1969 г. Февраль *Том 97, вып. 2*

УСПЕХИ ФИЗИЧЕСКИХ НАУК

535.375

ВЫНУЖДЕННОЕ КОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА *)

Н. Бломберген

I. ВВЕДЕНИЕ

Исследование спонтанного комбинационного рассеяния переживало период бурного развития в конце 20-х и начале 30-х годов. Это нашло широкое отражение в обзорных статьях и монографиях [1-5].

Принципиально комбинационное рассеяние представляет собой процесс неупругого рассеяния света, как это иллюстрируется на рис. 1. Падающий квант света $h\nu_L$ рассеивается в виде кванта $h\nu_s$; при этом разница в энергии $h(\nu_L - \nu_s) = h\nu_{ba}$ поглощается рассеивающим центром вещества. В принципе возбуждение молекул рассеивающего вещества может быть чисто электронное, но часто оно бывает колебательным или вращательным. Частота ν_s называется стоксовой частотой; она меньше частоты падающего света на величину, равную частоте возбужденной рассеивающей системы. Если свет падает на систему, находящуюся в возбужденном состоянии, то эта система может перейти в невозбужденное состояние в результате рассеяния света. В этом случае рассеянный свет содержит антистоксовы частоты ν_{as}, которые больше частоты падающего света, $\nu_{as} = \nu_L + \nu_{ba}$. Термины «стоксова» и «антистоксова» имеют чисто историческое происхождение.

Вынужденный процесс рассеяния схематически представлен в нижней части рис. 1. В этом случае одновременно со световой волной частоты ν_L на рассеивающую систему падает световая волна частоты ν_s. Квант $h\nu_L$ добавляется к волне частоты ν_s, которая вследствие этого усиливается; падающий световой пучок теряет квант $h\nu_L$, а система возбуждается на величину кванта $h(\nu_L - \nu_s)$.

Квантовая теория таких двухфотонных процессов была разработана еще в конце 20-х и начале 30-х годов. Связь между вынужденным и спонтанным процессами излучения выражается, конечно, алгебраически через вероятность перехода электромагнитного излучателя на частоте ν_s из состояния с N_s квантами в состояние с $N_s + 1$ квантами. Эта вероятность пропорциональна $N_s + 1$. Число спонтанно рассеянных квантов на длине рассеивающего вещества dz в телесный угол $d\Omega$ для одной поляризации выражается через сечение рассеяния так:

$$(dN_s)_{sp} = N_a N_L \left(\frac{\partial \sigma_{sp}^R}{\partial \Omega}\right) d\Omega\, dz. \tag{1}$$

Соотношение (1) можно рассматривать как определение сечения рассеяния спонтанного комбинационного излучения на атом, σ_{sp}^R; N_a —

*) N. Bloembergen, The Stimulated Raman Effect, Amer. J. Phys. 35 (11), 989 (1967). Перевод И. М. Арефьева, под редакцией И. Л. Фабелинского.

число молекул в единице объема в состоянии с низшей энергией, а N_L — число падающих лазерных квантов. Число квантов стоксовой частоты может также изменяться из-за процессов вынужденного излучения и поглощения. Последний процесс имеет место, если вещество содержит некоторое число атомов N_b в верхнем энергетическом состоянии. В таком случае атом переходит в нижнее состояние, при этом поглощается стоксов квант

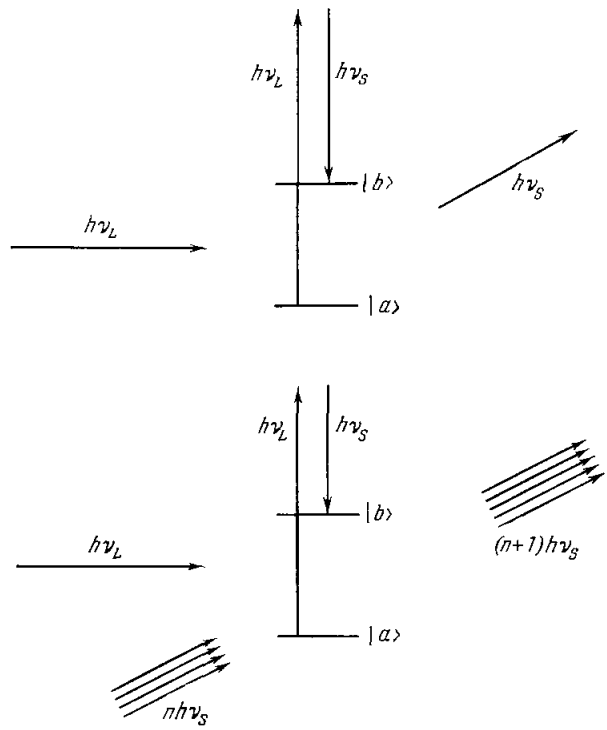

Рис. 1. Схема спонтанного (вверху) и вынужденного (внизу) комбинационного рассеяния света как квантового процесса.

и испускается лазерный квант. (Заметим, что процессы спонтанного комбинационного рассеяния от атома в верхнем энергетическом состоянии должны включать в себя спонтанное излучение антистоксова кванта частоты $\nu_{as} = \nu_L + \nu_{ba}$; при этом квант $h\nu_L$ выбывает из лазерного луча и атом переходит в состояние с низшей энергией.)

Изменение числа стоксовых квантов за счет процессов комбинационного вынужденного излучения и поглощения можно выразить через сечение спонтанного комбинационного рассеяния:

$$\frac{dN_s}{dz} = (N_a - N_b)\,\frac{\partial\sigma_{sp}^{R}}{\partial\Omega}\,N_L N_s\left(\frac{c^3}{\nu_s^2 n_s^3}h(\nu_s)\right); \qquad (2)$$

здесь n_s — показатель преломления вещества на стоксовой частоте. Последний множитель указывает на то, что плотности конечных состояний различны для спонтанного и вынужденного процессов. Для спонтанного процесса важно число вакуумных осцилляторов, отнесенное к единичному телесному углу, объему и частотному интервалу, $\nu_s^2 n_s^3/c^3$. Для поглощения и вынужденного излучения стоксовых квантов в данной электромагнитной волне имеет значение плотность состояний вещества, которая может быть выражена через нормированную функцию, описы-

вающую некоторое распределение $h(\nu_s)$. Это распределение может быть часто представлено дисперсионной кривой с полушириной, определяемой константой затухания Γ_{ab}, соответствующей паре энергетических уровней системы, участвующих в переходе, а именно

$$h(\nu_s) = \frac{2\Gamma_{ab}}{(\omega_L - \omega_s - \omega_{ba})^2 + \Gamma_{ab}^2}. \tag{3}$$

В случае резонанса, $\omega_L - \omega_s = \omega_{ab}$, эта функция обратно пропорциональна ширине и равна $2/\Gamma_{ab}$.

Число фотонов, конечно, пропорционально интенсивности световых волн. Видно, что вынужденное излучение будет только сравнимо или больше спонтанного, если число падающих фотонов N_L так велико, что оно превышает число вакуумных электромагнитных мод, содержащихся в частотном интервале, соответствующем ширине линии.

Ситуация может быть также описана следующим образом. Процесс вынужденного излучения соответствует экспоненциальному усилению стоксовой волны, т. е. световой волны со стоксовой частотой:

$$\frac{dN_s}{dz} = g_s N_s, \qquad I_s(l) = I_s(0)\, e^{g_s l}, \tag{4}$$

с характеристическим коэффициентом усиления (при резонансе $\omega_L - \omega_s - \omega_{ba} = 0$), задаваемым выражением

$$g_s = (N_a - N_b)\frac{\partial\sigma_{sp}^R}{\partial\Omega}\frac{c^3 n_L^2}{\Gamma_{ab}\nu_s^2 \cdot 4\pi n_s^3}|E_L|^2; \tag{5}$$

здесь E_L — амплитуда лазерной световой волны и величина $|E_L|^2$, конечно, пропорциональна N_L из выражения (2). В таблице приводятся типич-

Частотные сдвиги некоторых стоксовых линий низкого порядка, испущенных при вынужденном комбинационном рассеянии в нескольких выбранных веществах. Для сравнения приводятся несколько интенсивных линий в спонтанном комбинационном спектре

Вещество	Сдвиг когерентных комбинационных линий от частоты рубинового лазера, $см^{-1}$	Сдвиг двух самых сильных некогерентных стоксовых линий, $см^{-1}$	Вещество	Сдвиг когерентных комбинационных линий от частоты рубинового лазера, $см^{-1}$	Сдвиг двух самых сильных некогерентных стоксовых линий, $см^{-1}$
Бензол	3064±2 990±2 1980±4	3064 991,6	Кальцит	1075 2171	1085,6
Нитробензол	1344±2 2×(1346±2) 3×(1340±5)	1345 и 1004	α-сера	216 472 946	216 и 468
Толуол	1004±4	1002 и 785	Газообразный водород (H_2)	4155	$Q_1(1)$
1-бромонафталин	1368	1363 и 3060	Газообразный водород (D_2) (при различных температурах и поляризациях лазера появляются различные линии вынужденного рассеяния)	2991 2992,1 2996,4 414 170	$Q_1(2)$ $Q_1(1)$ $Q_1(0)$ $S_0(2)$ $F_0(0)$
Пиридин	992±2 2×(992±5)	991 и 3054			
Циклогексан	2852±1	801 и 2853			
Дейтерированный бензол	944,3±1 2×944	944,7 и 2292			
Алмаз	1325 2661	1331,8			

ные стоксовы сдвиги для нескольких материалов, в которых наблюдалось вынужденное комбинационное рассеяние. Для больших стоксовых сдвигов $h\nu_{ba} = h(\nu_L - \nu_s) \gg kT$. В этом случае N_b очень мало и N_a может быть положено равным числу молекул в единичном объеме. Чтобы читатель мог получить представление о порядках величин, ниже даются некоторые данные для полносимметричного колебания молекулы нитробензола 1345 $см^{-1}$. Полное сечение комбинационного рассеяния, суммированное по телесному углу 4π, было измерено [6] для одной поляризации в жидком состоянии и оказалось равным $6 \cdot 10^{-30}$ $см^2$. Полуширина $\Gamma_{ba}/2\pi c = 4$ $см^{-1}$. Из выражения (5) вычисляется коэффициент усиления $g_s = 0{,}3$ $см^{-1}$ при плотности лазерного излучения 10^8 $вт/см^2$. Интенсивность света, требуемая для получения заметного усиления, так высока, что необходимы импульсные твердотельные лазеры. Поэтому не случайно, что открытие вынужденного комбинационного рассеяния [7] было сделано

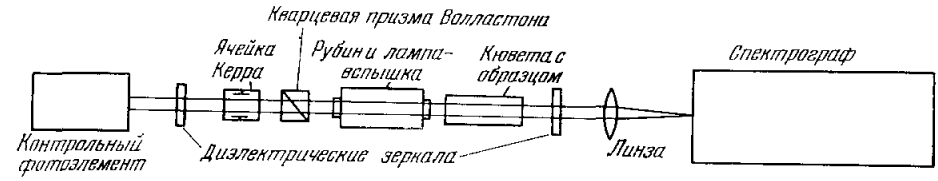

Рис. 2. Первоначальное устройство Вудбери и Нга, в котором наблюдалось вынужденное комбинационное рассеяние.

Наблюдалось интенсивное стоксово излучение, соответствующее доминирующему колебанию жидкости в кювете для образцов. Без кюветы можно было наблюдать стоксово излучение из нитробензола в ячейке Керра, используемой для модуляции добротности [107].

в той же самой лаборатории, где впервые был запущен рубиновый лазер [8]. В этой же лаборатории был предложен [9] и осуществлен [10] лазер с модулированной добротностью для получения высоких пиковых плотностей излучения. Сначала модуляция добротности осуществлялась с помощью ячейки Керра на нитробензоле. При подробном изучении поведения излучения в такого рода устройстве, схематически представленном на рис. 2, была обнаружена вынужденная стоксова линия нитробензола [11]. Эффект был быстро интерпретирован [6, 12] и наблюдался во многих других жидкостях [13, 14] и твердых телах [15].

Было найдено несколько стоксовых линий высокого порядка. Их частоты являются точными кратными ν_{ab}, если отсчитывать от лазерной частоты: $\nu_L - 2\nu_{ab}$, $\nu_L - 3\nu_{ab}$ и т. д. Интенсивность стоксовой линии достаточно высока, чтобы это излучение сыграло роль лазерного луча и возбудило в свою очередь излучение на частоте стоксовой гармоники второго порядка $\nu_L - 2\nu_{ab}$. Это явление следует тщательно отличать от появления стоксовых линий вблизи тех же частот в спонтанном комбинационном излучении. Последние разделены неравными интервалами, и их интенсивность всегда очень слаба. Спонтанные линии соответствуют переходам из основного состояния в более высокие колебательные состояния молекулярных колебаний со слабой ангармоничностью. Матричные элементы для этих переходов малы. Эти линии не должны наблюдаться в режиме вынужденного излучения, так как для статистики Бозе характерно, что если развился вынужденный процесс, то он растет и способен конкурировать все более эффективно с другими процессами. Это можно сравнить с потоком денег в игре «монополия». Процесс выражается математически с помощью экспоненциальной функции (смотри формулу (4)). Комбинационный переход с наибольшим коэффициентом усиления g_s обычно настолько преобладает, что только он один и наблюдается. Чаще всего он соответствует полносимметричному колебанию, которое имеет

обычно большую силу осциллятора и небольшую константу затухания. В некоторых случаях одновременно возбуждаются два перехода и более.

Сначала всегда должен быть спонтанно испущенный квант. Можно сказать, что экспоненциально растущие волны возникают от уровня шума, обусловленного процессом спонтанного рассеяния. Если нет никакой обратной связи, излучение будет расти главным образом в направлении, параллельном и антипараллельном лазерному лучу. Спектральное распределение будет становиться у́же, поскольку усиление максимально вблизи центра линии, в соответствии с выражениями (3) и (5). На квантовомеханическом языке говорят, что вещество находится в «когерентно-излучающем состоянии» [16]. Это — состояние, в котором вынужденный процесс становится важным. Яркость (интенсивность в единицу телесного угла и на единичный частотный интервал) вынужденных комбинационных линий обычно на множитель e^{10}— e^{20} выше яркости спонтанного излучения. Вот почему вынужденное рассеяние можно легко наблюдать и фотографировать в течение 10^{-8} *сек* — длительности импульса лазера с модулированной добротностью.

С такими большими коэффициентами усиления будет очень трудно (если не абсолютно невозможно) подавить влияние обратной связи. Конечно, можно получить вынужденное рассеяние при много меньшем усилении за один проход с использованием зеркал. Условие для устойчивой генерации в этом случае имеет вид

$$R_1R_2e^{2g_sl} = e^{2\alpha l}. \tag{6}$$

Здесь в левой части стоит усиление мощности за один проход между зеркалами, которые имеют коэффициенты отражения на стоксовой частоте соответственно R_1 и R_2 и разделены расстоянием l. Неизбежные потери из-за рассеяния, поглощения и дифракции описываются коэффициентом потерь α. Условие (6) имеет, конечно, тот же самый вид, что и условие генерации для лазера. Излучение комбинационного лазера возникает от шума спонтанного излучения. В устойчивом состоянии коэффициент усиления g_s будет подстраиваться таким образом, чтобы удовлетворялось равенство (6). Если коэффициент усиления g_s, даваемый выражением (5), существенно больше, чем требуемый согласно (6), процесс должен завершаться нелинейным эффектом на более высоких колебательных уровнях. Либо мощность лазера может быть истощена до требуемого уровня, либо же разность заселенностей $N_a - N_b$ может быть уменьшена. Заметим, что заселенность в комбинационном лазере необратима. Комбинационные лазеры обычно не работают в постоянном режиме, поскольку они накачиваются лазером с модулированной добротностью. Возникновение генерации экспоненциально и во времени. «Порог» в действительности часто означает, что в течение длительности лазерного импульса генерация достигает детектируемого уровня.

На антистоксовой частоте $\nu_{as} = \nu_L + \nu_{ba}$ можно ожидать поглощения, пропорционального лазерной интенсивности. Вынужденный комбинационный процесс, при котором интенсивность излучения пропорциональна интенсивности лазерного и антистоксова излучения, приводил бы к возрастающим потерям на антистоксовой частоте, сопровождающимся усилением на лазерной частоте. По аналогии с уравнением (2) в резонансе имеем

$$-\left(\frac{dN_L}{dz}\right)_{\text{вын}} = \left(\frac{dN_{as}}{dz}\right)_{\text{вын}} = -(N_a - N_b)\frac{\partial\sigma_{sp}^R}{\partial\Omega}N_{as}N_L\left(\frac{c^3}{\nu_{as}^2 n_{as}^3}\cdot\frac{2}{\Gamma_{ab}}\right). \tag{7}$$

Обычно $N_a - N_b > 0$. В среде с обратной заселенностью мы имели бы экспоненциальное усиление на антистоксовой частоте и соответственно

поглощение на стоксовой частоте. Исходя из этих простых рассуждений, могло бы показаться, что вынужденное комбинационное рассеяние не является очень плодотворным полем для подробного исследования. Обычно наблюдался бы только один набор равноотстоящих линий $\nu_L - n\nu_{кол}$, соответствующий комбинационному переходу с самым низким порогом. Эти линии у́же спонтанных из-за усиления и обратной связи в комбинационном лазере.

Экспериментально же ситуация оказалась гораздо более интересной. Экспериментально наблюдаемое усиление для стоксова света в направлении вперед и назад часто было много больше теоретического значения, и отношение интенсивностей вперед/назад не равнялось единице. Оказалось также, что использование отражающих зеркал в этих направлениях

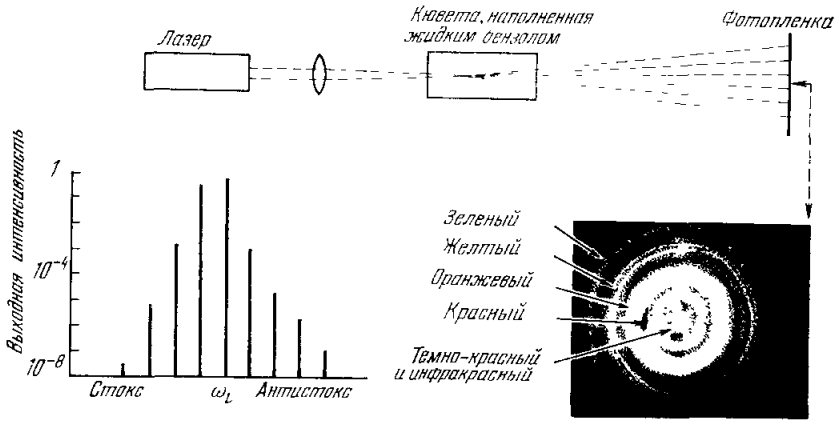

Рис. 3. Генерация многих порядков стоксова и антистоксова излучения с помощью луча лазера с модулированной добротностью, сфокусированного в жидкость вне лазерного резонатора.
Антистоксово излучение испускается в передние конусы [19].

часто не приводило к различиям в пороге для вынужденного комбинационного излучения. В то время как усиление стоксового излучения на единицу длины, согласно выражениям (2) и (5), должно быть одинаковым во всех направлениях, при условии что стоксово поле поляризовано параллельно лазерному полю, экспериментально было найдено, что усиление должно быть много бо́льшим, чтобы получить комбинационное излучение вне оси. При этом коэффициент отражения зеркал на стоксовой частоте был существенным. Эксперименты с устройством, приведенным на рис. 3, показали, что дополнительно к различным стоксовым линиям наблюдаются яркие конусы антистоксова излучения на частотах $\nu_L + n\nu_{ab}$. Стоксовы и антистоксовы компоненты часто обнаруживали необычное частотное уширение, во много раз превышающее ширину спонтанно испускаемых линий. Эти и другие аномалии указывают на необходимость более тщательного теоретического анализа. Оказывается, что во многих экспериментах вынужденное комбинационное рассеяние сложным образом переплетается с другими нелинейными оптическими процессами.

Хотя многие из этих процессов известны под самостоятельными названиями, такими как вынужденное рассеяние Мандельштама — Бриллюэна, вынужденное рассеяние крыла линии Рэлея, самофокусировка света и рассеяние света на свете, физически все они представляют собой тесно связанные эффекты. Ниже будет дан систематический обзор этих эффектов.

В гл. III обсуждается теория самофокусировки и самоканализации лазерных лучей. В гл. IV особое внимание уделяется жидкостям с оптически анизотропными молекулами. В гл. V описываются основные экспериментальные особенности вынужденного комбинационного рассеяния в различных материалах и наблюдаемые аномалии интерпретируются с точки зрения самофокусировки и других нелинейных эффектов. Упоминаются также некоторые переходные эффекты. В гл. VI дается альтернативное описание вынужденного комбинационного рассеяния, исходя из параметрического взаимодействия между двумя световыми волнами и колебательной волной или волной оптических фононов. Это общее описание распространяется на взаимодействие световых волн с другими возбуждениями бозонного типа. В заключительной главе и приложении делаются некоторые замечания по историческому развитию обсуждаемой темы.

