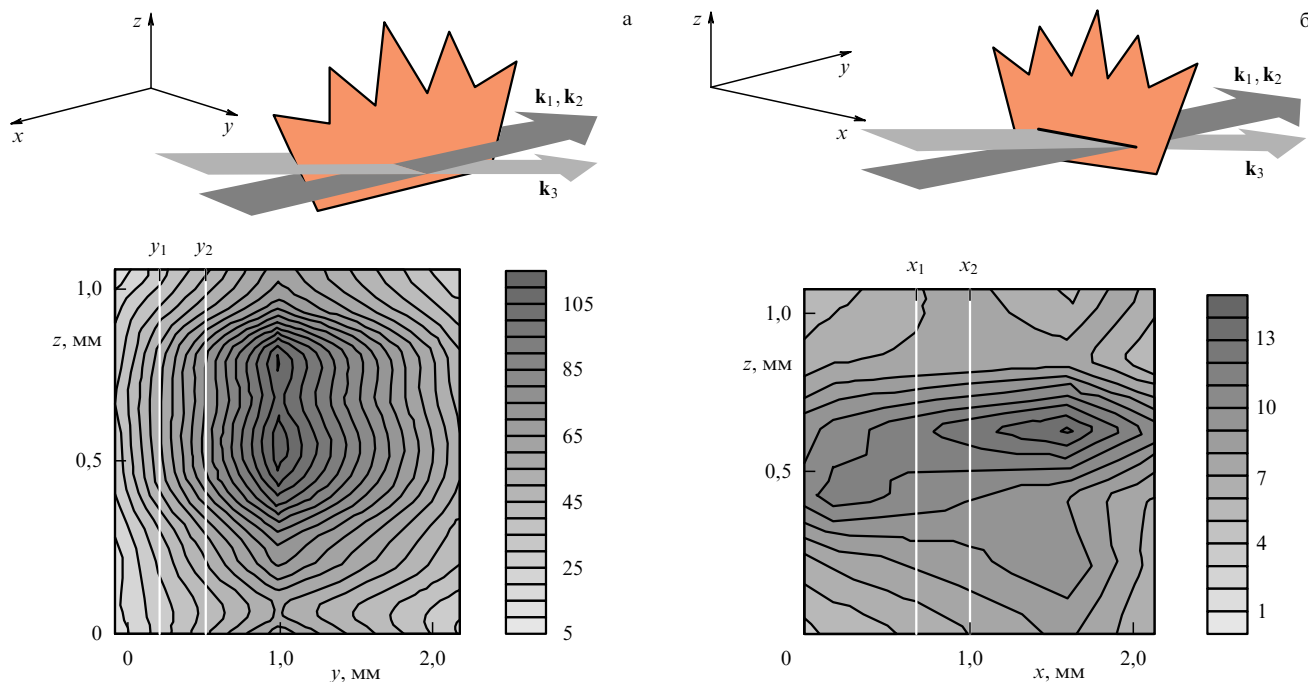


Рис. 17. Двумерные изображения пространственного распределения атомов в лазерной плазме на основе схемы одномерного ЧВВ при продольном (а) и поперечном (б) зондировании плазмы. Вверху — схемы зондирования плазмы; внизу — двумерные карты интенсивности сигнала ЧВВ с резонансом на частоте перехода $7s^3P_0^o \rightarrow 6p^2^3P_1$ атома Pb (длина волны 368,45 нм). Вертикальные светлые линии на рис. а показывают слой $y_1 - y_2$, изображение которого приведено на рис. б, и наоборот: слой $x_1 - x_2$ на рис. б соответствует карте на рис. а.

лась линия за линией путем регистрации одномерного сигнала ЧВВ, изображение которого строилось на ПЗС линейке.

Двумерные карты, представленные на рис. 17, были получены при углах $\theta = 0$ и $\alpha \approx 3^\circ$ в продольной и поперечной геометрии зондирования плазмы. Для построения двумерных карт пространственного распределения атомов лазерная искра перемещалась по отношению к зондирующим пучкам с шагом 50 мкм вдоль оси z . Каждая из 21 линии, использовавшихся для построения двумерных карт на рис. 17, представляла собой результат усреднения по 100 лазерным импульсам. Построение карт пространственного распределения атомов производилось при условиях, когда выполнялись неравенства (8а) и (8б), т.е. четырехволновое взаимодействие происходило в когерентном режиме и влиянием поглощения можно было пренебречь. Чувствительность метода одномерного отображения распределения атомов свинца оценивается как 10^{14} см^{-3} .

Пространственное разрешение метода построения изображений с помощью некомпланарной схемы трехчастотного ЧВВ, реализованной в [160, 161], определяется следующими факторами (см. табл. 3). Разрешение вдоль регистрируемой оптическим многоканальным анализатором линии сигнала ЧВВ в направлении, перпендикулярном волновому вектору $\mathbf{k}_{\text{ФВМ}}$ (см. рис. 16), определяется разрешением системы построения изображения (объективом L_2 на рис. 5). Поскольку использовалась одномерная схема регистрации сигнала ЧВВ, разрешение вдоль направления, перпендикулярного оси многоканального анализатора и ортогонального волновому вектору $\mathbf{k}_{\text{ФВМ}}$, было ограничено геометрическим размером области, из которой генерируется сигнал ЧВВ. При использовании двумерного фотоприемника (например,

ПЗС матрицы) пространственное разрешение в данном направлении будет целиком определяться разрешением системы построения изображения (подробнее см. раздел 9.5).