II. НЕЛИНЕЙНАЯ ПОЛЯРИЗАЦИЯ

В этой главе рассматриваются некоторые следствия существования поляризации, которая является кубичной функцией амплитуд электрического поля [17-20]. Речь идет о нелинейности, отличной от нуля в низшем порядке в средах, симметричных относительно инверсии. Нелинейность такого типа проявляется во многих нелинейных оптических явлениях. Она обычно весьма мала и может быть рассмотрена методами теории возмущений. В отсутствие нелинейности однородные плоские бегущие волны распространяются независимо друг от друга. Они могут быть рассмотрены как соответствующие волновые функции нулевого порядка для электромагнитного поля в веществе и записаны в виде

$$|\mathbf{E}_1| = 2|A_1|\hat{a}_1 \cos(\mathbf{k}_1\mathbf{r}+\varphi) = A_1\hat{a}_1 \exp(i\mathbf{k}_1\mathbf{r}-i\omega_1 t) + A_1^*\hat{a}_1^* \exp(-i\mathbf{k}_1\mathbf{r}+i\omega_1 t); \quad (8)$$

здесь $2|A_1|$ — амплитуда волны и $\hat{\mathbf{a}}_1$ — единичный вектор, характеризующий поляризацию волны. Нелинейность диэлектрической среды обусловливает связь между различными однородными плоскими волнами. Рассмотрим, к примеру, поляризацию на суммарной частоте, вызываемую одновременным наличием трех электромагнитных волн с частотами ω_1, ω_2 и ω_3 и волновыми векторами $\mathbf{k}_1$, $\mathbf{k}_2$ и $\mathbf{k}_3$ соответственно. Нелинейная поляризация на частоте

$$\omega_p = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3 \quad (9)$$

имеет пространственное распределение, характеризуемое волновым вектором

$$\mathbf{k}_p = \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_3. \quad (10)$$

Пусть индексы i, j, k и l характеризуют декартовы компоненты нелинейной поляризации и трех волн соответственно. Тогда тензор кубичной нелинейной восприимчивости может быть определен из выражения

$$P_i^{NL}(\omega_p, \mathbf{k}_p) = \chi_{ijkl}(-\omega_p, \omega_1, \omega_2, \omega_3)\, E_j(\omega_1, \mathbf{k}_1)\, E_k(\omega_2, \mathbf{k}_2)\, E_l(\omega_3, \mathbf{k}_3). \quad (11)$$

В электродипольном приближении, которого вполне достаточно для всех практических целей, компонента тензора нелинейной восприимчивости не зависит от векторов $\mathbf{k}$. В общем случае тензор восприимчивости четвертого ранга χ_{ijkl} имеет комплексные компоненты. В изотропных жидкостях число независимых компонент, конечно, существенно сокращено. В этом обзоре не обсуждаются интересные усложнения, которые может вызывать поляризационное вырождение электромагнитных волн. В общем случае нелинейная поляризация, даваемая выражением (11), будет связана с четвертой электромагнитной бегущей волной с частотой $\omega_4 = \omega_p$.

Можно показать, что для этого волновой вектор $\mathbf{k}_4$ на плоских границах нелинейной среды должен иметь те же самые поперечные компоненты, что и $\mathbf{k}_p$. Обычно в эксперименте нелинейный образец имеет плоскопараллельные границы, и мы не будем рассматривать более сложные случаи. Генерируемая таким образом электромагнитная волна E_4 будет, конечно, в свою очередь связана через нелинейность с первыми тремя волнами. Связь будет ощутимой, если рассогласование импульсов в направлении нормали к границе нелинейной среды z не слишком велико: $\Delta\mathbf{k} = \mathbf{k}_4 - \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3$. Таким образом, мы приходим к картине четырех электромагнитных плоских волн, амплитуды и фазы которых могут изменяться в пространстве и во времени из-за нелинейной связи. В оптическом резонаторе с фиксированными модами представляет интерес нарастание комплексных амплитуд во времени. В этой работе мы сконцентрируем внимание на бегущих волнах, нарастающих в пространстве. Комбинированное пространственно-временнбе рассмотрение математически более сложно, но физическое различие здесь невелико.

Основным уравнением, описывающим поведение электромагнитных волн в нелинейной среде, является, очевидно, волновое уравнение Максвелла

$$\nabla[\nabla\mathbf{E}] + \frac{\partial^2\mathbf{D}}{\partial t^2} = 0, \tag{12}$$

где $\mathbf{D} = \tilde{\varepsilon}\mathbf{E} + 4\pi\mathbf{P}^{NL}$, $\tilde{\varepsilon}$ — тензор линейной диэлектрической проницаемости, $\mathbf{P}^{NL}$ — нелинейная поляризация. Так как нелинейность мала, а линейная дисперсия обычно заметна, мы можем ограничиться набором четырех волн, для которых приблизительно удовлетворяется условие согласования импульсов, т. е. для которых $\Delta\mathbf{k}$ мало.

Из-за нелинейной связи амплитуды и фазы четырех волн не остаются постоянными, а становятся медленно изменяющимися функциями z. Если выражения для четырех волн в виде (8) подставить в волновое уравнение (12), то можно получить следующую систему связанных уравнений для комплексных амплитуд [20]:

$$\left.\begin{aligned}
\frac{dA_1}{dz} &= +2\pi i\left(\frac{\omega_1}{n_1c}\right)\left[\chi^{NL}_{1234}A_2A_3A_4^*e^{i\Delta kz} + \sum_{j=1}^{4}\chi^{NL}_{1j}A_1A_jA_j^*\right],\\
\frac{dA_2^*}{dz} &= -2\pi i\left(\frac{\omega_2}{n_2c}\right)\left[\chi^{NL}_{1234}A_1^*A_3A_4^*e^{i\Delta kz} + \sum_{j=1}^{4}\chi^{NL}_{2j}A_2^*A_jA_j^*\right],\\
\frac{dA_3}{dz} &= +2\pi i\left(\frac{\omega_3}{n_3c}\right)\left[\chi^{NL}_{1234}A_1A_2^*A_4e^{-i\Delta kz} + \sum_{j=1}^{4}\chi^{NL}_{3j}A_3A_jA_j^*\right],\\
\frac{dA_4^*}{dz} &= -2\pi i\left(\frac{\omega_4}{n_4c}\right)\left[\chi^{NL}_{1234}A_1A_2^*A_3e^{-i\Delta kz} + \sum_{j=1}^{4}\chi^{NL}_{4j}A_4^*A_jA_j^*\right].
\end{aligned}\right\} \tag{13}$$

При этом сделано несущественное ограничение, что все четыре волны распространяются почти перпендикулярно к границе нелинейной среды. Рассогласование импульсов в направлении нормали равно

$$\Delta k = |\mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_3 - \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_4|.$$

Введено следующее сокращенное обозначение для соответствующих компонент нелинейных восприимчивостей:

$$\begin{aligned}
\chi^{NL}_{1234} &= \hat{a}_1^*\hat{a}_2 : \chi(-\omega_1, \omega_2, \omega_3, -\omega_4) : \hat{a}_3\hat{a}_4^*,\\
\chi^{NL}_{ij} &= \hat{a}_i^*\hat{a}_i : \chi(-\omega_i, \omega_i, \omega_j, -\omega_j) : \hat{a}_j\hat{a}_j^*.
\end{aligned} \tag{14}$$

Значение восприимчивостей должно быть ясно из выражения (11). Например, $\chi(-\omega_1, \omega_2, \omega_3, -\omega_4)$ связывает нелинейную поляризацию на частоте $\omega_1 = \omega_2 + \omega_3 - \omega_4$ с амплитудами электрического поля волн на остальных трех частотах. Следует сделать достаточно общее замечание, что подобным образом могут быть рассмотрены все возможные суммарные и разностные комбинации частот. В уравнениях (13) выбран конкретный набор частот, удовлетворяющих соотношению $\omega_1 + \omega_4 = \omega_2 + \omega_3$. Некоторые из частот могут быть равны друг другу или, если рассматривается электрическое поле постоянного тока, положены равными нулю. Нелинейная восприимчивость $\chi(-\omega_i, \omega_i, \omega_j, -\omega_j)$ совместно с выражением (11), очевидно, описывает поляризацию на частоте ω_i, которая пропорциональна полю на той же частоте $\mathbf{E}(\omega_i)$, а также интенсивности $|\mathbf{E}(\omega_j)|^2$ с частотой ω_j. Для этого члена имеет место точное согласование импульсов $\mathbf{k}_i - \mathbf{k}_i + \mathbf{k}_j - \mathbf{k}_j = 0$.

Это общее и неизбежно довольно формальное представление описывает много физических явлений. Мы не будем задерживаться на методах решения общей задачи четырех связанных световых волн. Лучшее физическое понимание достигается при рассмотрении ясных физических процессов. Эти процессы могут различаться либо специфическими соотношениями между четырьмя частотами, либо тем, какая (действительная или мнимая) нелинейная восприимчивость их характеризует. Важной чертой формализма комплексных связанных амплитуд является наличие фаз и связанная с ними возможность когерентных и интерференционных эффектов. Эта особенность безусловно опускалась в тексте введения, где мы интересовались лишь числом фотонов и интенсивностями световых волн. Квантовомеханическое описание фаз дано на языке когерентных состояний. В этом случае аналогия с классическим описанием так близка, что можно получить все существенные результаты из полуклассического описания, в котором электромагнитные волны рассматриваются классически. Материальная система из атомов и молекул может быть описана на языке классических моделей или квантовомеханически. Выражения для нелинейных восприимчивостей (14) легко получаются для простой модели ангармонически связанного валентного электрона. Полные квантовомеханические выражения для произвольной системы энергетических уровней также пригодны [17, 18]; для целей этого обзора нам нужно лишь иметь представление о порядках величин. Поляризация, кубичная по амплитуде поля, меньше, чем линейная поляризация, на множитель $|A_l/A_{at}|^2$; здесь A_l — амплитуда светового поля, а A_{at} — напряженность поля, ответственная за связывание валентных электронов, $A_{at} \sim 3 \cdot 10^8$ *в/см*. Другими словами, для световых полей порядка 10^8 *в/см* нелинейная поляризация становилась бы равной линейной поляризации. Метод возмущений «разваливался» бы. Материал также в буквальном смысле слова разваливался бы, так как электроны вырывались бы из молекул и происходила бы ионизация. Небольшой рубиновый лазер с модулированной добротностью может давать 0,1 *дж* света в течение 10^{-8} *сек*. Поперечное сечение несфокусированного луча может быть 0,2 *см*^{2}. Следовательно, плотность мощности в таком луче 50 *Мвт/см*^{2}, что соответствует амплитуде светового поля в $2 \cdot 10^5$ *в/см*. В сфокусированном луче плотности мощности могут быть легко сделаны на три или более порядка величины выше, и можно вызвать электрический пробой. Механическое разрушение из-за локального нагрева и других эффектов также имеет место. В этой работе однако мы сосредоточим свое внимание на обратимых нелинейных оптических свойствах. Для светового поля в 300 *в/см* (= 1 ед. CGSE) кубическая поляризация была в 10^{-12} раз меньше, чем линейная поляризация; следовательно, $\chi^{NL}_{1234} \approx 10^{-12}$ ед. CGSE. Эта оцен-

ка очень грубая и не учитывает широких вариаций в величине оптических матричных элементов и возможное увеличение в результате резонансных процессов. Экспериментальные значения нелинейных восприимчивостей для различных обсуждаемых ниже физических процессов изменяются от $\sim 10^{-15}$ до 10^{-11} ед. CGSE. Порядок величины восприимчивости объясняет тот факт, что экспериментальные исследования могли развиться лишь после появления мощных лазеров.

Были обнаружены следующие физические явления, которые все описываются уравнениями (13).

1. Генерация третьей гармоники

В этом случае положим $\omega_1 = -\omega_2 = \omega_3$ и $\omega_4 = 3\omega_1$. Поляризация на частоте ω_4 будет генерировать излучение на частоте третьей гармоники [21]. На практике эффективность преобразования так мала, что падающее лазерное поле можно рассматривать как постоянный параметр $A_1 = A_2^* = A_3 = A_L$. В этом параметрическом приближении поляризация $P(3\omega_1, 3\mathbf{k}_1)$ может быть в любой точке среды. Можно вычислить радиационное поле, создаваемое сфазированным рядом дипольных моментов, изменяющихся с частотой третьей гармоники. Внутри нелинейной среды амплитуда и фаза третьей гармоники подчиняются комплексному уравнению

$$\frac{dA_3}{dz} = +2\pi i\left(\frac{3\omega}{n_3 c}\right)\chi(-3\omega, \omega, \omega, \omega)\, A_L^3 e^{i(k_3-3k_1)z} + \\ +2\pi i\left(\frac{3\omega}{n_3 c}\right)\chi(-3\omega, 3\omega, \omega, -\omega)\,|A_L|^2 A_3. \quad (15)$$

Так как это уравнение линейно по A_3, оно может быть легко решено, если A_L рассматривать как постоянный параметр. Лишь последний член

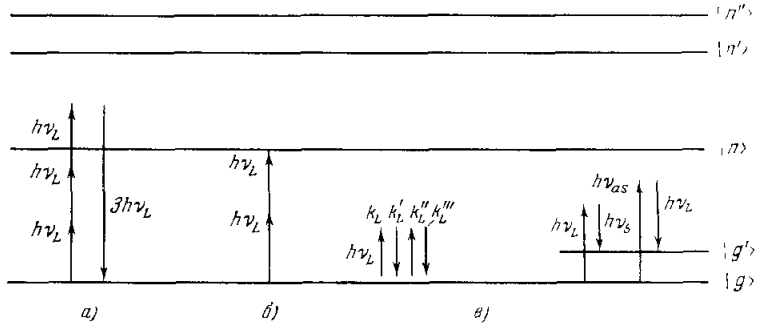

Рис. 4. Схематическое представление различных нелинейных квантовых процессов. Схему не следует рассматривать слишком буквально. При квантовом рассмотрении не принимаются во внимание относительные фазы электромагнитных полей. Процессы должным образом описываются диэлектрической поляризацией, которая является кубической функцией амплитуд поля. *а*) Генерация третьей гармоники; *б*) двухфотонное поглощение, *в*) процессы четырехфотонного рассеяния, связанные с зависящим от интенсивности показателем преломления. Два комбинационных процесса между одной и той же парой молекулярных энергетических уровней: интерференция между этими двумя процессами соответствует нелинейной восприимчивости $\chi''(-\omega_{as}, -\omega_s, \omega_L, \omega_L)$, обсуждаемой в тексте.

дает очень небольшую фазовую поправку, которой обычно можно пренебречь. В этом случае решение простое:

$$A_3 = 2\pi\left(\frac{3\omega}{n_3 c}\right)\chi(-3\omega, \omega, \omega, \omega)\, A_L^3\left[e^{i(k_3-3k_1)z} - \frac{1}{k_3-3k_1}\right]. \quad (16)$$

Это соотношение показывает, что интенсивность $|A_3|^2$ пропорциональна $\sin^2 2(k_3 - 3k_1)z/(k_3 - 3k_1)^2$. Сначала интенсивность растет от значения

$A_3 = 0$ на границе нелинейной среды $z = 0$ квадратично с расстоянием z. Когда волна третьей гармоники и поляризация, наводимая основной волной, выходят из синхронизма, интенсивность снова уменьшается. Получается колебательный режим. Квантовый процесс, ответственный за генерацию гармоники, может быть описан как процесс рассеяния, в котором аннигилируют три кванта на основной частоте и рождается один квант на частоте третьей гармоники. При этом материальная система остается в основном состоянии, хотя в процесс рассеяния включаются три виртуальных возбужденных состояния, как схематически показано на рис. 4, *а*. Такое описание не следует принимать слишком буквально. Когда важны фазы, этот процесс, в действительности, есть интерференция между многими процессами четырехфотонного рассеяния. Эффект был получен во многих веществах. Так как он может изучаться совершенно независимо от вынужденного комбинационного рассеяния, мы не будем здесь рассматривать его подробно.

2. Двухфотонное поглощение

В этом случае берем $\omega_1 = \omega_2 = \omega_3 = \omega_4$, $\Delta k = 0$ и $\chi_{11}(-\omega, \omega, \omega, -\omega) = i\chi''_{1111}$ чисто мнимую. Нам нужно рассмотреть только падающую лазерную волну, амплитуда которой изменяется согласно уравнению

$$\frac{dA_1}{dz} = -2\pi \left(\frac{\omega_1}{n_1 c}\right) \chi''_{1111} |A_1|^2 A_1. \tag{17}$$

Можно определить коэффициент поглощения, пропорциональный самой интенсивности. Луч ослабляется процессом двухфотонного поглощения (рис. 4, *б*); такое описание в этом случае правильно, так как фазы не важны. Подробное вычисление показывает, что нелинейная восприимчивость в действительности положительная и мнимая, когда $2\omega_1 = \omega_{ng}$, где $\hbar\omega_{ng}$ — разность энергий между двумя уровнями $|n\rangle$ и $|g\rangle$. Чтобы был разрешен двухфотонный электрический дипольный переход, эти два уровня должны иметь одинаковую четность. Процесс идет через виртуальный промежуточный переход на уровень $|n'\rangle$ противоположной четности. Двухфотонное поглощение можно обнаружить экспериментально различными способами. Это может быть флуоресценция с уровня $|n\rangle$ на уровень, промежуточный между $|n\rangle$ и $|g\rangle$; после поглощения двух красных квантов можно обнаружить флуоресценцию в синей части спектра [22]. Либо уровень $|n\rangle$ может лежать в зоне проводимости полупроводника — фотопроводимость создается световыми квантами, каждый из которых имеет энергию, меньшую, чем ширина запрещенной энергетической зоны. Следует тщательно отличать этот процесс от двух последовательных однофотонных переходов. В последнем случае имеется реальный промежуточный уровень и вещество обязательно также обнаруживает некоторое линейное поглощение на частоте ω_1.

3. Насыщение поглощения

Если вещество нормально поглощает на частоте ω_1 благодаря переходу с уровня $|g\rangle$ на уровень $|n'_1\rangle$, то при высоких световых интенсивностях степень поглощения может стать такой большой, что на возбужденном уровне $|n'\rangle$ образуется значительная заселенность $N_{n'}$. Так как степень поглощения пропорциональна разности заселенностей $N_g - N_{n'}$, при высоких интенсивностях коэффициент поглощения будет уменьшаться. Это явление хорошо известно в магнитном резонансе и молекулярной спектроскопии на микроволновых частотах. На оптических

частотах это явление используется в насыщающихся фильтрах, которые поглощают при низкой интенсивности и становятся прозрачными, если интенсивность лазерного света становится очень высокой. Этот эффект обнаруживают органические красители и полупроводящие стеклянные фильтры, и он может быть использован для модуляции добротности лазера, если поместить насыщающийся поглотитель в оптический резонатор. Подробные вычисления подтверждают, что величина χ^{NL}_{1111} имеет отрицательную мнимую часть для $\omega_1 = \omega_{n'g}$. Этот нелинейный член описывает начальное насыщение линейного поглощения. Уравнение, описывающее этот процесс, имеет вид

$$\frac{dA_1}{dz} = -\alpha A_1 + 2\pi \frac{\omega_1}{n_1 c} |\chi''_{1111}| |A_1|^2 A_1, \tag{18}$$

где первый член правой части (18) представляет собой линейное поглощение.

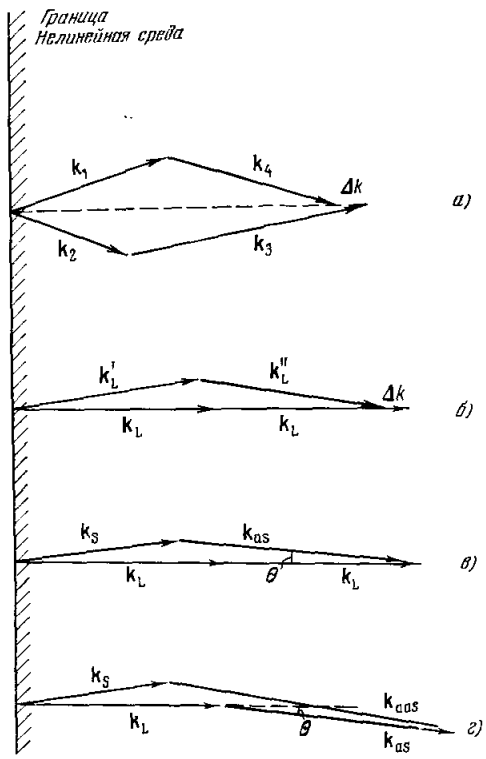

Рис. 5. Условие согласования импульсов и небольшое рассогласование $\Delta\mathbf{k}$ для взаимодействия между четырьмя световыми волнами.

а) Общий случай; *б*) рассеяние световых волн одной и той же частоты, ответственное за самофокусировку; *в*) процесс вынужденного комбинационного рассеяния, приводящий к генерации антистоксова излучения; *г*) процесс рассеяния для генерации антистоксова излучения второго порядка.