Схема одномерного ЧВВ [160, 161] не позволяет разрешать когерентно излучающие источники в пределах области пересечения зондирующих пучков, размеры которой определяются геометрией взаимодействия (см. табл. 3). В частности, в экспериментах [160, 161] эта область имела размеры 680×14 мкм. Очевидно, что улучшение пространственного разрешения для данной экспериментальной техники достигается за счет уменьшения интенсивности регистрируемого сигнала, который в отсутствие поглощения и в случае точного фазового синхронизма пропорционален $(I_{\text{int}})^2$.

9.5. Перспективы нелинейно-оптических методов восстановления трехмерных распределений атомов и ионов в лазерной плазме

Восстановление трехмерных распределений физических характеристик (температура, концентрация, скорость, параметры турбулентности) в оптически плотных средах на основании оптических измерений обычно производится с помощью довольно сложных математических процедур [218–220]. Несмотря на достигнутый в этом направлении впечатляющий идейный и технический прогресс, особенно в области медицинских приложений [221] и томографии плазмы [222–225], разработка альтернативных методов получения информации о пространственном распределении параметров среды остается важной задачей диагностики оптически плотной плазмы. В отличие от томографического восстановления трехмерных пространственных распределений физических характеристик, для которого требуется проведе-

ние серии измерений с последующим решением обратной задачи, техника когерентного некопланарного ЧВВ в широких пучках позволяет восстанавливать такие распределения путем непосредственных измерений (см. табл. 3).

В разделе 9.4 была представлена методика, позволяющая восстанавливать распределение возбужденных атомов в некотором сечении плазмы линия за линией. Такой подход позволяет существенно уменьшить количество измерений, а также повысить информативность и надежность измерений по сравнению с техникой поточечных измерений. Естественным обобщением этого метода является схема, в которой трехмерное распределение параметров восстанавливается сечение за сечением. Авторами [34] подобная техника была реализована на основе ВЧВВ для построения изображений пространственного распределения атомов в пламени. Невырожденная по частоте методика ЧВВ для восстановления трехмерного распределения плотности атомов в лазерной плазме срез за срезом была предложена и обоснована в работе [214]. В данной схеме (рис. 18) световой пучок, падающий на плазму сверху, имеет форму цилиндра, ось которого составляет угол α с плоскостью векторов \mathbf{k}_1 и \mathbf{k}_2 , как и ранее, параллельной плоскости мишени. При этом сигнал ЧВВ генерируется из двумерной области пересечения лазерных пучков и несет информацию о распределении физических параметров плазмы в этой области. Строя изображение сигнала ЧВВ из данной области на ПЗС матрице, можно восстановить трехмерное распределение параметров плазмы сечение за сечением.

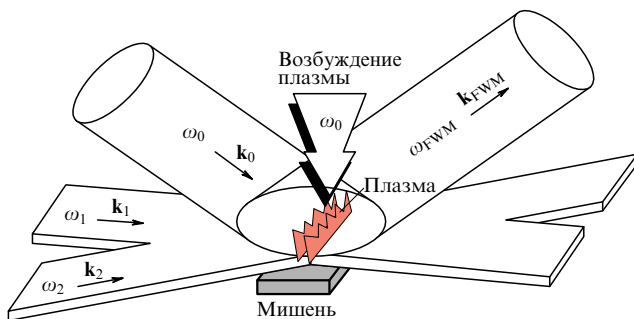


Рис. 18. Диаграмма некопланарного ЧВВ в широких пучках для восстановления трехмерного распределения плотности атомов в лазерной плазме срез за срезом на основе схемы двумерного ЧВВ [214].

Пространственное разрешение данного метода построения изображений вдоль направлений ξ и η , перпендикулярных волновому вектору \mathbf{k}_{FWM} (см. рис. 18 и табл. 3), определяется разрешением системы построения изображения (объективом L_2 на рис. 5). Как показано в работе [226], при достаточной интенсивности сигнала ЧВВ и использовании соответствующего объектива разрешение в данном направлении может оказаться достаточным для реализации схем когерентной микроскопии ЧВВ [227]. Пространственное разрешение вдоль вектора \mathbf{k}_{FWM} определяется длиной области взаимодействия пучков и зависит от геометрии взаимодействия.

Очевидное преимущество описанного метода исследования пространственных распределений параметров

возбужденных газов и плазмы связано с возможностью строить двумерные изображения среды за один лазерный импульс, т.е. производить "мгновенную съемку" целых сечений плазмы. В частности, такой подход представляется чрезвычайно перспективным для исследования пространственно неоднородных быстропротекающих процессов в лазерной плазме.

В таблице 3 представлены возможности различных методов восстановления пространственного распределения параметров плазмы на основе техники когерентного ЧВВ. Как видно из этой таблицы, переход от коллинеарной схемы ЧВВ к неколлинеарной [228] позволяет получать локальную информацию о свойствах среды. При этом не требуется решать обратную задачу восстановления пространственных распределений параметров среды на основании интегральных по длине взаимодействия измерений интенсивности сигнала ЧВВ с учетом эффектов фазового рассогласования и поглощения. Однако если параметры среды флуктуируют от импульса к импульсу (например, в случае лазерной плазмы), схема измерений "точка за точкой" позволяет построить карты распределения лишь для средних значений параметров. Гораздо более ценная информация о мгновенных значениях параметров среды, а также о статистических свойствах флуктуаций параметров может быть получена с использованием неколлинеарных схем ЧВВ в широких пучках накачки, в которых регистрируется двумерный сигнал ЧВВ, несущий информацию о мгновенном распределении параметров в некотором сечении среды. Важно отметить также, что коллинеарная схема поточечных измерений сигнала ЧВВ, вообще говоря, не обеспечивает пространственного разрешения вдоль направления вектора \mathbf{k}_{FWM} , а разрешение в поперечных направлениях ξ и η ограничивается размерами сфокусированных пучков накачки. При переходе от неколлинеарной схемы поточечных измерений к схеме двумерного ЧВВ через промежуточный вариант одномерного ЧВВ пространственное разрешение все в меньшей степени зависит от геометрии взаимодействия и все в большей степени определяется разрешением системы построения изображения (темные ячейки таблицы 3), что, в конечном счете, обеспечивает возможность реализации схемы ЧВВ-микроскопии, аналогичной обсуждаемой в работе [227].

10. Заключение

Представленный обзор экспериментальных и теоретических исследований, выполненных в области когерентного четырехволнового взаимодействия в последние годы, позволяет заключить, что арсенал методов исследования возбужденных и ионизованных газов методами когерентного ЧВВ в настоящее время представляет собой уникальное сочетание экспериментальных схем, позволяющих получать спектральную и временную (спектрохронографическую) информацию о возбужденной газовой среде (прежде всего о ее атомарной и ионной компонентах), селективно исследовать отдельные компоненты сложных по составу нестационарных газовых и плазменных систем с использованием поляризационной техники ЧВВ и когерентной эллипсометрии, а также строить оптические изображения пространственных распределений атомов и ионов в возбужденном газе или плазме.

Продемонстрированы новые приложения методики двумерного отображения на основе использования когерентного ЧВВ с резонансом гиперкомбинационного типа. Эксперименты, выполненные в этом направлении, показывают, что такой подход оказывается эффективным для исследования пространственного распределения параметров возбужденных и ионизованных газовых сред, в том числе плазмы оптического пробоя и газоразрядной плазмы. В частности, метод когерентного ЧВВ в широких пучках позволяет реализовать экспериментальную технику построения двумерных изображений пространственного распределения населенностей в низкотемпературной лазерной плазме, создаваемой на поверхности металлической мишени. Предложенный экспериментальный подход характеризуется высоким пространственным, временным и спектральным разрешением и представляется, благодаря этому, особенно перспективным для исследования быстропротекающих пространственно неоднородных процессов в лазерной плазме. Поляризационная зависимость формы линии сигнала ЧВВ дает возможность существенно повысить чувствительность и избирательность когерентной спектрохронографии многокомпонентных возбужденных газовых сред, а также увеличить контрастность ЧВВ изображений подобных сред.

Результаты выполненных экспериментов показывают, что промежуточные резонансы на частотах переходов между возбужденными состояниями атомов значительно (на несколько порядков) увеличивают эффективность нелинейно-оптического преобразования частоты в лазерной плазме, тем самым кардинально повышая чувствительность нелинейно-оптической диагностики плазмы, основанной на когерентном ЧВВ. Метод широкополосной поляризационной ЧВВ-спектроскопии позволяет записать спектр многокомпонентной плазмы оптического пробоя за один лазерный импульс и благодаря этому исключить влияние неустойчивых флуктуаций параметров плазмы от импульса к импульсу на точность спектроскопических измерений и получить информацию о совместном пространственном распределении различных компонент плазмы за один импульс. Техника поляризационной ЧВВ-спектроскопии плазмы позволяет активно управлять формой спектра ЧВВ, т.е. подавлять или усиливать определенные компоненты в спектре четырехволнового смешения. Благодаря этим свойствам, предложенная экспериментальная методика позволяет исследовать пространственные распределения интенсивностей интерферирующих спектральных линий независимо друг от друга.

Техника когерентной эллипсометрии ЧВВ дает возможность разрешать близкие атомарные и ионные линии в спектре четырехволнового взаимодействия, а также для ряда важных случаев позволяет решить задачу независимого спектрохронографического исследования действительной и мнимой части нелинейно-оптической кубической восприимчивости среды. При определенных условиях метод когерентной эллипсометрии ЧВВ позволяет восстановить спектральные зависимости интерферирующих линий в спектре четырехволнового взаимодействия и получить информацию о разности фаз соответствующих резонансных составляющих нелинейной поляризации среды третьего порядка.