4. Зависящий от интенсивности показатель преломления

Действительная часть нелинейной восприимчивости χ'_{1111} описывает синфазную компоненту поляризации. Эта связь подобна связи между действительной и мнимой частями линейной восприимчивости. Первая приводит к действительному показателю преломления, вторая — к линейному коэффициенту поглощения. Действительная часть χ'_{1111}, таким образом, определяет вклад в показатель преломления, пропорциональный световой интенсивности. В непоглощающей среде показатель преломления n можно записать в виде

$$n = n_0 + n_2 |A_L|^2. \tag{19}$$

Поляризация связана с показателем преломления соотношением

$$4\pi P = (n^2 - 1) E \cong (n_0^2 - 1) E + 2n_2 n_0 |A_L|^2 E. \tag{20}$$

Последний член есть нелинейная поляризация, и, следовательно, связь между зависящим от интенсивности показателем преломления и нелинейной восприимчивостью имеет вид

$$n_2 = 2\pi n_0^{-1} \chi'_{1111}. \tag{21}$$

Описание на языке рассеяния фотонов (рис. 4, *в*) в этом случае не очень наглядно, хотя можно сказать, что два падающих кванта аннигилируют и рождаются два других кванта той же частоты, а энергия материальной

системы при этом не претерпевает изменения. Нет необходимости, чтобы два новых фотона распространялись в том же направлении, что и первоначальный луч. В этом случае имелось бы рассогласование импульсов, как показано на рис. 5, *б*. Мы вернемся к этому вопросу в гл. III, где будет описано явление самофокусировки, представляющее собой важное следствие существования показателя преломления, зависящего от интенсивности.

5. Обобщенный квадратичный эффект Керра

Показатель преломления световой волны на частоте $\omega_1 = \omega_2$ может также изменяться из-за наличия световой волны на другой частоте $\omega_3 = \omega_4$. Соответствующая нелинейная восприимчивость есть χ'_{1133}. Мнимая часть χ'_{1133} представляет в этом случае процесс двухфотонного поглощения,

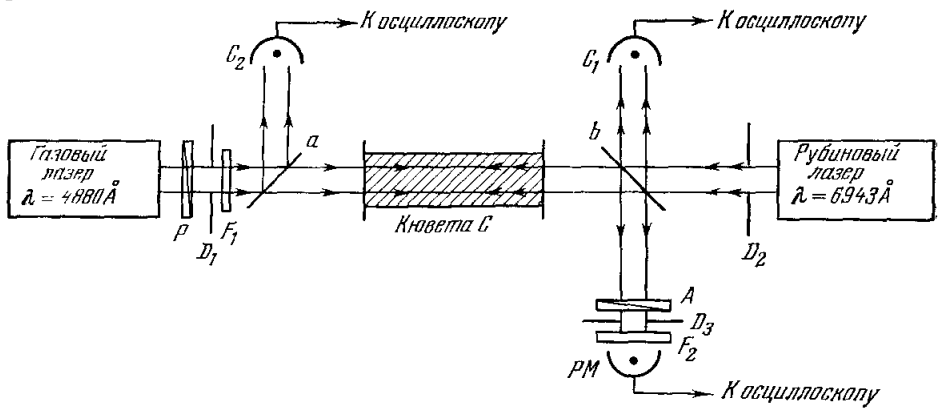

Рис. 6. Экспериментальное устройство для обнаружения двойного лучепреломления в жидкости с анизотропными молекулами, вызываемого лазерным импульсом.

Поляризации пробного луча газового лазера и луча рубинового лазера образуют угол в 45° Анализатор *A* скрещен с поляризатором *P*. Свет аргонового лазера попадает на фотоэлемент *PM* лишь тогда, когда имеется импульс рубинового лазера (Пайлет [23]).

если $\omega_1 + \omega_2 = \omega_{ng}$. Поглощаются один фотон $\hbar\omega_1$ и один фотон $\hbar\omega_3$, и материальная система переходит из состояния $|g\rangle$ в состояние $|n\rangle$. Можно выбрать частоту $\omega_3 = \omega_4 = 0$. В этом случае нелинейная восприимчивость $\chi^{NL}_{1133}(-\omega, \omega, 0, 0)$ описывает хорошо известный квадратичный эффект Керра. Он заключается в изменении показателя преломления, производимом постоянным электрическим полем. Интенсивность светового луча также может сделать жидкость двоякопреломляющей, что было доказано экспериментально [23] на установке, показанной на рис. 6. Когда нет импульса рубинового лазера, пробный свет аргонового газового лазера гасится скрещенными поляризатором и анализатором. Поляризация света рубинового лазера повернута на 45° по отношению к поляризации газового лазера. В течение импульса рубинового лазера жидкость становится двоякопреломляющей. Поляризация аргонового света изменяется, и часть его проходит через анализатор.

6. Вынужденное комбинационное рассеяние

Квантовый процесс для этого случая описан в вводной части и схематически показан на рис. 4, *в*, справа. Очевидно, что этот процесс тесно связан с процессом поглощения двух различных квантов. В комбинационном рассеянии один фотон испускается, а другой поглощается.

Разность энергий поглощается материальной системой. Обозначим стоксову частоту через ω_s, лазерную частоту через ω_L и разность частот $\omega_L - \omega_s$ через $\omega_{ng} = \omega_v$. Так как квантовый переход в материальной системе часто, но не всегда соответствует колебательному возбуждению, мы обозначили ω_{ng} через ω_v. Нелинейная восприимчивость [24] $\chi(-\omega_s, \omega_s, \omega_L, -\omega_L)$ при $\omega_1 = \omega_2 = \omega_s$, $\omega_3 = \omega_4 = \omega_L$ имеет отрицательную мнимую часть, которую мы будем обозначать через $\chi''_{\text{комб}} < 0$. Это обстоятельство может быть подтверждено подробным квантовомеханическим вычислением [17,25-29].

Амплитуда стоксовой волны описывается уравнением

$$\frac{dA_s}{dz} = -2\pi \frac{\omega_s}{n_s c} \chi''_{\text{комб}} |A_L|^2 A_s. \tag{22}$$

Так как $\chi''_{\text{комб}} < 0$, будет наблюдаться экспоненциальный рост стоксовой волны. Это заключение тождественно полученному во введении. Приравнивая коэффициент усиления для интенсивности из выражения (4) удвоенному амплитудному коэффициенту усиления из выражения (22), находим

$$g_s = 4\pi \frac{\omega_s}{n_s c} (-\chi''_{\text{комб}}) |A_L|^2. \tag{23}$$

Комбинируя это выражение с выражением (5), можно комбинационную восприимчивость выразить через сечение спонтанного комбинационного излучения. Разумеется, в обоих вычислениях фигурируют одни и те же матричные элементы. В то же время имеется экспоненциальное уменьшение на лазерной частоте, описываемое уравнением

$$\frac{dA_L}{dz} = -2\pi \frac{\omega_L}{n_L c} (-\chi''_{\text{комб}}) |A_s|^2 A_L. \tag{24}$$

Это является следствием соотношения $\chi(-\omega_s, \omega_s, \omega_L, -\omega_L) = \chi^*(-\omega_L, \omega_L, \omega_s, -\omega_s)$, которое выражает собой тот факт, что мнимая часть восприимчивости меняет знак при перестановке частот ω_L и ω_s. Усиление на частоте ω_s связано с соответствующей потерей на частоте ω_L, в соответствии с рассмотрением квантового процесса, сделанным во введении.

По той же самой причине следует ожидать экспоненциального затухания на антистоксовой частоте $\omega_{as} = \omega_L + \omega_v$, что вновь подтверждается при подробном вычислении [12, 17, 26]. Оказывается, что $\chi''(-\omega_{as}, \omega_{as}, \omega_L, -\omega_L) > 0$. В действительности эта величина близка к $\chi''(-\omega_L, \omega_L, \omega_s, -\omega_s)$. Для читателя не составит труда распознать в этих соотношениях для комбинационного усиления и затухания частные случаи общих выражений для связанных амплитуд. До сих пор, однако, мы рассматривали только члены, в которых частоты попарно равны. Очевидно, мы должны также рассмотреть связывание, обусловленное нелинейной восприимчивостью $\chi(-\omega_s, \omega_L, \omega_L, -\omega_{as})$. Это будет особенно важно вблизи условия согласования фаз, т. е. когда $\Delta\mathbf{k} = \mathbf{k}_s + \mathbf{k}_{as} - 2\mathbf{k}_L$ близко к нулю. Это условие иллюстрируется на рис. 5. Благодаря положительной кривизне ($d^2n_0/d\nu^2 > 0$) нормальной дисперсионной кривой можно построить треугольник, показанный на рис. 5, *в*.

Рассмотрим вновь лазерное поле как заданный постоянный параметр. Заменив A_1 на A_s и A_4^* на A_{as}^*, можно переписать первое и последнее уравнения системы (14) в виде двух линейных уравнений для A_s и A_{as}^*, которые параметрически связываются лазерным полем. Решение этой системы имеет одну собственную моду с экспоненциальным ростом и другую с потерями [30, 31]. Амплитудный коэффициент усиления равен

$$\frac{1}{2} g_s = \pm \operatorname{Im}\left[\frac{1}{4}(\Delta k)^2 + 2\pi \left(\frac{\omega_s}{n_s c}\right) \chi^{NL} |\mathbf{E}_L|^2 \Delta k\right]^{1/2}. \tag{25}$$

В этом выражении величина χ^{NL}, вообще говоря, комплексная. Для больших Δk можно извлечь квадратный корень и получить

$$g_s = \pm 4\pi \frac{\omega_s}{n_s c} \chi''_{\text{комб}} |\mathbf{E}_L|^2. \tag{26}$$

Корень с усилением ($g_s > 0$) соответствует стоксовой волне. Корень с потерями ($g_s < 0$) соответствует антистоксовой волне. При большом рассогласовании импульсов эти волны не связываются, и мы приходим к результатам, уже полученным для несвязанной системы. Когда $|\Delta\mathbf{k}|$ такого же порядка, как $4\pi(\omega_s/n_s c)|\chi^{NL}||\mathbf{E}_L|^2$, имеется еще одна мода с экспоненциальным ростом. Эта мода имеет частично стоксов и частично антистоксов характер. Волна, скажем на 70% стоксова и на 30% антистоксова, испытывает экспоненциальное усиление на антистоксовой частоте. В этом состоит объяснение яркого антистоксова конуса вблизи направления согласования фаз. Антистоксова волна «сидит верхом» на стоксовой, что обеспечивает ей усиление. При точном согласовании импульса ($\Delta k = 0$) две собственные моды имеют каждая на 50% стоксов и на 50% антистоксов характер. Для этого направления нет ни экспоненциального усиления, ни потерь. Это своеобразное поведение при $\Delta k = 0$ экспериментально не может быть обнаружено, так как этот минимум в коэффициенте усиления соответствует обычно углу меньше 10^{-4} *рад*, что меньше угловой расходимости лазерного луча и углового разрешения устройства, детектирующего стоксово и антистоксово излучения.

Этот пример указывает на важность когерентных эффектов в нелинейной оптике. На языке рождения стоксова фотона и аннигиляции антистоксова фотона нельзя объяснить появление антистоксова излучения. Этот процесс можно описать как интерференцию между комбинационными переходами, схематически представленными на рис. 4, *г*. Так как они связывают одни и те же начальное и конечное состояния материальной системы, полная вероятность перехода может быть больше или меньше суммы вероятностей стоксова процесса и антистоксова процесса отдельно. Важно отметить, что влияние действительной части восприимчивости полностью принимается в расчет выражением (25), которое действительно для произвольных комплексных коэффициентов нелинейной связи. Квантовый процесс, связанный с действительной частью, описывался бы совсем по-другому. В этом случае следовало бы сказать, что энергетическое состояние материальной системы не изменяется, а два лазерных кванта рассеиваются в стоксов и антистоксов кванты. Тонкая взаимосвязь между интерференцией переходов между двумя энергетическими уровнями вещества и процессами четырехфотонного рассеяния, которые не сопровождаются реальным переходом в материальной системе, полностью описывается при использовании комплексной комбинационной восприимчивости.

7. Вынужденное рэлеевское рассеяние

Формальное описание этого процесса очень похоже на описание вынужденного комбинационного рассеяния, с которым этот процесс имеет также тесную физическую связь. Лазерная и стоксова частоты в этом случае близки, так что их разность равна частоте релаксации (вместо резонансной частоты) в материальной системе: $\omega_L - \omega_s = \tau_c^{-1}$. Механизм, который вновь приводит к отрицательной мнимой восприимчивости, более полно будет обсуждаться в следующем параграфе, где τ_c будет отождествлено со временем переориентации молекул.

8. Модуляция показателя преломления

Этот механизм снова описывается нелинейной восприимчивостью вида $\chi(-\omega_s', \omega_s, \omega_L, -\omega_L')$. Две частоты ω_L и ω_L' лежат довольно близко друг к другу и модулируют показатель преломления на разностной частоте $\omega_L - \omega_L'$. Когда волна с новой частотой ω_s проходит через вещество, она испытывает фазовую или частотную модуляцию. Будут создаваться боковые полосы на частотах $\omega_s \pm (\omega_L - \omega_L')$. Повторное применение этого процесса приводит ко многим новым составным частотам. Может быть создано большое число боковых полос. Таким же образом могут быть созданы стоксовы и антистоксовы частоты высоких порядков. Когда присутствуют поля на частотах ω_L, ω_s и ω_{as}, нелинейность, конечно, будет создавать новые фурье-компоненты в нелинейной поляризации на частотах $2\omega_{as} - \omega_L = \omega_L + 2\omega_v$, $2\omega_s - \omega_L = \omega_L - 2\omega_v$ и т. д. Так как многие или все из этих нелинейных процессов могут происходить в одно время, расшифровка экспериментальных данных представляет часто трудную задачу. В течение долгого времени изучению явления вынужденного комбинационного рассеяния «досаждали» аномалии. Наиболее важными из них были: 1) аномально высокое усиление, 2) аномальные углы антистоксовых конусов, 3) аномально широкие линии. Оказалось, что эти аномалии не имеют ничего общего с самим комбинационным рассеянием, но все они прямо или косвенно вызваны другими нелинейностями, такими как зависящий от интенсивности и модулируемый показатель преломления. Поэтому мы обсудим эти эффекты в следующих двух главах, прежде чем вернемся к вынужденному комбинационному рассеянию в гл. V.

III. САМОФОКУСИРОВКА И САМОКАНАЛИЗАЦИЯ СВЕТОВЫХ ЛУЧЕЙ

Рассмотрим реальный лазерный луч конечного диаметра. Распределение интенсивности по сечению луча часто напоминает гауссово $I = I_{\max} \exp(-r^2/2a^2)$, как показано на рис. 7, *а*. Это распределение

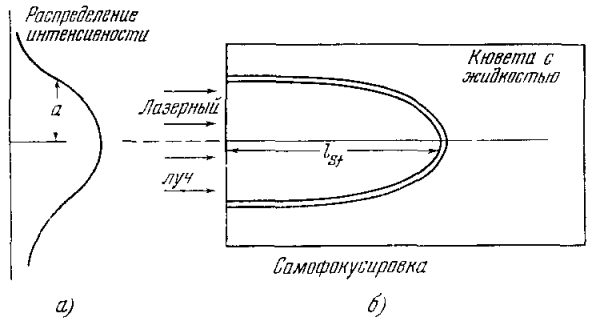

Рис. 7. Самофокусировка светового луча.

Показанное слева распределение интенсивности соответствует *распределению показателя преломления*. Показан путь луча согласно геометрической оптике. Когда происходит фокусировка, распределение интенсивности соответственно становится у́же.

описывает также изменение показателя преломления в среде, обусловленное зависящим от интенсивности членом выражения (19). Показатель преломления — наибольший на оси луча. Рассмотрим световой луч, первоначально параллельный оси, который проходит в среде с поперечным градиентом показателя преломления $\frac{\partial n}{\partial r} = n_2 \frac{\partial |E_L|^2}{\partial r}$, где n_2 дается

выражениями (19) и (21). Согласно принципам геометрической оптики этот луч будет испытывать рефракцию, отклоняясь в сторону оси. Лазерный луч порождает свою собственную линзоподобную среду. Он фокусирует сам себя, как схематически показано на рис. 7, *б*. Так как луч концентрируется, поперечный градиент возрастает. Свет концентрируется более эффективно, чем при фокусировке линзой.

Основной физический процесс, лежащий в основе самофокусировки, состоит в рассеянии двух лазерных квантов, которые распространяются параллельно оси луча, в два других кванта такой же частоты, которые распространяются параллельно под малым углом к оси луча [32, 33] (см. рис. 5, *б*). Луч конечного диаметра может быть представлен как суперпозиция однородных плоских волн, распространяющихся в слегка различных направлениях. Внеосевые компоненты будут испытывать экспоненциальный рост. Для рассмотрения можно использовать то же самое выражение (25), которое было использовано для связи стоксовой и антистоксовой волн. Единственное отличие состоит в том, что нелинейная восприимчивость $\chi^{NL}(-\omega, \omega, \omega, -\omega)$ в настоящей задаче является действительной и положительной. Для малых и отрицательных Δk выражение (25) имеет мнимую часть. Лазерный луч нестабилен относительно роста лучей, которые образуют малый угол с осью [32, 34].

Нет хорошего критерия, чтобы отобрать одну пару внеосевых волн, которые параметрически накачиваются параллельными компонентами; скорее все распределение k-волн взаимодействует одновременно. Поэтому предпочтительно рассмотреть одно нелинейное волновое уравнение

$$\frac{\partial^2 A}{\partial x^2}+\frac{\partial^2 A}{\partial y^2}+2ik_z\frac{\partial A}{\partial z}=-4\pi k_z^2\chi^{NL}|A^2|A. \tag{27}$$

Это уравнение следует непосредственно из (12), (13) и (20). Для луча с неограниченным поперечным сечением производные в поперечных (x и y) направлениях могут быть опущены. В этом случае уравнение (27) можно привести к форме общего типа (14). Для самофокусировки луча конечного диаметра поперечные производные, разумеется, очень важны.

Уравнение (27) имеет устойчивое решение, при котором действие самофокусировки компенсируется естественным дефокусирующим действием дифракции [35]. В этом случае свет канализируется в нить. Он создает свой собственный волновод. Это явление наступает при критической полной мощности луча

$$P_{\text{кр}}=\frac{5{,}763\lambda^2 c}{16\pi^3 n_2}. \tag{28}$$

Когда мощность P превышает критическое значение, наступает чистый эффект фокусировки, и расстояние до области самофокусировки определяется выражением [36, 37]

$$l_{sf}=\frac{\frac{1}{4}n_0 a^2\left(\frac{c}{n_2}\right)^{1/2}}{P^{1/2}-P_{\text{кр}}^{1/2}}. \tag{29}$$

Световые нити, создаваемые мощным лазерным импульсом в жидкости [38], показаны на рис. 8. Жидкостью с очень высоким нелинейным показателем преломления является сероуглерод (CS_2). У него $n_2=10^{-10}$, что соответствует нелинейной восприимчивости около $2\cdot10^{-11}$ ед. CGSE. Критическая мощность для самофокусировки всего 16 *квт*. Длина самофокусировки для типичных небольших импульсных рубиновых лазеров с модулированной добротностью составляет только около 10 *см*. Нитевая структура часто очень сложна. Обычно свет захватывается в несколько

различных нитей. Могут наблюдаться крупномасштабные нити диаметром 20—60 *мкм* и мелкомасштабные нити диаметром лишь в несколько микрон. Интенсивность света в последних чрезвычайно высока, и в них могут присутствовать одновременно все виды нелинейных процессов. Интенсивность света рассеянного поля в них также высока; возникающая при этом картина стоячих волн изучалась экспериментально и теоретически [40].

Подробности образования нитей существенно зависят от начальных условий. Небольшие неоднородности в распределении интенсивности в падающем луче или в линейном показателе преломления жидкости

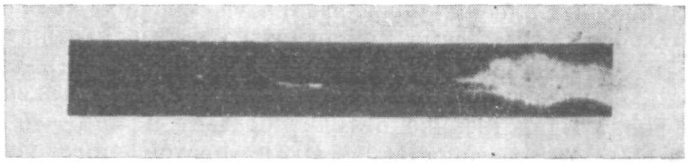

Рис. 8. Нить самоканализации в ортоксилоле, выходящая из фокуса импульса лазера с модулированной добротностью.

могут помешать образованию нити. Тождественность нити можно проследить на нескольких *см*, что соответствует времени жизни 10^{-10} *сек*. Оно значительно короче длительности лазерного импульса. Возможно, это время определяется временем, которое нужно для того, чтобы электрострикционное возмущение прошло через нить или же смогли сыграть роль процессы ионизации и локального нагрева. Важность нитевой структуры для исследований по нелинейной оптике вообще заключается в том, что интенсивность в нити может быть на один или несколько порядков величины выше, чем номинальная интенсивность падающего лазерного луча. Изменение в геометрии и структуре луча имеет сильное влияние, например, на вынужденное комбинационное рассеяние. Оказывается, что эффект самофокусировки особенно силен в жидкостях с оптическими анизотропными молекулами, и стóит рассмотреть зависящий от интенсивности показатель преломления в этих жидкостях более подробно.

IV. КОМПЛЕКСНЫЙ, ЗАВИСЯЩИЙ ОТ ИНТЕНСИВНОСТИ ПОКАЗАТЕЛЬ ПРЕЛОМЛЕНИЯ В ЖИДКОСТЯХ С АНИЗОТРОПНЫМИ МОЛЕКУЛАМИ

Жидкости, состоящие из молекул с анизотропной поляризуемостью, обладают большим квадратичным эффектом Керра в постоянном электрическом поле, и, возможно, не удивительно, что они должны иметь также большой нелинейный показатель преломления n_2. К таким жидкостям относятся сероуглерод, бензол и многие его производные, ацетон и т. д. Рассуждения, приведенные ниже, вообще говоря, годятся для всех типов анизотропных молекул, но мы рассмотрим уравнения только для молекулы с аксиальной симметрией, для которой поляризуемость вдоль оси $\alpha_{\parallel}$ больше поляризуемости под прямыми углами к оси $\alpha_{\perp}$. Примером такой молекулы служит линейная молекула CS_2.

Когда приложено постоянное электрическое поле, молекулы стремятся выстроиться так, чтобы ось с наибольшей поляризуемостью была параллельна электрическому полю. Это положение соответствовало бы минимуму электрической потенциальной энергии. Этой тенденции, разумеется, препятствует броуновское движение в жидкости. В результате

устанавливается распределение Максвелла — Больцмана, которое зависит от угла между электрическим полем и осью молекулы:

$$f(\theta, \varphi)\sin\theta\, d\theta\, d\varphi = \exp\left[\frac{1}{6}(\alpha_{\parallel}-\alpha_{\perp})(3\cos^2\theta-1)\frac{E_{dc}^2}{kT}\right]\sin\theta\, d\theta\, d\varphi. \quad (30)$$

Это выражение представляет собой ненормированную вероятность того, что молекула имеет ось симметрии в элементе телесного угла $d\Omega = \sin\theta\, d\theta\, d\varphi$. Если молекула имеет постоянный электрический дипольный момент p_0, то в экспоненту следует добавить множитель $+p_0\cos\theta \times E_{dc}/kT$. Если через жидкость проходит световая волна с электрическим полем $\mathbf{E}_L \parallel \mathbf{E}_{dc}$, то поляризация на световой частоте в такой жидкости будет больше, чем в жидкости с полностью беспорядочной ориентацией молекул. Молекулы предпочтительно ориентируются так, что направление с большой поляризуемостью параллельно $\mathbf{E}_{dc}$. Для $\mathbf{E}_L \perp \mathbf{E}_{dc}$ показатель преломления будет уменьшаться, так как в этом случае в поле действия световой волны попадает больше молекул, ось меньшей поляризуемости которых параллельна световому электрическому полю. В этом природа двойного лучепреломления, вызываемого квадратичным эффектом Керра.

Молекулы могут быть также ориентированы переменным полем, даже полем на световых частотах [41, 42]. Средняя потенциальная энергия молекулы в диэлектрике равна $-\frac{1}{4}\alpha_{\parallel}|A_L|^2$, когда ось молекулы параллельна световому полю, и $-\frac{1}{4}\alpha_{\perp}|A_L|^2$, когда ось молекулы перпендикулярна полю. Поэтому вызываемая световым лучом молекулярная ориентация описывается распределением Максвелла — Больцмана (30), если вместо E_{dc}^2 подставить $\frac{1}{2}|A_L|^2$. Таким образом, световое поле само увеличивает показатель преломления пропорционально своей собственной интенсивности. Вычисление совершенно аналогично вычислению для квадратичного эффекта Керра в постоянном поле, за исключением того, что теперь постоянный дипольный момент полярных молекул не может давать вклад, так как ориентация молекул не успевает следовать за быстрыми колебаниями светового поля и, следовательно, исчезает средняя потенциальная энергия постоянного диполя. Таким образом можно получить следующее выражение для изменения показателя преломления в виде линейной функции от $(kT)^{-1}$:

$$n_2|\mathbf{E}_L|^2 = \frac{2\pi(\alpha_{\parallel}-\alpha_{\perp})^2 N_0}{45kTn_0}\left(\frac{n_0^2+2}{3}\right)^4|\mathbf{E}_L|^2; \quad (31)$$

здесь N_0 — число молекул в 1 *см*^{3} и n_0 — линейный показатель преломления на лазерной частоте. Член $(n_0^2+2)/3$ представляет собой поправочный множитель на локальное поле, называемое полем Лоренц — Лорентца. Ясно, что вызываемая лазерным полем ориентация молекул будет также изменять показатель преломления света на других частотах. Если поляризация второго светового луча перпендикулярна поляризации лазера, то для него показатель преломления будет уменьшаться, а не возрастать. Второй световой луч будет в этом случае дефокусироваться лазерным лучом конечного диаметра. Когда второй световой луч имеет частоту ω_L', близкую к лазерной частоте ω_L, возникают некоторые новые интересные особенности. В этом случае ориентационная потенциальная энергия содержит изменяющийся во времени член на разностной частоте $\omega_L - \omega_L'$. Дифференцируя потенциальную энергию по θ, получаем зависящий от времени момент вращения. Решающий вопрос состоит в том, может ли ориентация молекул следовать за этим изменением на разностной частоте и может ли в каждый момент цикла устанав-

ливаться тепловое равновесие. Это действительно имеет место, если $(\omega_L - \omega'_L)\,\tau_c \ll 1$, где τ_c — характеристическое время молекулярной переориентации. Если $(\omega_L - \omega'_L)\,\tau_c \gg 1$, то молекулы не могут следовать за изменением поля во времени. Как и во всех типичных релаксационных явлениях, между молекулярной переориентацией и частотой биений имеется запаздывание по фазе, если $(\omega_L - \omega'_L)\,\tau_c \sim 1$. Теория может быть развита тем же способом, что и дебаевская теория диэлектрической релаксации полярных молекул. Характеристическое время τ_c, очевидно, зависит от размера молекул и вязкости жидкости η. Для сферы радиуса a имеем $\tau_c = (4\pi a^3/3kT)\cdot\eta$. Для типичных жидкостей τ_c изменяется от 10^{-10} до 10^{-13} *сек*. Результаты расчета нелинейной поляризации на частоте ω'_L колебания, параллельного $\mathbf{E}_L$, в случае зависящего от частоты и интенсивности комплексного показателя преломления могут быть выражены в следующей форме [43]:

$$\mathbf{P}_{\parallel}^{NL}(\omega'_L) = \left(\frac{n_0+2}{3}\right)^4 \frac{(\alpha_{\parallel}-\alpha_{\perp})^2 N_0}{45kT}\left\{|\mathbf{E}'_L|^2\mathbf{E}'_L + \right.$$

$$\left. + \left[1 + \frac{1}{1+(\omega_L-\omega'_L)^2\tau_c^2} - \frac{i(\omega_L-\omega'_L)\tau_c}{1+(\omega_L-\omega'_L)^2\tau_c^2}\right]|\mathbf{E}_L|^2\mathbf{E}'_L\right\}. \quad (32)$$

Последний член в этом выражении содержит мнимую часть нелинейной восприимчивости $\chi''(-\omega'_L, \omega_L, -\omega_L, \omega'_L)$, которая отрицательна при $\omega'_L - \omega_L < 0$ и имеет максимум при $(\omega_L - \omega'_L)\,\tau_c = 1$. Следовательно, имеется множитель с экспоненциальным усилением на частоте ω'_L, пропорциональной интенсивности лазера. Вынужденное излучение на частоте ω'_L называют вынужденным крылом линии Рэлея [44]. Иллюстрация этого рассеяния [45] приведена на рис. 9 и 10.

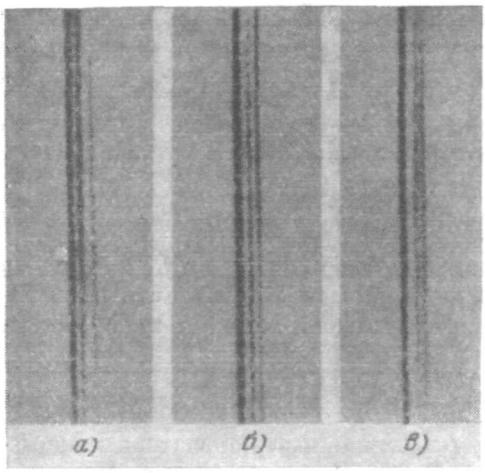

Рис. 9. Вынужденное рассеяние Мандельштама — Бриллюэна и линии Рэлея в нитробензоле.

а) 12° С; *б*) 16° С; *в*) 31° С. В каждом спектре линия слева — линия падающего лазерного излучения. Вторая линия — линия вынужденного рассеяния крыла линии Рэлея. Третья линия — линия вынужденного рассеяния Мандельштама — Бриллюэна [45].

С изменением температуры линия вынужденного крыла рэлеевского рассеяния сдвигается по частоте. Разность частот $\Delta\omega = \omega_L - \omega'_L$ обратно пропорциональна вязкости. Вынужденное рэлеевское рассеяние можно рассматривать как вынужденное комбинационное рассеяние на вращательных состояниях молекул. Эти состояния не разрешены в жидкости, так как из-за затухания их ширина больше расстояния между вращательными состояниями. Затухание отбирает у вращательного движения в жидкости энергию $\hbar(\omega'_L - \omega'_L) = \hbar\Delta\omega$. Когда присутствуют одновременно два поля на частотах ω_L и ω'_L, модуляция показателя преломления может вызвать появление целого ряда боковых полос или составных частот [43]. Рассмотрим, например, поляризацию на m-й боковой частоте $\omega_0 - m\Delta\omega$, которая связана с соседними боковыми полосами соотношением

$$P_m(\omega_L - m\Delta\omega) = \left(\frac{n_0+2}{3}\right)^4 \frac{(\alpha_{\parallel}-\alpha_{\perp})^2 N}{45kT}\left[\frac{E_L E_L^* E_{m-1}}{1-i\Delta\omega\tau_c} + \frac{E'_L E_L^* E_{m+1}}{1+i\Delta\omega\tau_c}\right]. \quad (33)$$

Таким образом, можно генерировать много боковых полос. При благоприятных условиях может наблюдаться сотня и более линий, простирающихся в интервале нескольких сотен обратных сантиметров [46–48].

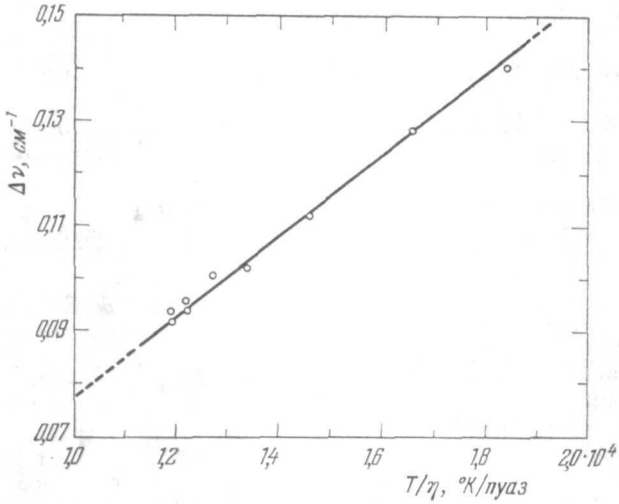

Рис. 10. Зависимость смещения линии вынужденного рассеяния крыла линии Рэлея в нитробензоле от температуры и вязкости.

На рис. 11 показано уширение стоксовой линии циклогексана с длиной волны 8658 Å молекулами CS_2 [43]. Падающий лазерный луч состоял из двух мод с интервалом 1,6 $см^{-1}$ между ними. В чистом циклогексане возникает несколько стоксовых компонент с тем же самым расстоянием между ними, которые на фотографии не разрешаются из-за переэкспонирования. Небольшие добавки CS_2 приводят к возрастающему в значительной степени уширению благодаря только что описанному механизму. Роль E_L и E'_L в уравнении (33) играют первоначальные стоксовы компоненты циклогексана. Можно получить такое же уширение, не смешивая жидкости, а пропуская частотные компоненты в области 8658 Å через отдельную кювету с CS_2. Стоксовы линии молекулы CS_2 не генерируются, поэтому эффект модуляции показателя преломления четко отделяется от вынужденного комбинационного рассеяния.

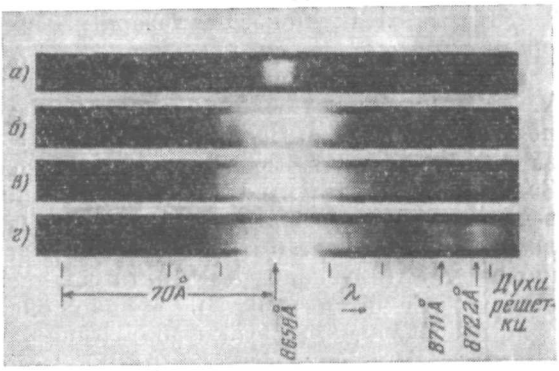

Рис. 11. Частотное уширение стоксовой линии циклогексана при добавлении CS_2.

Рубиновый лазер имел две интенсивные моды с расстоянием между ними в 1,6 $см^{-1}$. *а*) Чистый циклогексан; *б*) 5% CS_2 по объему; *в*) 10% CS_2 по объему; *г*) 15% CS_2 по объему.

Частотное уширение асимметрично и более выделено с низкочастотной (длинноволновой) стороны. Это связано с мнимой частью восприимчивости, фигурирующей в формулах (32)—(33), которая дает в этой

части спектра усиление рэлеевского типа. С помощью такого же механизма могут генерироваться частоты, промежуточные между ω_L и ω'_L. Результирующий спектр часто имеет диффузный характер. Заметно возрастающая интенсивность в область 8722 Å на рис. 11 вызвана комбинационным усилением на другом колебании молекулы циклогексана.

Уширение обнаруживает ожидаемое поведение при изменении температуры [49] и вязкости. Когда вязкость высока, уширение уменьшается, поскольку $(\omega_L - \omega'_L)\,\tau_c > 1$. Боковые полосы становятся более диффузионными и простираются менее далеко, если вязкость увеличивается.

Любые две достаточно близкие падающие частоты могут испытывать повторные биения с образованием новых составных частот. Компоненты

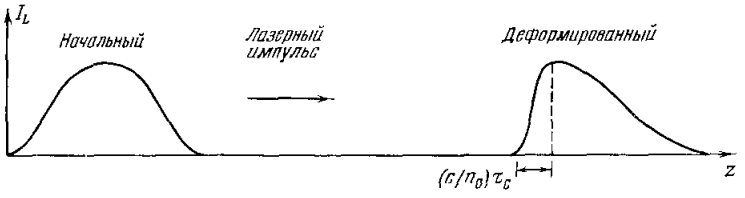

Рис. 12. Искажение лазерного импульса, проходящего в среде с зависящим от интенсивности показателем преломления.
Релаксационные процессы ограничивают крутизну огибающей хвоста лазерного импульса.

рассеяния Мандельштама — Бриллюэна и крыла линии Рэлея могут испытывать биения с лазерным лучом, что приводит к появлению новых компонент [50].

Представляет интерес рассмотреть те же самые явления во времени, а не по спектру [51].

На рис. 12 показан лазерный импульс, распространяющийся в среде с зависящим от интенсивности показателем преломления. Максимум импульса будет распространяться несколько медленнее, чем хвост импульса. После некоторого времени импульс примет форму, показанную справа. Задняя часть импульса станет более крутой. Ширина заднего края будет быстро сужаться в пространстве до величины $\sim n_c^{-1} c\tau_c$. Задний край импульса содержит компоненты, которые распределены в частотном интервале в окрестности τ_c^{-1}. В этом случае показатель преломления не может быть просто выведен из мгновенной интенсивности, и формула (32) показывает, что нелинейный показатель преломления быстро стремится к нулю. Можно сказать, что огибающая световой волны образует ударный фронт и ширина этого фронта определяется молекулярным релаксационным процессом. Однако электромагнитного удара нет. Электромагнитное поле в световой волне все же является постепенно увеличивающейся или уменьшающейся синусоидальной волной. Механизм деформации импульса представляет собой тот же самый физический процесс, развивающийся во времени как модуляция показателя преломления в спектре. Так как нити обычно состоят из коротких вспышек света длительностью около 10^{-11} *сек*, анализ развития импульса во времени становится более целесообразным, чем исследование биений многих частотных компонент, приводящих к частотному уширению в нитях.

Это явление недавно рассматривалось в нескольких экспериментальных и теоретических работах [51].

V. НОРМАЛЬНЫЕ И АНОМАЛЬНЫЕ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ В ВЫНУЖДЕННОМ КОМБИНАЦИОННОМ ИЗЛУЧЕНИИ

Так как вынужденное комбинационное рассеяние зависит экспоненциально от лазерной интенсивности, для количественного сравнения теории с экспериментом должна быть точно определена геометрия лазерного луча. Поскольку «нормальное» поведение определяется как поведение, согласующееся с теоретическими выражениями гл. II, полученными на основе однородных плоских волн, не удивительно, что в эксперименте было отмечено много аномалий. Большинство из них, если не все, могут быть объяснены, если вместо приближения идеализированных монохроматических однородных плоских волн рассматриваются действительная геометрия и временно́е поведение лазера. В настоящей главе будут рассмотрены некоторые важные экспериментальные наблюдения, которые выделяют основные физические явления.

1. Коэффициент усиления комбинационного рассеяния

В принципе коэффициент усиления комбинационного рассеяния может быть определен из порогового условия для генерации в комбинационном лазере. Однако практически такое определение довольно ненадежно. Усиление в генераторе высоко, а механизм обратной связи часто точно

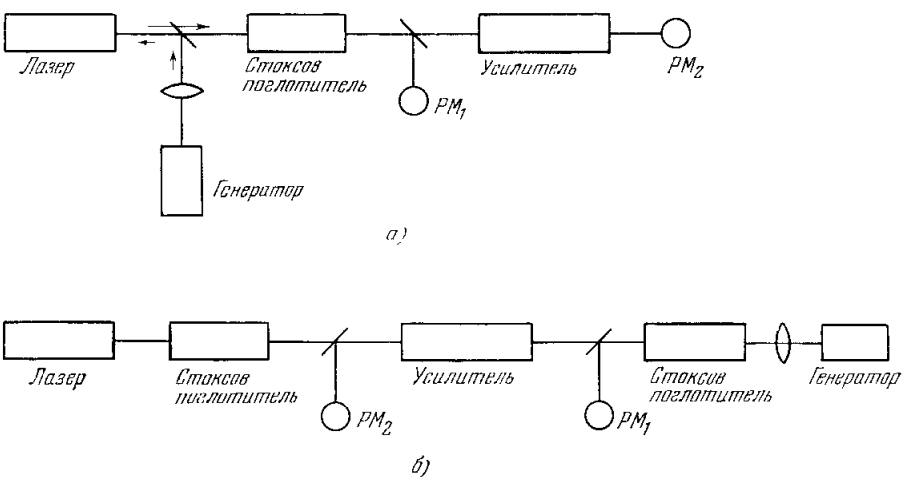

Рис. 13. Экспериментальные установки для измерений коэффициента усиления вынужденного стоксова излучения с кюветой комбинационного усилителя с полностью обозначенной геометрией.

а) Для усиления вперед; б) для усиления назад.

неизвестен. Генерация ограничивается и другими нелинейностями, такими как истощение лазерной накачивающей мощности, возникновение стоксова излучения более высокого порядка или вынужденное рассеяние Мандельштама — Бриллюэна. Точно так же как характеристики вакуумного триода должны быть сначала изучены при его работе в качестве линейного стабильного усилителя класса А, комбинационное усиление наиболее точно измеряется в комбинационном усилителе с относительно низким постоянным усилением. На рис. 13 показано устройство типичного комбинационного усилителя [52] для измерения коэффициента усиления вперед и назад. Стоксова линия, усиление которой должно быть

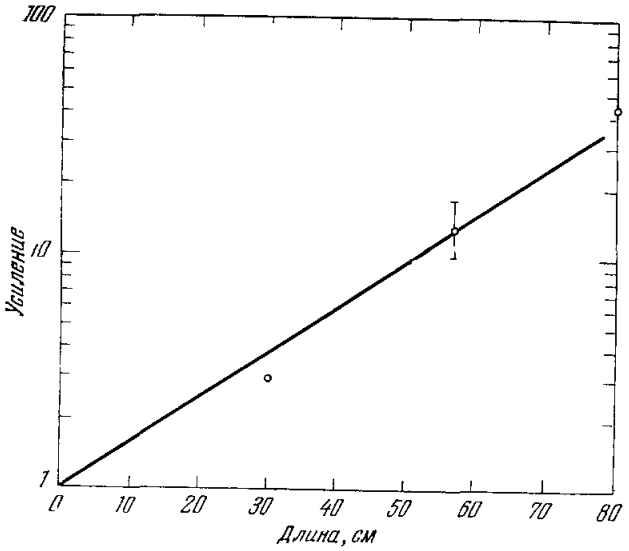

Рис. 14. Рост отношения выход/вход стоксовой интенсивности Q (1) в кювете, заполненной газообразным водородом при 70 *амагат*, в функции от длины кюветы.

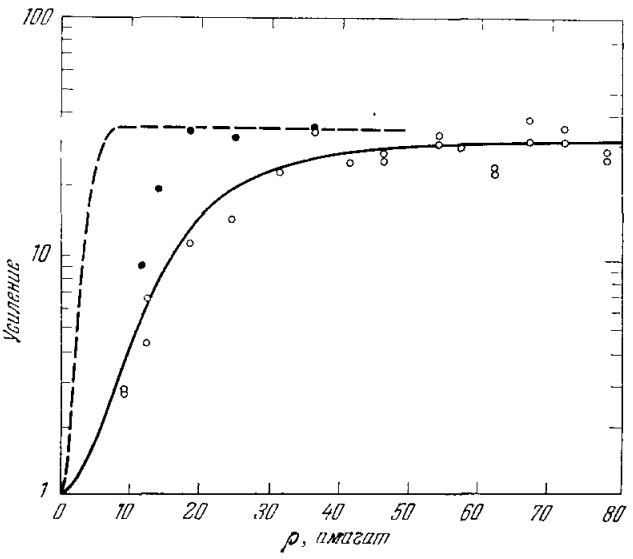

Рис. 15. Экспериментальные точки ● для усиления вперед в газообразном водороде как функции плотности и вычисленная штриховая кривая.