Авторы благодарят Д.А. Акимову, А.Н. Наумову, Д.А. Сидорову-Бирюкову и А.Б. Федотову за полезные

обсуждения и помощь при написании данного обзора, а также Р.Б. Майлса (R.V. Miles) и П. Юарта (P. Ewart) за полезные замечания и новые идеи.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (гранты 96-02-17684 и 97-02-17351), Государственной научно-технической программы "Фундаментальная метрология" (проект 3.48), Государственной научно-технической программы "Физика квантовых и волновых процессов" Министерства науки и технологий РФ по направлениям "Оптика. Лазерная физика" (проект 5.19) и "Фундаментальная спектроскопия" (проект 9.7) и US Civilian Research and Development Foundation (Award RP1-255).

Список литературы

1. Шен И Р *Принципы нелинейной оптики* (М.: Наука, 1989)
2. Райнтжес Дж Ф *Нелинейные оптические параметрические процессы в жидкостях и газах* (М.: Мир, 1987)
3. Ахманов С А, Коротеев Н И *Методы нелинейной оптики в спектроскопии рассеяния света* (М.: Наука, 1981)
4. Eckbreth A C *Laser Diagnostics for Combustion Temperature and Species* (Energy and Engineering Science Series, Vol. 7) (Tunbridge Wells, Kent: Abacus Press, 1988)
5. Régnier P R, Taran J P-E *Appl. Phys. Lett.* **23** 240 (1973)
6. Harvey A B, Nibler J W *Appl. Spectrosc. Rev.* **14** 101 (1978)
7. Eckbreth A C *Combustion and Flame* **39** 133 (1980)
8. Rahn L A, Zych L J, Mattern P L *Opt. Commun.* **30** 249 (1979)
9. Бункин А Ф, Коротеев Н И *УФН* **134** 93 (1981)
10. Bechtel J H, Chraplyvy A R, in *Proc. IEEE* **70** 657 (1982)
11. Shaub W M, Nibler J W, Harvey A B *J. Chem. Phys.* **67** 1883 (1977)
12. Гладков С М, Коротеев Н И, в сб. *Физические основы лазерной и пучковой технологии* (Итоги науки и техники, Т. 2, Под ред. Н И Коротеева, В Я Панченко) (М.: ВИНТИ, 1988) с. 4
13. Bornemann T et al. *Appl. Phys. B* **51** 307 (1990)
14. Гладков С М и др. *Квантовая электрон.* **18** 727 (1991)
15. Бродниковский А М и др. *Письма в ЖТФ* **8** 497 (1982)
16. Beiting E J *Appl. Opt.* **24** 3010 (1985)
17. Гладков С М, Коротеев Н И *УФН* **160** (7) 105 (1990)
18. Гладков С М и др. *Изв. АН СССР. Сер. физ.* **52** 217 (1988)
19. Alessandretti G C, Violino P J. *Phys. D* **16** 1583 (1983)
20. Eckbreth A C, Anderson T J, Dobbs G M *Appl. Phys. B* **45** 215 (1988)
21. Lueckerath R et al. *Chemtronics* **2** 199 (1987)
22. Желтиков А М и др. *Изв. РАН Сер. физ.* **56** (8) 66 (1992)
23. Mann B A, White R F, Morrison R J S *Appl. Opt.* **35** 475 (1996)
24. Fedotov A B et al. *Nuovo Cimento D* **14** 1003 (1992)
25. Желтиков А М и др. *Изв. АН СССР. Сер. физ.* **60** (3) 78 (1996)
26. Sidorov-Biryukov D A et al. *Laser Phys.* **6** 456 (1996)
27. Бутылкин В С и др. *Резонансные взаимодействия света с веществом* (М.: Наука, 1977)
28. Делоне Н Б, Крайнов В П *Основы нелинейной оптики атомарных газов* (М.: Наука, 1986)
29. Бахрамов С А, Тартаковский Г Х, Хабибуллаев П К *Нелинейные резонансные процессы и преобразователи частоты в газах* (Ташкент: ФАН, 1981)
30. Архипкин В Г, Попов А К *Нелинейное преобразование света в газах* (Новосибирск: Наука, 1987)
31. Коротеев Н И *Вестник Моск. ун-в. Сер. 3 Физ. Астр.* (6) 6 (1996)
32. Ахманов С А и др. *ЖЭТФ* **74** 1272 (1978)
33. Ахманов С А, Коротеев Н И *УФН* **123** 405 (1977)
34. Ewart P, Snowdon P, Magnusson I *Opt. Lett.* **14** 563 (1989)
35. Акимов Д А и др. *Квантовая электрон.* **24** 1154 (1997)
36. Гладков С М и др. *Письма в ЖТФ* **14** 1399 (1988)
37. Fedotov A B et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **8** 363 (1991)
38. Желтиков А М, Коротеев Н И, Федотов А Б *Опт. и спектроск.* **72** 971 (1992)
39. Fedotov A B, Koroteev N I, Zheltikov A M, in *Laser Applications* (Proc. SPIE, Vol. 2097, Ed. A A Mak) (Bellingham, WA: SPIE, 1993) p. 308
40. Kubodera S et al. *Phys. Rev. A* **48** 4576 (1993)
41. Zheltikov A M, Koroteev N I, Fedotov A B *Laser Phys.* **4** 569 (1994)
42. Fedotov A B, Koroteev N I, Zheltikov A M *Laser Phys.* **5** 835 (1995)
43. Theobald W et al. *Opt. Commun.* **120** 177 (1995)
44. Von der Linde D et al. *Phys. Rev. A* **52** R25 (1995)
45. Ребане А К и др. *Квантовая электрон.* **23** 291 (1996)
46. Fedotov A B et al. *Laser Phys.* **6** 427 (1996)