Длина кюветы была 80 *см*, а номинальная мощность лазера — 20 *Мвт/см*². Отклонение при низкой плотности вызвано возникновением антистоксова излучения внутри телесного угла, образованного лазерным и стоксовым лучами и спектральной шириной лазерной накачки, которая становится сравнимой с шириной спонтанной стоксовой линии. Экспериментальные точки ○ для усиления назад следует сравнить со сплошной кривой, вычисленной из данных по ширине линии, приведенных на рис. 16. Длина кюветы равна 30 *см*, а номинальная лазерная мощность — 60 *мвт/см*²,

определено, возбуждается в комбинационном генераторе. Перед попаданием в усилитель стоксов свет сильно ослабляется. Чтобы получить достаточную развязку между усилителем и системой «лазер — комбинационный лазер», требуется ослабление 40—60 *дб*. Поэтому стоксов ослабитель является наиболее важной частью экспериментальной установки. Так как лазерный луч в кювете комбинационного генератора может деформироваться неконтролируемым образом, то в кювету комбинационного усилителя посылается недеформированный, несфокусированный лазерный импульс. Для усиления света комбинационного рассеяния в направлении назад лазерный луч фокусируется в кювету комбинационного генератора. Для усилителя света комбинационного рассеяния в направлении вперед часть лазерного луча направляется разделительной пластинкой в генератор. Другая часть накачивает усилитель. Интенсивность стоксова излучения регистрируется на входе и выходе кюветы усилителя длиной l. Отношение $I_s(l)/I_s(0)$ есть усиление стоксова излучения. Можно проверить, что это отношение не зависит от уровня входа $I_s(0)$. В частности, стабильный усилитель не должен давать сигнал на выходе, если в него ничего не входит (исключая очень слабый шум спонтанного излучения). Истощение лазерной мощности и другие нелинейности, проявляющиеся при мощности, достаточной для возникновения стоксовых линий высокого порядка, могут быть устранены или контролируемы.

С указанными предосторожностями для газообразного водорода было получено хорошее согласие с простой теорией, или «нормальное поведение». Колебательная линия $Q(1)$ этой молекулы имеет стоксов сдвиг 4155 $см^{-1}$. Она соответствует переходу молекул на колебательный уровень без изменения вращательного состояния $J = 1$. Стоксов свет от рубинового лазера появляется на длине волны около 10 000 Å. Подходящим ослабителем в этой области спектра служит кювета, наполненная водой. Кювета усилителя переменной длины могла наполняться водородом при различных давлениях. На рис. 14 представлено экспоненциальное изменение коэффициента усиления с длиной l. Коэффициенты усиления назад и вперед как функции давления ρ показаны на рис. 15. Коэффициент усиления при высоких плотностях не зависит от плотности. В этом режиме ширина линии Γ_{ab} пропорциональна плотности, так как в этом случае ширина обусловлена преимущественно столкновениями между молекулами. Так как число частиц также пропорционально плотности газа, выражения (4) и (5) предсказывают коэффициент усиления, не зависящий от плотности. При очень низких давлениях коэффициент усиления определяется допплеровской шириной, которая в шесть раз больше для рассеяния назад, чем вперед. Ширина линии комбинационного перехода определяется экспериментально с помощью комбинационного усилителя. Экспериментальные результаты, показанные на рис. 16 кружками, хорошо согласуются с теоретической кривой. Представляет интерес режим давления, при котором допплеровское уширение уменьшается перед последующим увеличением. Данные по ширине линии могли быть получены при «настраивании» стоксова генератора по контуру коэффициента усиления усилителя. Это достигалось изменением давления в генераторе, так как стоксов колебательный сдвиг является линейной функцией плотности при данной температуре, как показано на рис. 17. Данные, представленные на рис. 14 и 15, находятся в хорошем согласии с простыми теоретическими соотношениями (4) и (5). Неопределенность в абсолютном значении коэффициента усиления g_s составляет около 50% и вызвана недостаточным знанием распределения интенсивности лазерного и стоксова лучей. Интегральная интенсивность луча контролировалась и определялся диаметр луча между точками, соответствующими половине мощности.

Экспериментальные данные согласуются с теоретическим значением, предсказанным формулой (5). Коэффициент усиления при высокой

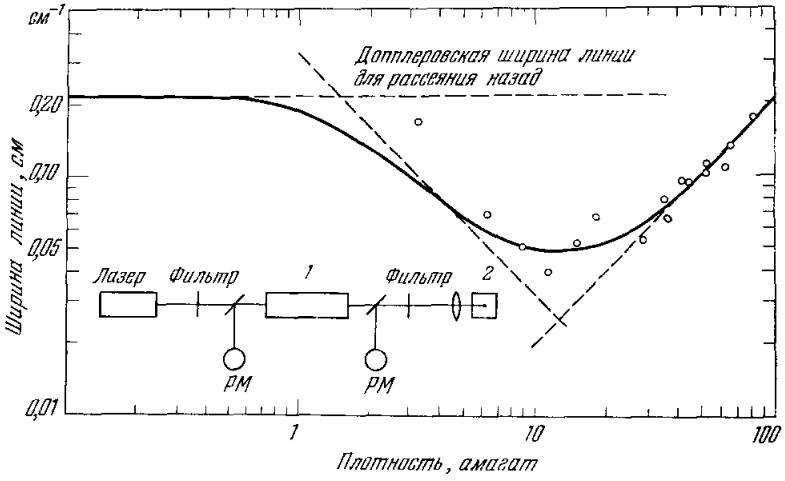

Рис. 16. Ширина линии Q (1) стоксова рассеяния назад в газообразном водороде как функция плотности.

плотности $g_s = 1{,}5 \cdot 10^{-3}$ $см^{-1}/(мвт/см^2)$. Комбинационный генератор на водороде, излучающий стоксов свет под прямыми углами к лазерному

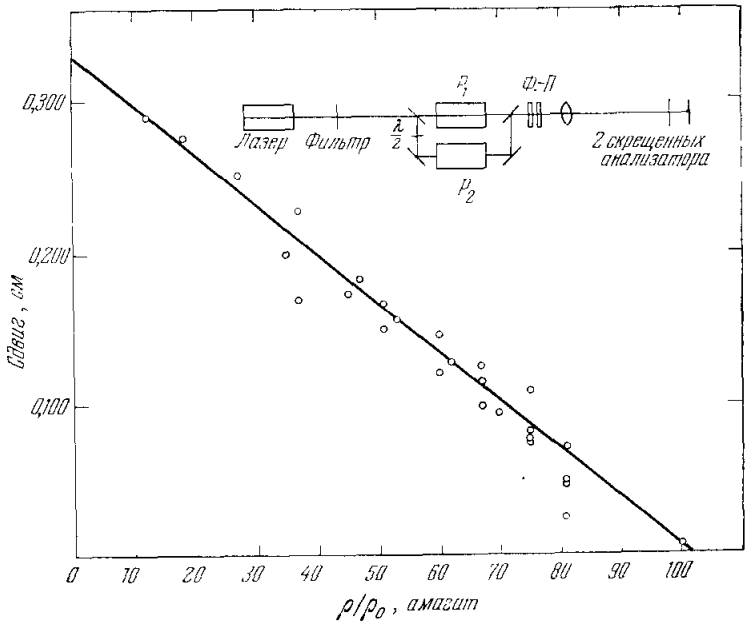

Рис. 17. Изменение сдвига стоксовой линии Q (1) в газообразном водороде как функция плотности, измеренное при сравнении частот двух комбинационных лазеров при различных давлениях.

лучу через зеркала с высоким коэффициентом отражения, также ведет себя в хорошем согласии с теорией [52].

Поведение коэффициента усиления усилителя на газообразном водороде отличается от поведения коэффициента усиления в усилителе

на бензоле [53] (рис. 18). После начального режима с низким усилением коэффициент усиления неожиданно возрастает на один или два порядка величины. Такое «аномальное поведение» типично для многих жидкостей, таких как нитробензол, CS_2, толуол и т. д. Низкий коэффициент усиления, соответствующий почти горизонтальному участку, достаточно хорошо совпадает со значением, предсказанным выражением (5). Аномально высокий коэффициент усиления вызван образованием нитей с высокой

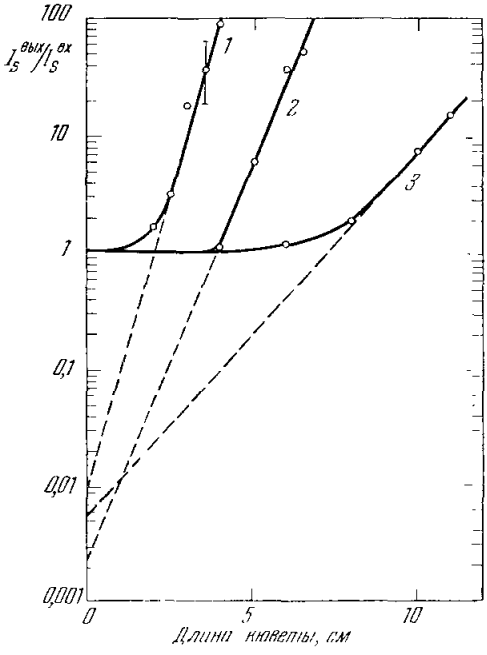

Рис. 18. Стоксово усиление в комбинационном усилителе на бензоле как функция длины кюветы.

Излом в логарифмической кривой усиления соответствует наступлению самофокусировки. Отношение лазерных интенсивностей для кривых *1*, *2* и *3* соответственно 1 : 0,57 : 0,36.

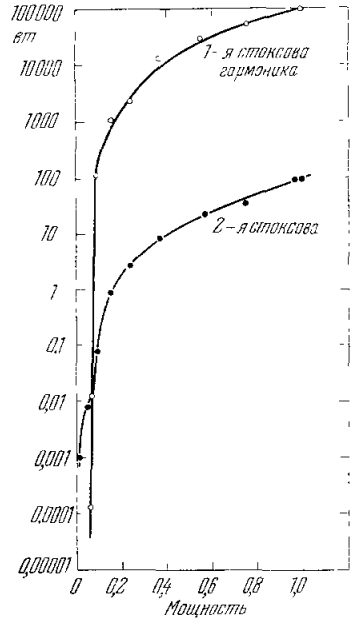

Рис. 19. Выходная интенсивность первой и второй стоксовых гармоник из кюветы с нитробензолом длиной 10 *см* как функция лазерной мощности накачки.

При очень низких мощностях накачки имеется лишь незначительно усиленный шум спонтанного излучения. Внезапное увеличение (или порог) в стоксовой выходной мощности соответствует возникновению первой нити с высокой интенсивностью.

интенсивностью [54–56]. Излом кривой указывает на расстояние, необходимое для самофокусировки. Для более слабых лазерных интенсивностей необходимо большее расстояние. При измерении коэффициента усиления в направлении вперед необходимое для самофокусировки расстояние зависит также от того, как разделены генератор и усилитель. Нити образуются уже в генераторе. В воздушном расстоянии между генератором и усилителем эти нити дифрагируют. Когда генератор и усилитель отделялись более чем на 20 *см*, нити полностью исчезали на входе усилителя. Оцененный размер нитей — 20—60 *мкм*.

Образование нитей объясняет неожиданную активность генераторов вынужденного стоксова излучения, даже если нет никакой внешней обратной связи [57–59]. Типичные кривые мощности стоксова выхода как функции мощности накачки или длины кюветы показаны на рис. 19. Вторая (и более высокого порядка) стоксова гармоника появляется почти одновременно с первой. Можно также наблюдать с тем же самым порогом и вынужденное рассеяние Мандельштама — Бриллюэна. Причина этого

вновь состоит в образовании нитей с очень высокими интенсивностями, где многие нелинейные процессы начинают испытывать существенно высокоэкспоненциальный рост. Подробности формы кривой выходной мощности генератора зависят от подробностей образования нитей. Лазерная мощность в данной нити, по-видимому, быстро истощается; но полная мощность в луче фокусируется последовательно в другие нити. Отождествляя появление вынужденного комбинационного рассеяния с порогом образования нити, можно экспериментально проверить формулу (29) для расстояния до самофокусировки [60] (рис. 20). Пороговая длина в данном материале может быть понижена предварительной фокусировкой в кювете, наполненной другой жидкостью. При этом не нужно, чтобы эта жидкость давала какое-либо стоксово излучение, или же оно должно быть во всяком случае другой частоты. Фокусирующая жидкость может быть также смешана с другим веществом, которое имеет меньшую анизотропию молекул. Таким путем может быть существенно понижен порог вынужденного комбинационного рассеяния для симметричной молекулы CCl_4, если в CCl_4 добавить небольшое количество CS_2 и (или) нитробензола. Порог в чистом CCl_4 может быть также связан с эффектом самофокусировки, обусловленным образованием анизотропных групп при межмолекулярном взаимодействии в жидкости [61]. Установлено, что порог в смесях хорошо коррелирует с постоянной квадратичного эффекта Керра смеси [62]. Во многих жидкостях самофокусировка делает вынужденное комбинационное рассеяние значительно более легко наблюдаемым.

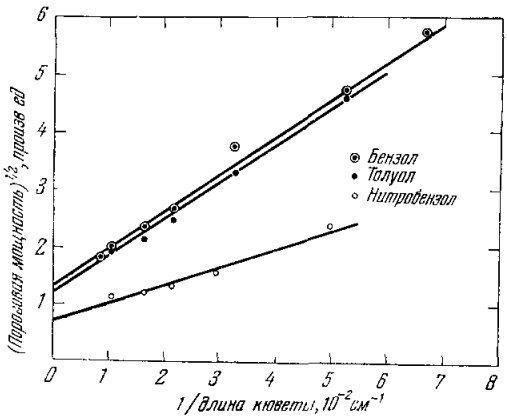

Рис. 20. Пороговая мощность вынужденного стоксова излучения как функция длины кюветы.

Прямые линии соответствуют условию для самофокусировки в пределах длины кюветы. Точка пересечения с осью ординат соответствует критической мощности для самофокусировки [60].

Кроме оптической анизотропной поляризуемости, в самофокусировку могут давать вклад другие эффекты, например электрострикция и упругое рэлеевское рассеяние [63]. Эти эффекты будут кратко рассмотрены в гл. VI.

2. Антистоксовы конусы

Направление излучения антистоксовой интенсивности задается условием согласования импульсов $2\mathbf{k}_L = \mathbf{k}_s + \mathbf{k}_{as}$ n-го порядка; антистоксова интенсивность на частоте $\omega_L + n\omega_v$ создается в результате биения между лазерным излучением в направлении вперед с идущим в конусе $(n-1)$-го порядка антистоксовым излучением и стоксовым излучением, так чтобы замыкался четырехугольник $\mathbf{k}_{(as)_n} = \mathbf{k}_{(as)_{n-1}} + \mathbf{k}_L - \mathbf{k}_{s_n}$.

Чтобы определить направление антистоксова излучения теоретически, должна быть известна с высокой точностью кривая дисперсии линейного показателя преломления. Линейная дисперсия определяет длину волнового вектора $|\mathbf{k}| = n\omega c^{-1}$. В кальците было найдено хорошее согласие между теоретическими и экспериментальными углами конусов [64]. Система конусов в кристалле кальцита показана на рис. 21. Лазерный луч был

слегка наклонен по отношению к грани кристалла, поэтому, соответственно более благоприятной обратной связи, коэффициент усиления больше с одной стороны луча. Было показано также, что интенсивность стоксова излучения в соответствующем направлении с противоположной стороны от $\mathbf{k}_{sn}$ уменьшается по сравнению со стоксовым излучением в направлениях, которые не связаны с антистоксовыми волнами. Это находится в согласии с результатами гл. I, где было показано, что связанная мода с частично стоксовым и антистоксовым характером имеет более низкий коэффициент усиления по сравнению со стоксовым излучением вдали от условий сохранения импульса. Наблюдалось, что углы антистоксовых конусов значительно увеличивались, если лазерный луч менее хорошо коллимировался (фокусировался линзами с коротким фокусным расстоянием или с большой апертурой). Причина этого заключается в том, что распределение направлений волнового вектора $\mathbf{k}_L$ делает возможным использование более сильного стоксова излучения, близкого к направлению вперед, что приводит к большим антистоксовым углам.

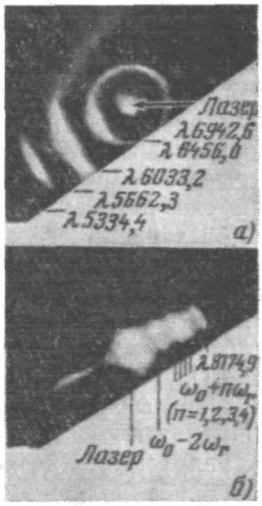

Рис. 21. Вынужденное комбинационное рассеяние на колебании 1085,6 $см^{-1}$ в кристалле кальцита.

а) Антистоксовы конусы различных порядков. Распределение интенсивности антистоксовых колец является асимметричным из-за небольшого отклонения лазерного луча от нормального падения. б) Картина стоксова излучения в тех же условиях, что и в случае а). Четко видно уменьшенное усиление в направлениях согласования с антистоксовыми конусами [64].

В газообразном водороде наблюдаемый угол антистоксова излучения также согласуется с теорией. Так как дисперсия в водороде мала и пропорциональна плотности, находим, что антистоксово излучение первого порядка образует с направлением вперед угол $\theta_{as} = 0{,}8\,[P_{(\text{атм})}]^{1/2}$. Это соотношение было проверено экспериментально. Уменьшение в стоксовом коэффициенте усиления по сравнению с теоретической кривой при низком давлении вблизи направления вперед, возможно, вызвано связью с антистоксовым излучением. При этих низких давлениях антистоксово направление попадает внутрь апертуры лазерного и стоксова лучей, вызывая уменьшение коэффициента усиления.

Во многих жидкостях найдены аномальные направления конусов [65] (класс II) дополнительно к нормальным (класс I) направлениям. Нормальные направления иногда отсутствуют. Имеется отчетливая корреляция между преобладанием конусов класса II и постоянной квадратичного эффекта Керра в жидкости. Конусы класса II также возникают из областей с узкими нитями, где и лазерная, и стоксова интенсивности высоки. Характер антистоксова излучения из таких ограниченных областей будет, очевидно, отличен [66] от излучения, определяемого условием сохранения импульса для плоских волн неограниченного поперечного сечения. Экспериментально наблюдаемые направления могут быть приемлемо объяснены, если смотреть нити с размерами от 5 до 50 *мкм*.

3. Спектральное уширение стоксовых и антистоксовых линий

Когда падающий лазерный луч монохроматический и уровень мощности не сильно превышает пороговый, обычно получаются довольно узкие линии вынужденного комбинационного рассеяния. Их ширина может быть на порядок величины меньше, чем ширина линий спонтанного излучения.

которая во многих жидкостях в обычных условиях составляет 1—5 $см^{-1}$. Это поведение находится в согласии с элементарной теорией лазеров. В газообразном водороде получены очень узкие стоксовы линии с шириной, сравнимой со спектральной шириной лазерного луча.

Если лазер содержит две или более частотные компоненты (например, с интервалом 0,1—2 $см^{-1}$), соответствующие двум или более продольным модам в рубиновом резонаторе, то часто наблюдается необычное частотное уширение, примеры которого показаны на рис. 11. Это может случиться, даже если первоначально лазерный луч высокой интенсивности был монохроматическим. В этом случае дополнительные частотные компоненты могут быть образованы в образце при возникновении вынужденного крыла линии Рэлея и рассеянии Мандельштама — Бриллюэна. В гл. IV мы уже рассматривали, каким образом может расти уширение из-за повторных биений фурье-компонент. В этой связи интересно заметить, что антистоксовы и стоксовы компоненты более высокого порядка обнаруживают более сильное уширение. И в этом случае имеется отчетливая корреляция уширения при многомодовом возбуждении с константой квадратичного эффекта Керра.

Остается показать, что порядок величины уширения правильно предсказывается теорией гл. IV. Хотя подробности геометрии нитей неизвестны, мы можем сопоставить уширение с усилением комбинационного излучения. Интенсивность вынужденного стоксова излучения примерно в e^{20} раз больше уровня спонтанного излучения. Можно сказать, что вынужденное комбинационное рассеяние имеет примерно 20 e-кратных длин в веществе. Нелинейная восприимчивость, описывающая квадратичный эффект Керра и модуляцию в типичных самофокусирующихся жидкостях, в 3—10 раз больше комбинационной восприимчивости. Следовательно, для модуляционного механизма имеем примерно 100 e-кратных длин. Это означает, что можно ожидать достаточной интенсивности примерно в сотне боковых полос, или до 100 τ_c^{-1}. Это соответствует нескольким сотням обратных сантиметров, что находится в качественном согласии с наблюдениями. Более точное вычисление было бы очень трудным [66], так как в высокоинтенсивных нитях в одно и то же время идет много нелинейных процессов, что приводит к задаче связанных мод, включающей сотни волн.