47. Fedotov A B et al. *Opt. Commun.* **133** 587 (1997)
48. Backus S et al. *Opt. Lett.* **21** 665 (1996)
49. Tarasevitch A, Orisch A, Von der Linde D, in *XVI Intern. Conf. Coherent and Nonlinear Optics Technical Digest* (Moscow: Moscow State Univ., 1998) p. 323
50. Аскаръян Г А *Письма в ЖЭТФ* **4** 400 (1966)
51. Гладков С М и др. *Письма в ЖЭТФ* **43** 227 (1986)
52. Koroteev N I, Zheltikov A M, in *XIV European CARS Workshop* (Madrid: Inst. Struct. Mater., 1995) p. A3
53. Коротеев Н И *УФН* **152** 493 (1987)
54. Abrams R L, Lind R C *Opt. Lett.* **2** 94 (1978)
55. Fisher R A (Ed.) *Optical Phase Conjugation* (New York: Academic Press, 1983)
56. Ewart P, O'Leary S V *J. Phys. B* **15** 3669 (1982)
57. Pender J, Hesselink L *Opt. Lett.* **10** 264 (1985)
58. Ewart P, O'Leary S V *Opt. Lett.* **11** 279 (1986)
59. Dreier T, Rakestraw D J *Appl. Phys. B* **50** 479 (1990)
60. Germann G J, Rakestraw D J *Science* **264** 1750 (1994)
61. Fantoni R et al. *Chem. Phys. Lett.* **259** 342 (1996)
62. Dreier T, Rakestraw D J *Opt. Lett.* **15** 72 (1990)
63. Yip B, Danehy P M, Hanson R K *Opt. Lett.* **17** 751 (1992)
64. Smith A P, Astill A G *Appl. Phys. B* **58** 459 (1994)
65. Klamming A et al. *Appl. Phys. B* **61** 311 (1995)
66. Kaminski C F, Hughes I G, Ewart P *J. Chem. Phys.* **106** 5324 (1997)
67. Butcher P N, Cotter D *The Elements of Nonlinear Optics* (Cambridge Studies in Modern Optics, Vol. 9) (Cambridge: Cambridge Univ. Press, 1990)
68. Meacher D R et al. *Phys. Rev. A* **42** 3018 (1990)
69. Ewart P, Snowdon P *Opt. Lett.* **15** 1403 (1990)
70. Rakestraw D J, Farrow R L, Dreier T *Opt. Lett.* **15** 709 (1990)
71. Ewart P, Kaczmarek M *Appl. Opt.* **30** 3996 (1991)
72. Nyholm K, Fritzon R, Alden M *Appl. Phys. B* **59** 37 (1994)
73. Ljungberg P, Axner O *Appl. Phys. B* **59** 53 (1994)
74. Ljungberg P, Axner O *Appl. Opt.* **34** 527 (1995)
75. Ewart P, O'Leary S V *J. Phys. B* **17** 4595 (1984)
76. Bratfalean R, Ewart P *J. Mod. Opt.* **43** 2523 (1996)
77. Konz K E, Marowsky G, Rubahn H-G *Opt. Commun.* **134** 75 (1997)
78. Kaminski C F, Loefstedt B, Alden M, in *XV European CARS Workshop* (Sheffield: Univ. Sheffield, 1996) p. A22
79. Ewart P, Smith P G R, Williams R B *Appl. Opt.* **36** 5959 (1997)
80. Maker P D, Terhune R W *Phys. Rev.* **137** A801 (1965)
81. Yablonovitch E, Flytzanis C, Bloembergen N *Phys. Rev. Lett.* **29** 865 (1972)
82. Ахманов С А и др. *Письма в ЖЭТФ* **15** 600 (1972)
83. Roh W B, Schreiber P W, Taran J P E *Appl. Phys. Lett.* **29** 174 (1976)
84. Смирнов В В, Фабелинский В И *Письма в ЖЭТФ* **28** 461 (1978)
85. Осин М Н и др. *ЖТФ* **51** 106 (1981)
86. Murphy D V, Chang R K *Opt. Lett.* **6** 233 (1981)
87. Бункин А Ф, Иванов С Г, Коротеев Н И *Письма в ЖТФ* **3** 450 (1977)
88. Алиев М Р, Козлов Д Н, Смирнов В В *Письма в ЖЭТФ* **26** 31 (1977)
89. Fabelinsky V I et al. *Opt. Commun.* **20** 389 (1977); Kiefer W J. *Mol. Structure* **59** 305 (1980)
90. Азизбекян Г В и др. *Квантовая электроника*. **4** 1911 (1977)
91. Ахманов С А и др. *Письма в ЖЭТФ* **26** 603 (1977)
92. Валянский С И и др. *Труды ИОФАН* **2** 117 (1986)
93. Дьяков Ю Е и др. *ЖЭТФ* **84** 2013 (1983)
94. Akhmanov S A et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **2** 640 (1985)
95. Ахманов С А и др. *Оптика и спектроскопия*. **64** 503 (1988)
96. Pichler G et al. *Nuovo Cimento D* **14** 1065 (1992)
97. Бродниковский А М и др. *ЖЭТФ* **84** 1664 (1983)
98. Гладков С М и др. *Оптика и спектроскопия*. **65** 249 (1988)
99. Kung A H *Appl. Phys. Lett.* **25** 653 (1974)
100. Hilbig R, Wallenstein R *Appl. Opt.* **21** 913 (1982)
101. Freeman R R et al. *Appl. Phys. Lett.* **33** 739 (1978)
102. Corney A, Gardner K J. *Phys. B* **11** 2037 (1978)
103. Бункин С Б и др. *Оптика и спектроскопия*. **66** 1182 (1989)
104. Murphy D V et al. *Opt. Lett.* **4** 167 (1979)
105. Snow J B, Zheng J, Chang R K *Opt. Lett.* **8** 599 (1983)
106. Jonuscheit J et al. *Opt. Lett.* **21** 1532 (1996)
107. Eckbreth A C, Anderson T J *Appl. Opt.* **24** 2731 (1985)
108. Eckbreth A C, Anderson T J *Opt. Lett.* **11** 496 (1986)
109. Aldén M, Bengtsson P-E, Edner N *Appl. Opt.* **25** 4493 (1986)
110. Laufer G, Miles R B *Opt. Commun.* **28** 250 (1979)
111. Laufer G, Miles R B, Santavica D *Opt. Commun.* **31** 242 (1979)
112. Булдаков М А и др. *Квантовая электроника*. **11** 405 (1984)
113. Евсин О А и др. *Квантовая электроника*. **22** 295 (1995)
114. Koroteev N I et al., in *ICONO'98: Laser Spectroscopy and Optical Diagnostic* (Proc. SPIE, Vol. 3732, Eds A Y Chikishev, V N Zadkov, A M Zheltikov) (Bellingham, WA: SPIE, 1999)
115. Гладков С М и др. *Квантовая электроника*. **14** 1086 (1987)
116. Гладков С М и др. *Квантовая электроника*. **16** 1430 (1989)
117. Гладков С М и др. *Письма в ЖТФ* **15** (13) 24 (1989)
118. Koroteev N I et al. *Laser Phys.* **7** 45 (1997)
119. Koroteev N I et al. *Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. Suppl. Phys. Vibr.* **60** 149 (1996)
120. Fedotov A B et al. *Laser Physics* **8** 570 (1998)
121. Koroteev N I, Zheltikov A M *Mol. Cryst. Liq. Cryst. Sci. Technol. Sec. B: Nonlinear Optics* **3** 319 (1992)
122. Akimov D A et al. *Opt. Commun.* **140** 259 (1997)
123. Fedotov A B et al. *J. Nonlinear Optical Phys. Mater.* **6** 387 (1997)
124. Shkolnikov P L, Kaplan A E, Lago A *Opt. Lett.* **18** 1700 (1993)
125. Желтиков А М, Коротеев Н И, Наумов А Н *Квантовая электроника*. **21** 1189 (1994)
126. Koroteev N I, Naumov A N, Zheltikov A M *Laser Phys.* **4** 1160 (1994)
127. Naumov A N, Koroteev N I, Zheltikov A M *Laser Phys.* **5** 965 (1995).
128. Гладков С М, Желтиков А М, Ильясов О С, в сб. *Тез. докл. XX Всесоюзного съезда по спектроскопии* Ч. 1 (Киев: Наукова думка, 1988) с. 101
129. Akimov D A et al. *Laser Phys.* **7** 99 (1997)
130. Miles R B, Harris S E *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-9** 470 (1973)
131. McPherson A et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **4** 595 (1987)