4. Другие составные частоты

В смесях жидкостей часто находят множество новых составных частот, т. е. $\omega_L \pm n_A\omega_{sA} \pm n_B\omega_{sB}$, где A и B относятся к двум молекулярным веществам, а n_A и n_B — целые числа. Интенсивность этих новых линий сравнима с интенсивностью стоксовых линий каждого вещества. Хотя высказывалось предположение, что эти частоты указывают на сильное межмолекулярное взаимодействие между двумя веществами, кажется довольно несомненным, что эти линии есть просто следствие существования нелинейной поляризации, кубичной по амплитудам полей для отдельного вещества [67, 68]. Если в горячих нитях лазерного луча возникли две стоксовы компоненты, то они могут испытывать повторные биения с лазерным полем и вызывать в каждом молекулярном компоненте дипольный момент на новой составной частоте:

$$P^{NL}(\omega_{sA}+\omega_{sB}-\omega_L)=\chi(+\omega_L-\omega_{sA}-\omega_{sB},\ \omega_{sA},\ \omega_{sB},\ -\omega_L)\,E_{sA}E_{sB}E_L^*.$$

Эта точка зрения выразительно подтверждается интересной серией экспериментов в кальците, в которых обнаружены биения между лазерной и стоксовой частотой и частотой второй гармоники. Экспериментальное

устройство показано на рис. 22. Частота второй гармоники генерировалась частью лазерного луча в кристалле KH_2PO_4 (KDP). Этот луч мог направляться под соответствующим углом в кристалл кальцита. Хотя любая другая частота в принципе могла бы служить точно так же как $2\omega_L$, эта частота может генерироваться с высокой интенсивностью в синхронизме с лазером. Вокруг частоты второй гармоники возникают боковые полосы

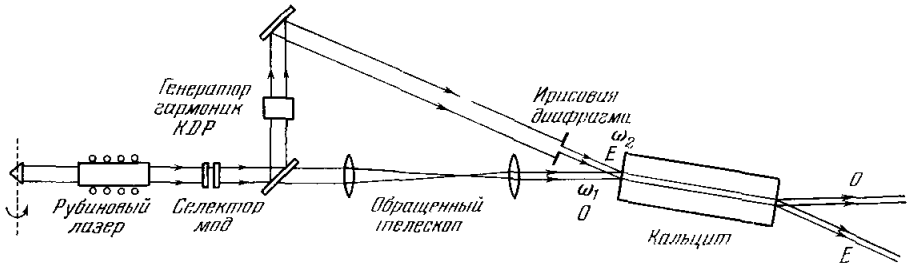

Рис. 22. Смещение частот ω_L, $2\omega_L$ и ω_s в кристалле кальцита приводит к появлению светового луча с частотой $2\omega_L - \omega_L + \omega_s = 2\omega_L - \omega_v$.
Существование обыкновенных и необыкновенных световых волн порождает различные возможности согласования импульсов [132].

с частотой $2\omega_L \pm (\omega_L - \omega_s)$. Для этого четырехфотонного процесса важно условие согласования импульсов. Для стоксовой компоненты необходимо равенство

$$\mathbf{k}(2\omega_L - \omega_v) = \mathbf{k}(2\omega_L) - \mathbf{k}(\omega_L) + \mathbf{k}(\omega_s).$$

Используя необыкновенный поляризованный луч на одной частоте и обыкновенные поляризованные лучи на других частотах, можно найти много геометрических способов, удовлетворяющих условию сохранения импульса.

В других экспериментах наблюдались новые составные частоты, включающие свет рассеяния Мандельштама — Бриллюэна.

5. Вынужденное антистоксово поглощение

При тщательном исследовании (с помощью спектрографа высокого разрешения) уширенной антистоксовой компоненты, природа которой обсуждалась в п. 3, часто находят резкую темную полосу поглощения в квазиконтинууме [69] точно на частоте ω_{as}. Вероятное объяснение этого явления состоит в следующем. Антистоксов континуум создается в ярких нитях. Этот антистоксов свет входит в области, расположенные вне нити, но все еще попадающие внутрь неискаженной части лазерного луча. В этих областях направление антистоксова излучения (конусы класса II) не связано со стоксовой компонентой и, согласно (7), среда вне нитей должна быть затухающей для света с частотой ω_{as}. Этот эффект будет также стремиться увеличить угол конуса наблюдаемого антистоксова света.

6. Отношение интенсивностей света, рассеянного вперед, к интенсивности света, рассеянного назад, и переходные эффекты

Существенное внимание уделялось тому факту, что стоксова интенсивность в направлениях вперед и назад обычно не одинакова. Тщательно проведенные эксперименты с газообразным водородом, обсуждавшиеся в п. 1, показали, что коэффициенты усиления комбинационного рассеяния

вперед и назад одинаковы и равны также коэффициенту усиления для рассеяния под углом 90°. Коэффициент усиления действительно изотропен, за исключением направлений, где имеет место взаимодействие с антистоксовой компонентой.

В самофокусирующих жидкостях усиление, разумеется, много больше в направлении, параллельном нитям, чем во всех других направлениях. Даже для отклонения от оси луча в 1° стоксов луч определяется уже средней интенсивностью лазерного луча и средний коэффициент усиления падает на один или два порядка величины до нормального значения. То же самое имеет место, если жидкость накачивается диффузным лазерным светом [70].

В направлении, параллельном нити, интенсивности рассеяния вперед и назад обычно не равны. В генераторах комбинационного рассеяния света при небольшом превышении порога интенсивность назад зачастую выше. Возможное объяснение этого факта заключается в том, что стоксова генерация возбуждается в конце кюветы, где произошла самофокусировка. В случае распространяющегося назад стоксова излучения можно воспользоваться экспоненциальным усилением в несфокусированном лазерном луче. При этом стоксово излучение назад получает энергию из лазерного импульса, распространяясь в противоположном направлении относительно переднего конца кюветы. Это объяснение подтверждается наблюдением очень интенсивного стоксова пика с очень малой длительностью ($\sim 10^{-11}$ *сек*), если комбинационный лазер возбуждается высокоинтенсивным лазерным лучом. Передний край распространяющегося назад стоксова импульса на своем пути все время встречает неистощенный, «вновь поступающий» лазерный свет. Он может, таким образом, усиливаться, истощая мощность в лазерном луче, через который он проходит, до интенсивности, которая в спектре во много раз больше, чем интенсивность возбужденного света лазера. Наблюдалась пиковая стоксова интенсивность, в десять раз превышающая лазерную [72]. Когда лазерный импульс продолжается свыше 10^{-11} *сек*, либо может образовываться новый стоксов импульс, распространяющийся назад в колебании релаксационного типа, либо конкуренция с другими нелинейными процессами, такими как вынужденное рассеяние Мандельштама — Бриллюэна, приведет к другим усложнениям. Временное поведение является важным фактором в так называемых «вперед-назад аномалиях».

8. Поляризация

Интересные вопросы поляризации [19, 72–76] не могут обсуждаться подробно в рамках этого обзора. Обычно свет вынужденного комбинационного рассеяния поляризован по направлению, параллельному возбуждающему лазерному свету, так как сечения комбинационного рассеяния на молекулярных колебаниях являются наибольшими для совпадающей с поляризацией возбуждающего света поляризации. Отношение двух сечений, и, следовательно, отношение двух комбинационных коэффициентов усиления, может быть выражено через деполяризационное отношение для спонтанного комбинационного рассеяния. Хотя генератор производит только параллельно поляризованный стоксов свет, в усилителе может быть измерено комбинационное усиление и для перпендикулярной поляризации.

Усиление комбинационного рассеяния света в случае, когда возбуждающий свет лазера поляризован по кругу, можно рассмотреть аналогичным образом. Для комбинационного рассеяния на симметричных колебаниях усиление стоксова света вперед, поляризованного по кругу с тем

же знаком вращения, что и в лазерном луче, должно быть выше, чем для света, поляризованного по кругу с противоположным знаком вращения. Экспериментальные исследования в жидкостях затрудняются тем обстоятельством, что в процессе самофокусировки начальная круговая поляризация в значительной мере превращается в эллиптическую (и почти линейную)[74-76]. Мода с линейной поляризацией является стабильной собственной модой в квадратичном эффекте Керра.

Очень интересные результаты по поляризации вынужденного комбинационного рассеяния в водороде были получены в [77]. Данные на рис. 23 показывают, какие комбинационные процессы преобладают при разных температурах. Это вызвано изменением заселенностей различных вращательных уровней молекулы дейтерия D_2. Результат для H_2 был бы отчасти другим. При низкой температуре и круговой поляризации лазерной накачки становится преобладающим комбинационное рассеяние на вращательном переходе. Оно обозначается спектроскопически S_0 (0).

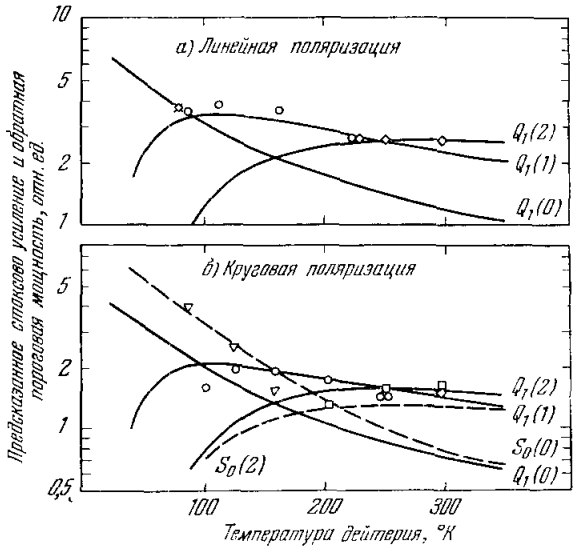

Рис. 23. Вынужденное стоксово излучение в газообразном дейтерии для различных возможных комбинационных переходов.

Экспериментальные точки сравниваются с вычисленными кривыми, основанными на данных по заселенности и ширинам различных колебательно-вращательных состояний как функций температуры [77].

Более подробный анализ показывает, что переходы с изменением ориентационного квантового числа

$$\Delta m_J = \pm 2$$

имеют наибольший матричный элемент. Это означает, что стоксово излучение в направлении вперед имеет противоположный знак вращения круговой поляризации по отношению к лазерному лучу.

VI. ПАРАМЕТРИЧЕСКОЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ МЕЖДУ БОЗОННЫМИ ВОЛНАМИ

В этой главе развивается другая точка зрения на вынужденное комбинационное рассеяние и связанные с ним явления. Когда наблюдения ограничиваются свойствами световых волн, можно показать, что эта новая точка зрения идентична развитой выше. В этой главе подробно рассматриваются колебания, вращения и другие возможные возмущения, вызываемые световыми волнами в среде. Эти возмущения присутствуют отчасти в скрытой форме на промежуточной ступени в вычислении нелинейных восприимчивостей.

Делается попытка, исходя из нового физического подхода, проследить подробнее эти возмущения среды и рассмотреть их на равной основе со световыми волнами.

1. Вынужденное комбинационное рассеяние как параметрическое фотон-фононное взаимодействие

Вместо локализованного колебательного возбуждения молекулярной группы, показанного в основном комбинационном процессе на рис. 1, можно рассмотреть коллективное колебательное возбуждение [78] ансамбля молекул. В кристалле кальцита колебания ионов CO_3^{--} на частоте 1069 $см^{-1}$ порождают оптическую фононную ветвь. Дисперсионное соотношение для этой оптической фононной ветви зависит от межмолекулярных сил, т. е. от взаимодействия между группами CO_3^{--} в соседних единичных ячейках. Эта сила взаимодействия слаба по сравнению с упругой силой колебания внутри одной CO_3^{--}-группы. Этот физический факт находит математическое выражение в дисперсионном соотношении для оптических фононов

$$\omega_v^2(\mathbf{k}_v) = \omega_{v,0}^2 + \beta \mathbf{k}_v^2, \qquad (34)$$

графически показанном на рис. 24, где ω_v — колебательная частота и $\mathbf{k}_v$ — волновой вектор оптического фонона. Величина β обычно мала для оптических фононов и групповая скорость $d\omega/d\mathbf{k} = \beta\mathbf{k}_v$ близка к нулю. Энергию колебательного возбуждения нелегко передать в соседние единичные ячейки. Какое значение $\mathbf{k}_v$ имеет место при вынужденном комбинационном рассеянии? Каждая отдельная CO_3^{--}-группа возбуждается с соответственной фазой, которая определяется фазами лазерной и стоксовой волн в местоположении CO_3^{--}-группы $\mathbf{r}$. Эта фаза равна $(\mathbf{k}_L - \mathbf{k}_s)\,\mathbf{r}$. Таким образом, мы приходим к картине, когда лазерная волна и стоксова волна связаны с оптическим фононом с волновым вектором $\mathbf{k}_v = \mathbf{k}_L - \mathbf{k}_s$. Хотя этот волновой вектор зависит от направления стоксова рассеяния, частота колебания по существу не зависит от направления и равна $\omega_{v,0}$. Индекс 0 будет впредь опускаться. Следует помнить, что длина световой волны всегда велика по сравнению с размером единичной ячейки в кристаллах. Следовательно, представляет интерес только часть оптической фононной ветви в непосредственной близости к ее началу в $\mathbf{k}$-пространстве.

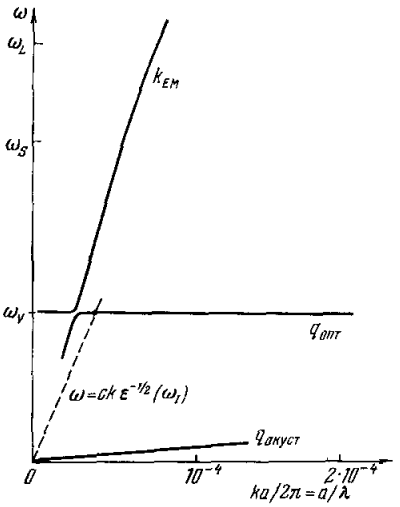

Рис. 24. Дисперсионные кривые оптических и акустических фононов.

Штриховая прямая линия соответствует условию сохранения импульсов для стоксова рассеяния вперед, $\mathbf{k}_L - \mathbf{k}_s = \mathbf{q}_{опт}$, от резкой колебательной моды, которая не имеет дипольной связи с электромагнитным полем.

В жидкостях колебательное возбуждение молекул также локализовано, так как диффузия молекул в течение времени жизни колебательного возбуждения пренебрежимо мала. Фаза колебательного возбуждения задается таким же выражением, что и в кристалле. Можно говорить о когерентно-вызываемых колебаниях [79], которые идентичны с оптическими фононами. Основной комбинационный процесс описывается в этом случае как аннигиляция лазерного фотона и одновременное возникновение оптического фонона и стоксова фотона. Бозонные волны, однако, в высокой степени возбуждены и относительные фазы волн существенны. На классическом языке можно сказать, что стоксова волна и оптическая фононная волна параметрически связываются лазерным полем. По крайней мере,

в начальной стадии это поле может рассматриваться как постоянный параметр.

Связь световых волн и колебаний может быть описана на основе классической модели, в которой поляризуемость молекулы есть линейная функция колебательной координаты (внутриядерного расстояния R):

$$\alpha = \alpha_0 + \frac{\partial \alpha}{\partial Q_v} Q_v, \tag{35}$$

где оптическая фононная координата

$$Q_v = R\,(2\rho)^{1/2} \exp(-i\mathbf{k}_v\mathbf{r}), \tag{36}$$

а ρ — приведенная колебательная масса, отнесенная к единице объема. Из постоянной связи в усредненной по времени потенциальной энергии

$$U_{\text{вз}} = -\frac{1}{2}\frac{\partial \alpha}{\partial Q_v} Q_v E_L^* E_s + \text{к. с.} \tag{37}$$

может быть получена следующая система связанных уравнений для Q_v^* и E_s:

$$\begin{gathered} \ddot{Q}_v^* - \beta\,|\mathbf{k}_L - \mathbf{k}_s|^2 Q_v^* + \omega_{v,\,0}^2 Q_v^* + \frac{2i}{\tau_v}\dot{Q}_v^* = N\left(\frac{\partial \alpha}{\partial Q_v}\right)^* E_L^* E_s, \\ \ddot{E}_s + \omega_s^2 E_s - \frac{2i}{\tau_s}\dot{E}_s = 4\pi\omega_s^2 N \frac{\partial \alpha}{\partial Q} E_L Q_v^*, \end{gathered} \tag{38}$$

где точки означают дифференцирование по времени. Для колебательной и стоксовой волн введены феноменологические величины затухания. Так как постоянная связи мала, набор уравнений для связанных волн может быть приведен к набору уравнений для связанных амплитуд:

$$\begin{gathered} \dot{A}_v^* + \left(\frac{A_v^*}{\tau_v}\right) = \frac{1}{2i\omega_v} N \left(\frac{\partial \alpha}{\partial Q}\right)^* A_L^* A_s, \\ \dot{A}_s + \frac{A_s}{\tau_s} = -\frac{4\pi\omega_s^2}{2i\omega_s} N \frac{\partial \alpha}{\partial Q} A_L A_v^*. \end{gathered} \tag{39}$$

В этих уравнениях амплитуды выбраны нарастающими во времени. Соответствующая задача для нарастающих в пространстве волн получается заменой $\partial/\partial t$ на $v_{gr}\,\partial/\partial z$. Решение такой проблемы двух связанных волн нам уже знакомо. Имеется одна связанная мода с экспоненциальным усилением и другая мода с экспоненциальными потерями. Так как оптический фонон сильно затухает, мода с экспоненциальным усилением имеет преимущественно характер стоксова излучения. Если величинами A_v^* или $v_{gr}\,\partial A_v^*/\partial z$ можно пренебречь по сравнению с членом затухания $A_v^*\tau_v^{-1}$, то значение

$$A_v^* = \frac{\tau_v}{2i\omega_v} N \left(\frac{\partial \alpha}{\partial Q}\right)^* A_L^* A_s \tag{40}$$

для устойчивого состояния может быть подставлено прямо в уравнение для A_s. Стоксова волна с экспоненциально нарастающей амплитудой получается, если

$$\pi \frac{\omega_s}{\omega_v} N^2 \left(\frac{\partial \alpha}{\partial Q}\right)^2 |\mathbf{E}_L|^2 \tau_v \gg \tau_s^{-1}. \tag{41}$$

Левая часть (41) представляет собой коэффициент усиления комбинационного рассеяния, правая часть (41) — постоянную амплитудного затухания стоксовой моды в стоксовом резонаторе, вызываемого потерями на отражение и рассеяние. Коэффициент усиления во времени или в пространстве

может быть приравнен коэффициенту усиления комбинационного рассеяния g_s, выраженному через комбинационную восприимчивость или сечение спонтанного комбинационного рассеяния. Отсюда находим выражение для комбинационной восприимчивости, исходя из классической модели для комбинационного рассеяния:

$$\chi''_{\text{комб}} = -N^2 \left(\frac{\partial\alpha}{\partial Q}\right)^2 \frac{\tau_v}{2\omega_v} . \tag{42}$$

Генерация антистоксова излучения в этой модели может быть получена при рассмотрении следующих четырех волн: лазерной волны, оптического фонона, стоксовой и антистоксовой волн, удовлетворяющих условиям сохранения энергии и импульса

$$\begin{aligned} \omega_v &= \omega_L - \omega_s = \omega_{as} - \omega_L, \\ \mathbf{k}_v &= \mathbf{k}_L - \mathbf{k}_s = \mathbf{k}_{as} - \mathbf{k}_L. \end{aligned} \tag{43}$$

В параметрическом приближении лазерная волна устраняется, если рассматривать лазерное поле как фиксированный параметр. Оптический фонон может быть исключен из связанных уравнений, так как его групповая скорость близка к нулю и так как он сильно затухает. Таким путем получаем два уравнения для связанных стоксовой и антистоксовой волн, которые снова приводят к коэффициенту усиления (25). Таким образом, эти два подхода эквивалентны, если речь идет о вынужденном комбинационном рассеянии. Следует помнить, что комбинационное рассеяние не всегда связано с колебательным возбуждением. Оно могло бы быть связано с электронным возбуждением, в этом случае вместо оптического фонона следует рассмотреть экситонную волну. Или оно могло бы быть связано с вращательным возбуждением. В этом случае следовало бы рассмотреть «вращательную волну» и т. д. Вынужденное рассеяние Мандельштама — Бриллюэна и вынужденное рассеяние крыла линии Рэлея могут быть рассмотрены подобным же образом. Таким способом можно описать и взаимодействие между световыми волнами и любым другим когерентным возбуждением или бозонной волной, и, казалось бы, очень различные физические явления могут обсуждаться с общей точки зрения.