132. Ferray M et al. *J. Phys. B* **21** L31 (1988)
133. Li X F et al. *Phys. Rev. A* **39** 5751 (1989)
134. Balcou Ph et al. *J. Phys. B* **25** 4467 (1992)
135. Sarukura N et al. *Phys. Rev. A* **43** 1669 (1991)
136. Macklin J J, Kmetec J D, Gordon C L *Phys. Rev. Lett.* **70** 766 (1993)
137. Kondo K et al. *Phys. Rev. A* **47** 2480 (1993)
138. Wahlstrom C-G et al. *Phys. Rev. A* **48** 4709 (1993)
139. Mittleman D M et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **13** 170 (1996)
140. Spielmann Ch et al. *Science* **278** 661 (1997)
141. Spielmann Ch et al., in *Conf. Lasers and Electro-Optics Technical Digest* Vol. 6 (Washington DC: Opt. Soc. Am., 1998) p. 81
142. Marcatili E A J, Schmeltzer R A *Bell Syst. Tech. J.* **43** 1783 (1964)
143. Miles R B, Laufer G, Bjorklund G C *Appl. Phys. Lett.* **30** 417 (1977)
144. Nisoli M, De Silvestri S, Svetlo O *Appl. Phys. Lett.* **68** 2793 (1996)
145. Nisoli M et al. *Opt. Lett.* **22** 522 (1997)
146. Sartania S et al. *Opt. Lett.* **22** 1562 (1997)
147. Durfee C G et al. *Opt. Lett.* **22** 1565 (1997)
148. Koroteev N I, Zheltikov A M *Laser Phys.* **8** 512 (1998)
149. Koroteev N I, Zheltikov A M *Appl. Phys. B* **67** 53 (1998)
150. Tamaki Y, Midorikawa K, Obara M *Appl. Phys. B* **67** 59 (1998)
151. Durfee C G et al., in *Intern. Quantum Electronic Conf.* (Washington DC: Opt. Soc. Am., 1998) p. QPD5
152. Akimov D A et al. *Opt. Lett.* **24** 478 (1999)
153. Ward J F, New G H C *Phys. Rev.* **185** 57 (1969)
154. Bjorklund G C *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-11** 287 (1975)
155. Koroteev N I, Naumov A N, Zheltikov A M *Laser Phys.* **4** 1160 (1994)
156. Zheltikov A M et al. *Laser Phys.* **6** 49 (1996)
157. Седов Л Л *Методы подобия и размерности в механике* (М.: Наука, 1981)
158. Коробейников В П, Мельникова Н С, Рязанов Е В *Теория точечного взрыва* (М.: Физматгиз, 1961)
159. Островская Г В, Зайдель А Н *УФН* **111** 579 (1973)
160. Zheltikov A M et al., in *Intern. Quantum Electronic Conf. Technical Digest* Vol. 7 (Washington DC: Opt. Soc. Am., 1998) p. 147
161. Akimov D A et al., in *ICONO'98: Laser Spectroscopy and Optical Diagnostic* (Proc. SPIE, Vol. 3732, Eds A Y Chikishev, V N Zadkov, A M Zheltikov) (Bellingham, WA: SPIE, 1999)
162. Kröll S et al. *Appl. Opt.* **26** 1068 (1987)
163. Snelling D R, Sawchuk R A, Parameswaran T *Appl. Opt.* **33** 8295 (1994)
164. Ewart P *Opt. Commun.* **55** 124 (1985)
165. Snowdon P, Skippon S M, Ewart P *Appl. Opt.* **30** 1008 (1991)
166. Kaminski C F, Ewart P *Appl. Opt.* **36** 731 (1997)
167. Kaminski C F, Ewart P *Appl. Phys. B* **64** 103 (1997)
168. Гладков С М, Коротеев Н И, Желтиков А М, в сб. *Современные проблемы лазерной физики* (Итоги науки и техники, Т. 4, Под ред. С А Ахманова) (М.: ВИНТИ, 1991) с. 126
169. Czarnetzki U, Dobele H F *Phys. Rev. A* **44** 7530 (1991)
170. Schulz-von der Gathen V et al. *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-26** 739 (1990)