2. Вынужденное рассеяние Мандельштама — Бриллюэна

В этом случае роль оптического фонона принимает на себя акустический фонон [80–82]. Главное различие состоит в дисперсионных характеристиках акустической и оптической ветвей, как это показано на рис. 24. Когда используется соотношение $\omega_{ac} = |k_{ac}|\, v_{ac}$, условия сохранения импульса и энергии

$$\mathbf{k}_B = \mathbf{k}_L - \mathbf{k}_{ac}, \quad \omega_B = \omega_L - \omega_{ac} \tag{44}$$

требуют, чтобы частота излучения Мандельштама — Бриллюэна изменялась в зависимости от угла рассеяния θ:

$$\omega_B - \omega_L = 2\omega_L \frac{n v_{ac}}{c} \sin\frac{\theta}{2} . \tag{45}$$

Это соотношение действительно для изотропной среды. В анизотропных кристаллах может быть рассеяние Мандельштама — Бриллюэна вперед с изменением частоты. Постоянная связи между световыми и акустическими волнами связана с фотоупругим эффектом и получается из усредненной по времени энергии взаимодействия:

$$U_{\text{вз}} = p_{ijkl}\, E_{L,i}\, E^*_{B,j}\, \sigma^*_{kl} + \text{к. с.}, \tag{46}$$

где σ_{kl} — акустическая деформация, p_{ijkl} — компонента фотоупругого тензора. Когда лазерное поле рассматривается как постоянный параметр, можно получить снова два линеаризованных связанных уравнения для мандельштам-бриллюэновской световой волны $E_B = A_B \exp[i(\mathbf{k}_L - \mathbf{k}_{ac})\mathbf{r} - i(\omega_L - \omega_{ac})t]$ и акустической волны с деформацией σ^*. Ниже записаны уравнения для изотропной жидкости [83], когда допускается лишь изменение плотности $\sigma = \Delta\rho/\rho_0$. В этом случае упруго-оптическая постоянная равна $\rho_0\, \partial\varepsilon/\partial\rho$, где используется изменение диэлектрической постоянной при постоянной энтропии. Уравнение акустической волны с вязким трением может быть написано в виде

$$\rho_0 \frac{\partial^2\sigma^*}{\partial t^2} - v_{ac}^2 \rho_0 \nabla^2 \sigma^* + \frac{\rho_0}{\tau_{ac}} \frac{\partial\sigma^*}{\partial t} = \rho_0 \frac{\partial\varepsilon}{\partial\rho} \nabla^2 (E_B E_L^*), \tag{47}$$

где τ_{ac} — характеристическое время затухания для акустической волны. Волновое уравнение для мандельштам-бриллюэновской световой волны имеет вид

$$\nabla^2 E_B - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} [\varepsilon(\omega_B) E_B] = \frac{4\pi}{c^2} \rho_0 \frac{\partial\varepsilon}{\partial\rho} \frac{\partial^2}{\partial t^2} (E_L \sigma^*). \tag{48}$$

Эту систему уравнений можно снова свести к системе уравнений для связанных амплитуд. Одна связанная мода имеет экспоненциальные потери, другая мода — экспоненциальный рост. Для коэффициента усиления бегущей мандельштам-бриллюэновской световой волны на частоте ω_B в установившемся состоянии получаем

$$g_B = 4\pi\omega_B \frac{\left[\rho_0 \left(\frac{\partial\varepsilon}{\partial\rho}\right)_s\right]^2 \omega_{ac}\tau_{ac}}{\varepsilon_s^{1/2} c \rho_0 \left(\frac{\partial p}{\partial\rho}\right)_s} |\mathbf{E}_L|^2. \tag{49}$$

Мы выразили скорость звука v_{ac} через адиабатическую сжимаемость $\partial p/\partial\rho$. Выражение для установившегося состояния в экспериментальных условиях иногда не приложимо, поскольку часто важны явления, связанные с распространением звука, и переходные эффекты [82-84]. Вынужденное рассеяние Мандельштама — Бриллюэна назад наблюдалось в твердых телах, жидкостях и газах. В самофокусирующих жидкостях порог для рассеяния Мандельштама — Бриллюэна совпадает с порогом вынужденного комбинационного рассеяния [85]. Он не связан с фотоупругими свойствами и затуханием звука в этих жидкостях. Порог определяется образованием нити самофокусировки. В других жидкостях и в газах при высоких давлениях вынужденное рассеяние Мандельштама — Бриллюэна часто представляет собой оптическую нелинейность, которая развивается первой. Это хорошо коррелирует с акустическими постоянными в этих газах. Рассеяние обычно наблюдается в обратном направлении, но может быть также получено в оптическом резонаторе под прямым углом к лазерному возбуждающему лучу. Сдвиг частоты Мандельштама — Бриллюэна может быть точно измерен с помощью оптического инструмента высокой разрешающей силы. Пример спектра показан на рис. 9. Обсуждение огромного количества экспериментальных данных по вынужденному рассеянию Мандельштама — Бриллюэна выходит за рамки этого обзора.

3. Вынужденное неупругое рэлеевское рассеяние

Этот процесс можно рассматривать как параметрическое взаимодействие между рэлеевской рассеянной световой волной и фурье-компонентой функции распределения $f(\theta)$, введенной в гл. IV. Последняя характеризуется частотой $\omega_L - \omega_R$ и волновым вектором $\mathbf{k}_L - \mathbf{k}_R$ и может быть

названа ориентационной волной. Так как трансляционная диффузия молекул в течение времени между вращательными столкновениями τ_c пренебрежимо мала, эта ориентационная волна не распространяется. Она наводится изменяющимся механическим моментом, который действует на анизотропные молекулы в положении $\mathbf{r}$ в присутствии двух световых волн:

$$J = -\frac{1}{2}(\alpha_{\parallel} - \alpha_{\perp}) \sin\theta \cos\theta E_L E_R^* \exp[i(\mathbf{k}_L - \mathbf{k}_R)\mathbf{r} - i(\omega_L - \omega_R)t]. \quad (50)$$

Можно было бы записать систему связанных уравнений для ориентационной волны и рэлеевской волны. Как и в вынужденном комбинационном рассеянии, находится мода с экспоненциальным усилением. Коэффициент усиления одинаков с найденным в предыдущем обсуждении коэффициентом усиления вынужденного рассеяния крыла линии Рэлея.

4. Вынужденное упругое рэлеевское рассеяние

Каждый вид спонтанного рассеяния имеет в принципе свой вынужденный аналог. Хорошо известно, что частотный спектр рассеянного света в жидкостях представляет собой три резкие линии на широком фоне неупругого рассеяния. Две из них — это линии Мандельштама — Бриллюэна, тогда как резкая линия в центре с ничтожно малым частотным сдвигом вызвана флуктуациями температуры (или энтропии) в жидкости. Это рассеяние порождает присущая показателю преломления температурная зависимость (при постоянной плотности) [63, 87–91]. Вынужденный аналог состоит в параметрическом связывании температурного возмущения или «волны» и рассеянной волны с почти такой же частотой, что и падающий лазерный свет. Количество тепла, выделяющееся в единице объема при одновременном присутствии двух световых волн, равно

$$dQ = T\frac{\partial\varepsilon}{\partial T} E_L E_L'^*. \quad (51)$$

Этот осциллирующий тепловой источник порождает «температурную волну»

$$c_v \frac{\partial(\Delta T)}{\partial t} = \nabla\{\varkappa\nabla(T)\} + T_0\left(\frac{\partial\varepsilon}{\partial T}\right)_{T_0} E_L E_L'^*; \quad (52)$$

здесь T_0 — равновесная температура окружающего вещества, c_v — теплоемкость при постоянном объеме, $\varkappa$ — коэффициент теплопроводности. Температурная волна с амплитудой ΔT подчиняется уравнению диффузии с нелинейным источником. Упруго рассеянная рэлеевская волна вызывается периодическими изменениями температуры согласно уравнению

$$-\nabla^2 E_L'^* + \frac{\varepsilon}{c^2}\frac{\partial^2 E_L'^*}{\partial t^2} = -\frac{1}{c^2}\left(\frac{\partial\varepsilon}{\partial T}\right)_{T_0}\frac{\partial^2}{\partial t^2}(E_L^*\Delta T). \quad (53)$$

Линейная система связанных уравнений для $E_L'^*$ и ΔT может быть решена тем же способом, как уже обсуждавшиеся вынужденные рассеяния Мандельштама — Бриллюэна и комбинационное. Вынужденное упругое рэлеевское рассеяние не установлено экспериментально *). Его трудно

) Вынужденное температурное (энтропийное) рассеяние света, о котором здесь говорится, было обнаружено экспериментально в жидкостях Зайцевым, Кызыласовым, Старуновым и Фабелинским [132] и в газах Машем, Морозовым, Старуновым и Фабелинским [133*]. Теория явления развита Старуновым [134*]. (*Прим. ред.*)

отличить от случайно отраженного лазерного света, и вполне возможно, что его порог значительно выше, чем для вынужденного рассеяния Мандельштама — Бриллюэна. Хотя спонтанно рассеянный рэлеевский свет имеет достаточно высокую интенсивность, его спектральная ширина очень узка. Когда используется мощный лазерный импульс с короткой длительностью τ_p, рэлеевский максимум размазывается по частотному интервалу, равному по крайней мере $2\pi\tau^{-1}$. Является также неопределенным, устанавливается ли в течение таких коротких временных интервалов в каждом элементе объема полное тепловое равновесие и можно ли использовать значение $\partial\varepsilon/\partial T$ из стационарных измерений [90, 91]. Процессы поглощения света, связанные с мнимой частью ε'', могут еще больше усложнить картину. Они также приводили бы к тепловым возбуждениям, которые нарастали бы во времени пропорционально интегральной лазерной мощности *).

5. Связь световых волн с другими волнами возбуждения

Дальнейшие примеры такой же общей теоретической картины дает связь света с плазменными волнами [92–95] и спиновыми волнами [96]. Основной процесс вновь состоит в аннигиляции кванта лазерной частоты и создании кванта на частоте плазменной или спиновой волны и фотона разностной частоты. Это — стоксова частота. Антистоксовы компоненты могли бы также генерироваться таким же образом, как и при вынужденном комбинационном рассеянии. При рассеянии света спиновыми волнами проявляется комбинационный переход между двумя зеемановскими спиновыми уровнями. Постоянная нелинейной связи в этом процессе обусловлена спин-орбитальной связью и обменными взаимодействиями возбужденных состояний парамагнитных ионов. Нелинейная связь с плазменными волнами в основном происходит через лоренцеву силу. Скорость электронов модулируется в поперечном направлении электрической компонентой светового поля. Тогда векторное произведение с с магнитной компонентой другой световой волны на частоте $\omega_L - \omega_p$ создает продольное изменение скорости и плотности электронов на плазменной частоте ω_p.

Рассмотрение как этих механизмов связывания, так и других, имеющих место в различных веществах [97], выходит за рамки обзора. Связь с поляронами в ионных кристаллах на инфракрасных частотах [98, 99] и с уровнями Ландау здесь также не будет обсуждаться [100, 101]. Порог для этих процессов рассеяния обычно выше, чем для колебательного комбинационного рассеяния или рассеяния Мандельштама — Бриллюэна, поэтому, видимо, трудно получить их вынужденные аналоги. Теоретически следовало бы даже ожидать связи световых волн со вторым звуком в жидком гелии, хотя изменение поляризуемости гелиевых атомов с температурой было бы чрезвычайно малым и не обещало бы много для экспериментального исследования.

Спонтанное рассеяние света обещает быть более плодотворным при исследовании дисперсионных характеристик различных возбуждений. Хотя мы показали и обсудили лишь связь этих возбуждений со светом, они часто более сильно связаны друг с другом. Спиновые волны могут быть, например, сильно связаны с фононами через магнитоупругий

) Вынужденное рассеяние, обусловленное сильным поглощением света, экспериментально обнаружено в жидкостях Рэнком, Чо, Фольтцем и Виггинсом [135] и в газах Виггинсом, Чо, Дитцем и Фольтцем [136*]. Теория явления развита Германом и Греем [137*]. (*Прим. ред.*)

эффект. В этом случае следует сказать, что свет рассеивается на смешанной магнон-фононной моде. Плазмоны, т. е. флуктуации электронной плотности, в полупроводниковых материалах также сильно связаны с акустическими волнами. Тепловые флуктуации, разумеется, связаны с акустическими волнами через механизм теплового расширения.

Для вынужденных, генерирующих процессов важно знать, какая нестабильность будет развиваться первой при данных экспериментальных условиях. Обычно сначала развивается самофокусировка, вынужденное рассеяние Мандельштама — Бриллюэна или вынужденное комбинационное рассеяние на симметричном колебании. С помощью усилительного устройства, в который попадает не только свет накачки, но также и стоксов свет, нелинейность со слабой связью могла бы быть в принципе измерена. В эксперименте часто трудно обеспечить в первую очередь подходящий световой вход на двух или более частотах. Так как вынужденный эффект требует высокой интенсивности накачки, которая доступна лишь в лазерах с модулированной добротностью, дополнительный световой вход должен быть синхронизирован с накачкой и иметь достаточно высокую интенсивность.

Иногда могут наблюдаться одновременно два или более вынужденных процесса. Это происходит, когда их постоянные нелинейной связи не слишком различны и все процессы могут возбуждаться лазерным импульсом. Конкуренция между различными нелинейностями хорошо иллюстрируется в жидкостях с анизотропными молекулами, где самофокусировка предшествует вынужденному рассеянию Мандельштама — Бриллюэна и и комбинационному рассеянию. В других веществах иногда наинизший порог имеет вынужденное рассеяние Мандельштама — Бриллюэна, а иногда — комбинационный колебательный переход. В газообразном водороде при очень высоких давлениях было бы преобладающим вынужденное рассеяние Мандельштама — Бриллюэна, но при низком давлении предпочтительней комбинационный переход (см. рис. 23). Это следует из различной зависимости коэффициента усиления от плотности.

VII. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Каждое спонтанное рассеяние света имеет в принципе вынужденный аналог. В световых волнах высокой интенсивности большое значение играют относительные фазы и может генерироваться много новых составных частот. Вынужденное комбинационное рассеяние успешно используется для получения лазерных когерентных световых пучков на разнообразных новых частотах.

Спектроскопическая информация, которая может быть получена из вынужденных процессов, очень ограничена по сравнению с информацией, получаемой из спонтанного рассеяния. Это присуще природе бозонной статистики. Если при вынужденном процессе появилась бозонная волна, она будет продолжать расти и все более эффективно конкурировать с другими процессами рассеяния. Тем не менее интенсивность и временнóй масштаб вынужденного комбинационного рассеяния могут сделать его полезным в определенных спектроскопических приложениях. Примером служат результаты по колебательному переходу Q (1) в газообразном водороде [102]. Частотный сдвиг и ширина линии как функция температуры, плотности и столкновений с посторонним газом могут быть измерены более точно и намного быстрее с помощью вынужденного процесса. Одна экспозиция для получения линии вынужденного комбинационного рассеяния длится лишь 10^{-8} *сек* вместо дня при фотографической регистрации спонтанного комбинационного рассеяния от газа. Переходные релакса-

ционные процессы могут быть также изучены в масштабе времени между 10^{-8} и 10^{-12} *сек*.

Во многих жидкостях с анизотропными молекулами преобладающей оптической нелинейностью является самофокусировка, обусловленная квадратичным эффектом Керра. Образуются световые нити с чрезвычайно высокой интенсивностью, соответствующей амплитудам световых полей вплоть до 10^8 *в/см*, при этом возбуждаются многие другие нелинейные процессы. Ситуация в других жидкостях, которые явно не самофокусирующие, совершенно не ясна. Часто вынужденное рассеяние Мандельштама — Бриллюэна имеет наинизший порог. Вероятно, что самофокусировка может вызываться электрострикцией или температурными флуктуациями. Эти эффекты могут также играть роль в кристаллах, где переориентация молекул исключена. Вынужденное комбинационное излучение наблюдалось в кальците, алмазе и сере, а также в кварце при очень низкой температуре. Конкуренция с другими нелинейными процессами совершенно не понята.

Имеется общая теоретическая схема, в рамках которой удается понять многие из тех нелинейных явлений, которые уже были наблюдены экспериментально. Для количественного понимания различных процессов, одним из которых является вынужденное комбинационное рассеяние, существенную роль играет тщательный контроль экспериментальных условий, который может быть проведен, если используются усилительные кюветы. Природа различных переходных явлений, которые имеют место в световых импульсах с чрезвычайно высокими плотностями потока, превышающими 10^{12} *вт·см*$^{-2}$ *сек*, пока еще не выяснена. В итоге эти процессы приводят к механическому и электрическому пробою вещества. Искажение структуры очень интенсивных световых лучей и их последующее рассеяние через каскад нелинейных процессов является интересной темой, которая значительно шире проблемы вынужденного комбинационного рассеяния.

ПРИЛОЖЕНИЕ
(Исторический очерк)

Расположение материала в обзоре не всегда следовало историческому развитию темы, а цитируемая литература ни в коей мере не исчерпывающая; приведены лишь работы, имеющие непосредственное отношение к тексту. В приводимом ниже историческом добавлении мы критически рассмотрим все опубликованные работы на указанную тему. Эта задача, очевидно, не совместима с целью учебного обзора.

В нижеследующих заметках указаны те труды, которые, по мнению автора, имели особое значение для развития работ в области вынужденного комбинационного рассеяния света. Это с необходимостью вносит некоторую субъективность, и заинтересованный читатель должен дополнить эти заметки тщательным анализом всех оригинальных цитируемых работ. Хронологические даты, которые даются в этом приложении, относятся к датам поступления работ в редакцию. При таком подходе исключается дискриминация из-за задержки при публикации обширных статей, писем в редакцию и переводов. В случае трудов конференций в качестве даты поступления взята дата конференции.

Стимулами развития области вынужденного комбинационного излучения послужили следующие факторы:

1) Обширное знание процессов спонтанного комбинационного рассеяния [1–5].

2) Обширное знание нелинейных процессов в радио- и микроволновой спектроскопии, включающее теорию параметрических взаимодействий на этих низких частотах [104–106].

3) Развитие мощных импульсных твердотельных лазеров [107].

Исследования в радио- и микроволновой спектроскопии неизбежно имеют дело с процессами вынужденного излучения и поглощения, так как вероятности спонтанных переходов слишком малы в этом диапазоне частот. Теория двухчастотного излучения обсуждается во многих книгах [104] и обзорных статьях [105]. Винтер [108] (июль 1958 г.) и Джаван [109] (июль 1958 г.) определенно указывают на вынужденное комбинационное рассеяние на низких частотах. Теория параметрических взаимодействий на низких частотах рассматривается, например, Луизеллом [106]. Пионерские усилия

в развитии импульсных лазеров высокой мощности сделали Мейман [8] и Хеллуарс [9, 10]. Положение в вынужденном комбинационном рассеянии до июля 1964 г. отражено в монографии [17], а более недавние достижения рассмотрены Минком, Терхьюном и Вангом [18].

После этих предварительных замечаний мы останавливаем внимание на 1962 г., когда Вудбери и Нг [7] открыли, довольно случайно, вынужденное комбинационное *рассеяние на оптических частотах* (сентябрь 1962 г.). Открытие было доложено Вудбери на 3-й Международной конференции по квантовой электронике в Париже (февраль 1963 г.). При исследовании рубинового лазера с модулированной добротностью, используя в оптическом резонаторе ячейку Керра с нитробензолом, они обнаружили, что при высоких возбуждениях рубина интенсивность рубинового красного света уменьшалась, вместо того чтобы возрастать. Тщательное экспериментальное исследование показало, что имеет место сильное излучение в инфракрасной области спектра. Хеллуарс [12] (октябрь 1962 г.) правильно интерпретировал этот эффект как вынужденное комбинационное рассеяние (это описано во введении). Вскоре после этого Экардт и другие [13] нашли во многих жидкостях несколько порядков стоксовых линий (октябрь 1962). Геллер и другие [15] нашли этот эффект также в нескольких кристаллах (август 1963 г.), а Минк, Терхьюн и Радо [14] — в *газообразном водороде* (сентябрь 1963 г.).

Теорию взаимодействия между четырьмя световыми волнами уже раньше разработали Армстронг, Бломберген, Дьюкинг и Першан [20] (март 1962 г.). Их уравнения (4) — (12) идентичны основным уравнениям (13) этой статьи. Они приложили теорию поляризации, кубичной по амплитудам светового поля, в частности, к случаю генерации третьей гармоники и указали также на существование зависящего от интенсивности показателя преломления и его связь с квадратичным эффектом Керра. Они подчеркнули также важность согласования импульсов для четырех световых волн. Хотя обсуждение в этой работе ограничено действительными восприимчивостями, его применимость к вынужденному комбинационному рассеянию при введении мнимых частей была отмечена автором [24] в октябре 1962 г. [110]. Подробное вычисление комплексной комбинационной восприимчивости для общей квантовомеханической системы в общих чертах появилось в феврале 1963 г. на упомянутой выше конференции в Париже [25].

Было понято и точно установлено, что существует общая схема, внутри которой можно объяснить все когерентные и интерференционные эффекты взаимодействия *световых волн, включая как параметрические взаимодействия, так и взаимодействия* комбинационного типа. На той же конференции Цайгер и Танненвальд [111] рассмотрели теорию вынужденного комбинационного рассеяния, которая подобна описанию, данному Хеллуарсом. В апреле 1963 г. Терхьюн [112] открыл антистоксовы конусы. Он правильно интерпретировал их [113], исходя из взаимодействия между лазерной, стоксовой и антистоксовой волнами при условии сохранения импульса $\mathbf{k}_{as} + \mathbf{k}_s = 2\mathbf{k}_L$. Лаудон [78] (май 1963 г.) рассмотрел вынужденное комбинационное рассеяние в кристаллах, приняв во внимание взаимодействие между лазерной и стоксовой волной и оптическим фононным возбуждением. Таунс с сотрудниками [79, 80] (июль и август 1963 г.) уделили особое внимание когерентным колебаниям, применив классическую модель, использованную в гл. V этой статьи. Цайгер и другие [114] также рассмотрели генерацию *антистоксова излучения*, исходя из связи с фононами. Соотношение этих рассмотрений с идеей о световых волнах, связанных общими комплексными нелинейными восприимчивостями, проанализировано Бломбергеном и Шеном [30] (апрель 1964 г.), *которые также показали, что экспоненциальный рост антистоксовой интенсивности* имеет место при не равных нулю значениях Δk. Хеллуарс [115] (январь 1964 г.) также рассмотрел фазовые соотношения между связанными электромагнитными модами.