171. Wellegehausen B et al., in *Conf. Lasers and Electro-Optics Europe, Technical Digest* (Hamburg: Hamburg Univ., 1996) p. 331
172. Payne D S et al., in *XV European CARS Workshop* (Sheffield: Univ. Sheffield, 1996) p. A20
173. Fedotov A B et al. *Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. Suppl. Phys. Vibr.* **58** 115 (1994)
174. Биберман Л М, Воробьев В С, Якубов И Т *Кинетика неравновесной низкотемпературной плазмы* (М.: Наука, 1982)
175. Бохан П А *Квантовая электрон.* **13** 1837 (1986)
176. Астаджов Д Н и др. *Квантовая электрон.* **14** 396 (1987)
177. Астаджов Д Н и др. *Труды ФИАН* **181** 122 (1987)
178. Батенин В М и др., Препринт 5-210 (М.: ИВТАН, 1985)
179. Oudar J-L, Smith R W, Shen Y R *Appl. Phys. Lett.* **34** 758 (1979)
180. Вигасина М Ф и др. *ДАН СССР* **283** 1394 (1985)
181. Koroteev N I, Endemann M, Byer R L *Phys. Rev. Lett.* **43** 398 (1979)
182. Lotem H, Lynch R T (Jr), Bloembergen N *Phys. Rev. A* **14** 1748 (1976)
183. Асланян Л С, Бункин А Ф, Коротеев Н И *Письма в ЖТФ* **4** 1177 (1978)
184. Иванов А А и др. *Опт. спектроск.* **66** 1046 (1989)
185. Levenson M D, Bloembergen N *Phys. Rev. B* **10** 4447 (1974)
186. Levenson M D, Bloembergen N *J. Chem. Phys.* **60** 1323 (1974)
187. Бункин А Ф, Иванов С Г, Коротеев Н И *ДАН СССР* **233** 338 (1977)
188. Ахманов С А и др. *Письма в ЖЭТФ* **25** 244 (1977)
189. Ахманов С А и др. *Письма в ЖЭТФ* **25** 444 (1977)
190. Oudar J-L, Shen Y R *Phys. Rev. A* **22** 1141 (1980)
191. Асланян Л С, Бункин А Ф, Коротеев Н И *Опт. и спектроск.* **46** 165 (1978)
192. Nestor J R *J. Raman Spectrosc.* **7** 90 (1978)
193. Ferrante G, Koroteev N I, Zheltikov A M *Laser Phys.* **6** 1095 (1996)
194. Желтиков А М, Коротеев Н И, Сидоров-Бирюков Д А *Квантовая электрон.* **21** 509 (1994)
195. Коротеев Н И, Шумай И Л *Физика мощного лазерного излучения* (М.: Наука 1991)
196. Fano U *Phys. Rev.* **124** 1866 (1961)
197. Fano U Cooper J W *Phys. Rev.* **137** A1364 (1965)
198. Fano U *Phys. Rev. A* **2** 353 (1970)
199. Геллер Ю И, Попов А К *Лазерное индуцирование нелинейных резонансов в сплошных спектрах* (Новосибирск: Наука, 1981)
200. Armstrong J A, Wynne J J, in *Nonlinear Spectroscopy* (Ed. N Bloembergen) (Amsterdam: North-Holland, 1977) p. 152
201. Беков Г И и др. *Письма в ЖЭТФ* **28** 308 (1978)
202. Armstrong J A, Wynne J J *Phys. Rev. Lett.* **33** 1183 (1974)
203. Nittoh R et al. *J. Phys. B* **27** 1955 (1994)
204. Bekov G I et al. *Opt. Commun.* **35** 194 (1980)
205. Беков Г И и др. *ЖЭТФ* **80** 866 (1981)
206. Pavlov L I et al. *Phys. Lett. A* **89** 441 (1982)
207. Dimov S S et al. *Appl. Phys. B* **30** 35 (1983)
208. Елизаров А Ю, Черепков Н А *ЖЭТФ* **96** 1224 (1989)
209. Bobashev S V et al. *Laser Phys.* **3** 751 (1993)
210. Бобашев С В и др. *ЖЭТФ* **106** 90 (1994)
211. Елизаров А Ю *Письма в ЖЭТФ* **62** 23 (1995)
212. Желтиков А М, Ильясов О С, Коротеев Н И *Письма в ЖЭТФ* **54** 143 (1991)
213. Bloembergen N, Lotem H, Lynch R T *Indian J. Pure Appl. Phys.* **16** 151 (1978)
214. Akimov D A et al. *Laser Phys.* **7** 755 (1997)
215. Сидоров-Бирюков Д А, Желтиков А М, Коротеев Н И *Квантовая электрон.* **23** 101 (1996)
216. Antcliff R R, Jarrett O (Jr.) *Rev. Sci. Instrum.* **58** 2075 (1987)
217. Miles R B et al. *ALAA J.* **31** 447 (1993)
218. Ishimaru A *Wave Propagation and Scattering in Random Media* (New York: Academic Press, 1978)
219. Natterer F *The Mathematics of Computerized Tomography* (Stuttgart, B.G.: Teubner, 1986)
220. Тихонов А Н, Арсенин В Я, Тимонов А А *Математические задачи компьютерной томографии* (М.: Наука, 1987)
221. *Medical Optical Tomography: Functional Imaging and Monitoring* (SPIE Institutes for Advanced Optical Technologies, Vol. IS11, Eds G Muller et al.) (Bellingham, WA: SPIE, 1993)
222. Minerbo G N et al. *Appl. Opt.* **19** 1723 (1980)
223. Chen Y W et al. *J. Appl. Phys.* **68** 1483 (1990)
224. Russanov E V, Vishnyakov G N, in *Analytical Methods for Optical Tomography* (Proc. SPIE, Vol. 1843, Ed. G G Levin) (Bellingham, WA: SPIE, 1992) p. 83
225. Balandin A L et al., in *Analytical Methods for Optical Tomography* (Proc. SPIE, Vol. 1843, Ed. G G Levin) (Bellingham, WA: SPIE, 1992) p. 68
226. Koroteev N I, Naumov A N, Zheltikov A M, in *7th Intern. Conf. Laser Applications in Life Sciences* (Bratislava: Int. Laser Center, 1998) p. P2-18
227. Duncan M D, Reintjes J, Manuccia T J *Opt. Lett.* **7** 350 (1982)
228. Eckbreth A C *Appl. Phys. Lett.* **32** 421 (1978)

Coherent four-wave mixing in excited and ionized gas media: four-photon spectrochronography, ellipsometry, and nonlinear-optical imaging of atoms and ions

A.M. Zheltikov, N.I. Koroteev

M.V. Lomonosov Moscow State University, Physics Department, International Laser Center, Vorob'evy gory, 119899 Moscow, Russian Federation
 Tel. (7-095) 939-39 59
 Fax (7-095) 939-31 13
 E-mail: zheltikov@nls1.ilc.msu.su

The coherent four-photon methods of studying excited and ionized gas media are reviewed in the context of their applications and of the main lines of research and novel techniques they are involved in. Among the possibilities offered by the methods are obtaining spectrochronographical information on atoms and ions; the selective study, utilizing polarization and coherent ellipsometry techniques, of the individual components of complex, nonstationary gas and plasma systems; and the optical imaging of the spatial distribution of atoms and ions in excited gases and plasmas.

PACS numbers: 42.62.Fi, **42.65.k**, **51.70**, + f, **52.25.b**

Bibliography — 228 references

Received 26 October 1998