Тем временем было написано несколько работ по общему вычислению восприимчивостей комбинационного типа (Бломберген и Шен [27] (июль 1963 г.); Джаван [28] (август 1963 г.), Файн и Яшин [29] (июль 1963 г.). Многие авторы [19, 116–121] применяли формализм связанных волн для описания вынужденного комбинационного рассеяния. Стойчев (август 1963 г.) нашел аномальное частотное уширение стоксовых и антистоксовых компонент [46, 47], вынужденное поглощение [69] на частоте ω_{as} и совместно с Чиао [64] сделал первое точное измерение антистоксовых углов (март 1964 г.).

Вынужденное рассеяние Мандельштама — Бриллюэна было рассмотрено впервые Таунсом с сотрудниками [80] (август 1963 г.) и экспериментально наблюдено также ими [81] (апрель 1964 г.).

Вынужденное крыло линии рэлеевского рассеяния было впервые найдено и исследовано Фабелинским с сотрудниками [44] (май 1965 г.). Идея зависящего от интенсивности показателя преломления из-за переориентации молекул была предложена еще до создания лазеров Бакингемом [41] (1956) и рассмотрена Пикарой и Килихом [42] (1958, 1963). Экспериментально эффект был получен Жиром и Мейером [23] (февраль 1964 г.) и Мейкером и другими [122] (апрель 1964 г.).

Возможность самофокусировки света из-за флуктуаций плотности в плазме была указана Аскарьяном [123] (декабрь 1961 г.) и в дальнейшем исследована Талановым [124]

(май 1964 г.). Независимое исследование Чиао, Гармайр и Таунса [35] (август 1964 г.) установило количественное условие для самоканализации света и связь этого явления с зависящим от интенсивности показателем преломления и электрострикцией. Первое экспериментальное наблюдение нитей самофокусировки сделал Херчер [125] (апрель 1964 г.) при исследовании разрушения, вызываемого сфокусированным лазерным лучом в стекле, хотя он не интерпретировал их указанным выше образом. Нити в жидкостях наблюдали Пилипецкий и Рустамов [38] (май 1965 г.) и Бре и Мейер [58] (июль 1965 г.).

Указания на аномальное усиление в вынужденном комбинационном рассеянии пришли из измерений Мак-Кланга и сотрудников [126], Бре[57, 58] и Мейера и особенно из измерений с комбинационным усилителем, выполненных Лаллемандом [59]. Возможное объяснение этих аномалий на основе существования горячих нитей предложили несколько авторов [53, 127, 128]. Гармайр [48] сделала некоторые предположения об областях самофокусировки, чтобы объяснить аномальные антистоксовы конусы класса II. Ситуация ко времени конференции по квантовой электроники, состоявшейся в июне 1965 г. в Пуэрто-Рико, была, таким образом, довольно любопытной. Возможность самофокусировки света была четко установлена, нити наблюдали в нескольких случаях и возможность с их помощью объяснить аномалии в вынужденном комбинационном рассеянии была также осознана. Все же у участников конференции было общее чувство, что аномалии все еще не объяснены, так как нити не наблюдались в других образцах, которые обнаруживали аномалии в вынужденном комбинационном рассеянии, так как подробный механизм их начального образования не был выяснен и так как Мак-Кланг [126] показал, что эти аномалии также имели место, если подающий лазерный луч был с высокой точностью одномодовым.

Вскоре после этого указанные трудности были разрешены. Лаллеманд [56, 129] (октябрь 1965 г.) сумел сфотографировать яркие нити в жидкостях, дающих вынужденное комбинационное рассеяние, хотя основная часть лазерного луча не принимала участия в их образовании. Хошекорн и Майер [54] и Лаллеманд и Бломберген [56] независимо установили связь между квадратичным эффектом Керра и образованием интенсивных нитей и аномальным усилением. Выполненные последними авторами эксперименты с использованием двух отдельных последовательных кювет, так же как и эксперименты Шена и Шахама [55], четко отделили природу аномалий от собственно вынужденного комбинационного рассеяния. Таланов [34, 124] и Келли[36] дали количественную формулу для длин самофокусировки. Бломберген и Лаллеманд [43] связали также аномальное спектральное уширение с квадратичным эффектом Керра и вынужденным крылом линии Рэлея. Все это открыло путь для более детальных исследований нитевой структуры. Все данные по вынужденному комбинационному (и мандельштам-бриллюэновскому) рассеянию, полученные раньше 1966 г., в которых игнорировалась возможность нитевой структуры, должны были быть заново истолкованы и проверены в связи с существенным влиянием самофокусировки на другие нелинейные явления. Это было сделано довольно быстро многими авторами [130, 131].

В этом обзоре наше внимание было сосредоточено на тех аспектах исторического развития, которые имеют непосредственное отношение к вынужденному комбинационному рассеянию. При этом серьезном ограничении не удается воздать должное многим параллельным достижениям в близких областях. То, что в этих исторических заметках отсутствует упоминание об открытии Кайзером и Гарреттом [22] еще в 1961 г. процесса двухфотонного поглощения, является ярким примером произвола, заключающегося в решении писать только о том, «что имеет лишь самое непосредственное отношение к этому предмету». Мы могли бы также упомянуть раннюю работу Терхьюна о генерации третьей гармоники [21], работы о нестабильностях лазерных лучей, создаваемых тепловым поглощением и ионизацией, теоретические достижения в области физики плазмы и т. д. Однако можно надеяться, что обзор окажется полезен, несмотря на эти ограничения, а, может быть, отчасти и благодаря им.

Гарвардский университет,
Кембридж, Массачусетс,
США

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. Г. Плачек, Релеевское рассеяние и раман-эффект, Харьков, ОНТИ, НКТП, Гос. Научно-техн. изд. Украины, 1935.
2. Ф. Кольрауш, Спектры комбинационного рассеяния, М., ИЛ, 1952.
3. S. Bhagavantam, Scattering of Light and the Raman Effect, Chemical Publishing Co., New York, 1942.
4. B. P. Stoicheff, Methods in Experimental Physics, vol. 3, Academic Press Inc., New York, 1962, стр. 11.
5. R. Loudon, Adv. Phys. 13, 423 (1964).
6. R. W. Hellwarth, Appl. Opt. 2, 847 (1963).

7. E. J. Woodbury, W. K. Ng, Proc. IRE **50**, 2347 (1962).
8. T. H. Maiman, Nature **187**, 493 (1960); Phys. Rev. **123**, 1145 (1961).
9. R. W. Hellwarth, Advances in Quantum Electronics (J. R. Singer, Ed.), Columbia University Press, New York, 1961, стр. 334.
10. F. J. McClung, R. W. Hellwarth, Proc. IEEE **51**, 46 (1963).
11. E. J. Woodbury, Proceedings of the Third International Conference on Quantum Electronics (P. Grivet, N. Bloembergen, Eds.) Dunod, Paris, 1964, стр. 1577.
12. R. W. Hellwarth, Phys. Rev. **130**, 1850 (1963).
13. G. Eckardt, R. W. Hellwarth, F. J. McClung, S. E. Schwartz, D. Weiner, E. J. Woodbury, Phys. Rev. Lett. **9**, 455 (1962).
14. R. W. Minck, R. W. Terhune, W. G. Rado, Appl. Phys. Lett. **3**, 181 (1963).
15. M. Geller, D. P. Bortfeld, W. R. Sooy, Appl. Phys. Lett. **3**, 36 (1963).
16. R. H. Dicke, Phys. Rev. **93**, 99 (1954).
17. Н. Бломберген, Нелинейная оптика, М., «Мир», 1966.
18. R. W. Minck, R. W. Terhune, C. C. Wang, Proc. IEEE **54**, 1357 (1966).
19. P. D. Maker, R. W. Terhune, Phys. Rev. **A137**, 801 (1965).
20. J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, P. S. Pershan, Phys. Rev. **127**, 1918 (1962).
21. P. D. Maker, R. W. Terhume, C. M. Savage, см. [11], стр. 1559.
22. G. C. Garrett, W. Kaiser, Phys. Lett. **7**, 229 (1961).
23. F. Gires, G. Mayer, Compt. Rend. **258**, 2039 (1964); M. Paillette Compt. Rend. **262**, 264 (1966).
24. N. Bloembergen, Proc. IEEE **51**, 124 (1963).
25. N. Bloembergen, см. [11], стр. 1501.
26. N. Bloembergen, Proceedings of the International School of Physics, Enrico Fermi, Course 31, Academic Press, New York, 1964, стр. 247.
27. N. Bloembergen, Y. R. Shen, Phys. Rev. **133**, A37 (1964).
28. A. Javan, см. [26], стр. 284.
29. В. М. Файн, Яшин, ЖЭТФ **46**, 695 (1964).
30. N. Bloembergen, Y. R. Shen, Phys. Rev. Lett. **12**, 504 (1964).
31. Y. R. Shen, N. Bloembergen, Phys. Rev. **137**, 1787 (1965).
32. R. Y. Chiao, P. L. Kelley, E. Garmire, Phys. Rev. Lett. **17**, 1158 (1966).
33. R. L. Carman, R. Y. Chiao, P. L. Kelley, Phys. Rev. Lett. **17**, 1281 (1966).
34. В. И. Беспалов, В. И. Таланов, Письма ЖЭТФ **3**, 471 (1966).
35. R. Y. Chiao, E. Garmire, C. H. Townes, Phys. Rev. Lett. **13**, 479 (1964).
36. P. L. Kelley, Phys. Rev. Lett. **15**, 1005 (1965).
37. C. C. Wang, Phys. Rev. Lett. **16**, 344 (1966).
38. Н. Ф. Пилипецкий, А. Р. Рустамов. Письма ЖЭТФ **2**, 88 (1965).
39. Proceedings of the 1966 International Quantum Electronics Conference, IEEE Journal of Quantum Electronics **8**, 190—298, 337—637 (1966).
40. H. G. Brewer, C. H. Townes, Phys. Rev. Lett. **18**, 196 (1967).
41. A. D. Buckingham, Proc. Phys. Soc. (London) **B69**, 344 (1956).
42. A. Piekara, S. Kielich, J. Chem. Phys. **29**, 1297 (1958).
43. N. Bloembergen, P. Lallemand, Phys. Rev. Lett. **16**, 81 (1966).
44. Д. И. Маш, В. В. Морозов, В. С. Старунов, И. Л. Фабелинский, Письма ЖЭТФ **2**, 41 (1965).
45. C. W. Cho, N. D. Foltz, D. H. Rank, T. A. Wiggins, Phys. Rev. Lett. **18**, 107 (1967).
46. B. P. Stoicheff, см. [26], стр. 306.
47. B. P. Stoicheff, Phys. Rev. Lett. **7**, 186 (1963).
48. E. Garmire, Physics of Quantum Electronics (P. L. Kelley, B. Lax and P. E. Tannenwald, Eds.), McGraw-Hill Book Co. Inc., New York, 1966, стр. 167.
49. P. Lallemand, Appl. Phys. Lett. **8**, 276 (1966).
50. R. V. Wick, D. H. Rank, T. A. Wiggins, Phys. Rev. Lett. **17**, 466 (1966).
51. R. J. Joenk, R. W. Landauer, Phys. Lett. **24A**, 228 (1967); F. De Martini, C. H. Townes, T. K. Gustafson, P. L. Kelley, Phys. Rev. **164**, 312 (1967); R. G. Brewer, Phys. Rev. Lett. **19**, 8 (1967); Y. Ueda, K. Shimoda, Japan J. Appl. Phys. **6**, 628 (1967).
52. N. Bloembergen, G. Bret, P. Lallemand, A. Pine, P. Simova, IEEE J. Quant. Electron. **3**, 197 (1967).
53. N. Bloembergen, P. Lallemand, см. [48], стр. 137.

54. G. Hauchecorene, G. Mayer, Compt. Rend. **261**, 4014 (1965).
55. Y. R. Shen, Y. J. Shaham, Phys. Rev. Lett. **15**, 1008 (1965).
56. P. Lallemand, N. Bloembergen, Phys. Rev. Lett. **15**, 1010 (1965).
57. G. Bret, Compt. Rend. **259**, 2991 (1964); **260**, 6323 (1965).
58. G. Bret, G. Mayer, см. [48], стр. 180.
59. P. Lallemand, N. Bloembergen, Appl. Phys. Lett. **6**, 210, 212 (1965).
60. C. C. Wang, Phys. Rev. Lett. **16**, 344 (1966).
61. R. W. Hellwarth, Phys. Rev. **152**, 156 (1966).
62. M. Maier, W. Kaiser, Phys. Lett. **21**, 529 (1966).
63. Y. R. Shen, Phys. Lett. **20**, 378 (1966).
64. R. Y. Chiao, B. P. Stoicheff, Phys. Rev. Lett. **12**, 290 (1964).
65. E. Garmire, Phys. Lett. **17**, 251 (1965).
66. K. Shimoda, J. Appl. Phys. Japan 5, 86, 615 (1966).
67. F. M. Johnson, J. A. Duardo, G. L. Clark, Appl. Phys. Lett. **10**, 157 (1967).
68. J. A. Duardo, L. J. Nugent, F. M. Johnson, J. Chem. Phys. (в печати).
69. W. J. Jones, B. P. Stoicheff, Phys. Rev. Lett. **13**, 657 (1964).
70. D. P. Bortfeld, W. E. Sooy, Appl. Phys. Lett. **7**, 283 (1965).
71. M. Maier, W. Kaiser, J. A. Giordmaine, Phys. Rev. Lett. **17**, 1275 (1966).
72. N. Bloembergen, P. Lallemand, см. [48], стр. 137.
73. C. C. Wang, Phys. Rev. **152**, 149 (1966).
74. D. H. Ciose, C. R. Guiliano, R. W. Hellwarth, L. D. Hess, F. J. McClung, W. G. Wagner, см. [39], стр. 553.
75. А. А. Чабан, Письма ЖЭТФ **3**, 52, 73 (1966).
76. Ю. П. Райзер, Письма ЖЭТФ **4**, 3, 124, 286 (1966).
77. R. W. Minck, E. E. Hagenlocker, W. G. Rado, Phys. Rev. Lett. **17**, 229 (1966).
78. R. Loudon, Proc. Phys. Soc. (London) **A82**, 393 (1963); Proc. Soy. Soc. (London) **A275**, 218 (1963).
79. E. Garmire, E. Pandarese, C. H. Townes, Phys. Rev. Lett. **11**, 160 (1963).
80. R. Y. Chiao, E. Garmire, C. H. Townes, см. [26], стр. 326.
81. R. Y. Chiao, B. P. Stoicheff, C. H. Townes, Phys. Rev. Lett. **12**, 592 (1964).
82. N. M. Kroll, J. Appl. Phys. **36**, 34 (1965).
83. E. E. Hagenlöcker, R. W. Minck, W. G. Rado, Phys. Rev. **154**, 226 (1967).
84. E. E. Hagenlöcker, W. G. Rado, Appl. Phys. Lett. **7**, 236 (1966).
85. A. S. Pine, Phys. Rev. **149**, 113 (1966).
86. См., например, [18, 39, 48].
87. K. A. Brueckner, S. Jorna, Phys. Rev. Lett. **17**, 78 (1966).
88. А. Г. Литвак, Письма ЖЭТФ **4**, 341 (1966).
89. Г. А. Аскарьян, Письма ЖЭТФ, **3**, 166 (1966).
90. Я. Б. Зельдович, Ю. П. Райзер, Письма ЖЭТФ **3**, 137 (1966).
91. С. А. Ахманов, А. П. Сухоруков, Р. В. Хохлов, ЖЭТФ **51**, 296 (1966).
92. N. M. Kroll, A. Ron, N. Rostoker, Phys. Rev. Lett. **13**, 83 (1964).
93. G. C. Comisar, Phys. Rev. **141**, 200 (1966).
94. N. Bloembergen, Y. R. Shen, Phys. Rev. **141**, 298 (1966).
95. См. [48], стр. 86, 105, 111, 119.
96. Y. R. Shen, N. Bloembergen, Phys. Rev. **143**, 372 (1966).
97. C. K. N. Patel, R. E. Slusher, P. A. Fleury, Phys. Rev. Lett. **17** 1011 (1966).
98. W. L. Faust, C. H. Henry, Phys. Lett. **17**, 1265 (1966).
99. D. A. Kleinman, Phys. Rev. 126, 1977 (1962).
100. P. A. Wolff, Phys. Rev. Lett. **16**, 225 (1966).
101. R. E. Slusher, C. K. N. Patel, F. A. Fleury, Phys. Rev. Lett. **18**, 77 (1967).
102. P. Lallemand, P. Simova, G. Bret, Phys. Rev. Lett. **17**, 1239 (1966).
103. С. А. Ахманов, А. П. Сухоруков, Письма ЖЭТФ 5, 108 (1967).
104. А. Абрагам, Ядерный магнетизм, М., ИЛ, 1963.
105. J. Weber, Rev. Mod. Phys. **31**, 681 (1959).
106. W. H. Louisell, Coupled Mode and Parametric Electronics, John Wiley and Sons Inc., New York, 1960.
107. B. A. Langyel, Introduction to Laser Physics, John Wiley and Sons Inc., New York, 1966.
108. J. M. Winter, J. Phys. et radium **19**, 802 (1958).
109. A. Javan, J. Phys. et radium **19**, 806 (1958).

110. В сентябре 1962 г. у автора был телефонный разговор с доктором М. Л. Ститчем из лаборатории Хью, который обратил его внимание на неопубликованные результаты Вудбери и Нга, и предложил, чтобы этот материал был представлен на 3-й Конференции по квантовой электронике, на которой автор был программным председателем. Это удалось осуществить, и автор смог разработать теорию эффекта в октябре 1962 г., прежде чем результаты Вудбери и Нга появились в печати.
111. H. J. Zeiger, P. E. Tannenwald, см. [11], стр. 1589.
112. R. W. Terhune, Bull. Am. Phys. Soc. 2, 8, 359 (1963).
113. R. W. Terhune, Solid State Design 4, 38 (1963).
114. H. J. Zeiger, P. E. Tannenwald, S. Kern, R. Herendeen, Phys. Rev. Lett. **11**, 419 (1963).
115. R. W. Hellwarth, Current Science (India) **33**, 129 (1964).
116. В. Т. Платоненко, Р. В. Хохлов, ЖЭТФ **46**, 555 (1964).
117. В. Т. Платоненко, Р. В. Хохлов, ЖЭТФ **46**, 2126 (1964).
118. Y. R. Shen, N. Bloembergen, Phys. Rev. **137A**, 1787 (1965).
119. C. Tang, T. Deutsch, Phys. Rev. **138**, A1 (1965).
120. H. Haus, P. Kelley, H. Zeiger, Phys. Rev. **138**, A690 (1965).
121. В. Т. Платоненко, Р. В. Хохлов, Оптика и спектроскопия **18**, 369 (1965).
122. R. D. Maker, R. W. Terhune, C. M. Savage, Phys. Rev. Lett. **12** 507 (1964).
123. Г. А. Аскарьян, ЖЭТФ **43**, 1104 (1962).
124. В. И. Таланов, Изв. вузов (Радиофизика) **7**, 564 (1964).
125. M. Hercher, J. Opt. Soc. Am. **54**, 563A (1964).
126. F. J. McClung, W. G. Wagner, D. Weiner, Phys. Rev. Lett. **15**, 96 (1965).
127. N. Bloembergen, Y. R. Shen, Phys. Rev. Lett. **13**, 720 (1965).
128. D. Weiner, S. E. Schwarz, F. J. McClung, J. Appl. Phys. **26**, 2395 (1965).
129. N. Bloembergen, P. Lallemand, Bull. Am. Phys. Soc. **10**, 1129 (1965).
130. См. [39], стр. 26—27, 67—68.
131. См. [18], стр. 78—81.

ЛИТЕРАТУРА, ДОБАВЛЕННАЯ ПРИ ПЕРЕВОДЕ

132*. Г. И. Зайцев, Ю. И. Кызыласов, В. С. Старунов, И. Л. Фабелинский, Письма ЖЭТФ **6**, 802, 1967.
133*. I. L. Fabelinskii, D. I. Mash, V. V. Morozov, V. S. Starunov, Phys. Lett. **A27**, 253 (1968).
134*. V. S. Starunov, Phys. Lett. **26** A, 428, 1968.
135*. D. H. Rank, C. W. Cho, N. D. Foltz, T. A. Wiggins, Phys. Rev. Lett. **19**, 828, 1967.
136*. T. A. Wiggins, C. W. Cho, D. R. Dietz, N. D. Foltz, Phys. Rev. Lett. **20**, 831, 1968.
137*. R. M. Herman, M. A. Gray, Phys. Rev. Lett. **19**, 824, 1967.