

УСПЕХИ ФИЗИЧЕСКИХ НАУК**НОБЕЛЕВСКИЕ ЛЕКЦИИ ПО ФИЗИКЕ 1981 ГОДА**

535.621.378.325

НЕЛИНЕЙНАЯ ОПТИКА И СПЕКТРОСКОПИЯ*)*Н. Бломберген*

Об истории создания мазеров и лазеров было рассказано в 1964 г. в Нобелевских лекциях Таунса¹, Басова² и Прохорова³. Они вкратце обрисовали эволюцию лазеров от их предшественников — твердотельных мазеров и молекулярных генераторов. Лазеры являются источниками когерентного света, характеризуемого высокой степенью монохроматичности, высокой направленностью и высокой интенсивностью, или яркостью. Чтобы проиллюстрировать последнее свойство, рассмотрим небольшой рубиновый лазер с объемом активного вещества 1 см³. В режиме модуляции добротности такой лазер может излучать около 10¹⁸ фотонов на длине волны 694 нм за время примерно 10⁻⁸ с. Поскольку расходимость пучка ограничена только дифракцией, его можно сфокусировать в пятно с площадью $\sim 10^{-6}$ см² и диаметром, равным примерно десяти длинам волн оптического излучения. В результате пиковое значение плотности мощности составляет 10¹³ Вт/см². В то время как 0,1 Дж — это небольшое количество энергии, равное, например, энергии, расходуемой стоваттной лампочкой за одну тысячную долю секунды, или теплу, выделяемому человеческим телом за то же время, плотность потока мощности в 10 ТВт/см² производит устрашающее впечатление. Это можно осознать, если заметить, что полная мощность всех электростанций на Земле составляет примерно один тераватт. (Приставка «тера» происходит от греческого *τερας* — чудовище, а не от латинского «terra»!) Действительно, из формулы для вектора Пойнтинга следует, что амплитуда поля световой волны в области фокального пятна достигает в этом случае 10⁸ В/см, что сравнимо с величиной электрического поля внутри атомов и молекул, ответственного за связывание валентных электронов. Последние при таких плотностях потока буквально вырываются из своих орбит за счет многофотонного туннельного процесса, и любое вещество будет превращено в высокоионизованную плотную плазму. Ясно, что обычное представление о линейном оптическом отклике (ему соответствует не зависящий от светового поля показатель преломления), т. е. представление о том, что индуцированная поляризация пропорциональна амплитуде светового поля, должно быть отброшено уже при значениях интенсивности намного меньших ее экстремальных значений. Связь поляризации и светового поля становится нелинейной;

*) Bloembergen N. Nonlinear Optics and Spectroscopy: Nobel Lecture, December 8, 1981.— Перевод К. Н. Драбовича.

© The Nobel Foundation 1982.

© Перевод на русский язык, издательство «Наука». Главная редакция физико-математической литературы, «Успехи физических наук», 1982.

поляризацию можно разложить в ряд по степеням компонент электрического поля

$$P_i = \chi_{ij}^{(1)} E_j + \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k + \chi_{ijkl}^{(3)} E_j E_k E_l + \dots \quad (1)$$

Нелинейности такого типа были хорошо известны в области низких частот на протяжении почти столетия. Например, инженеры-электрики и радиоинженеры знают то нелинейной связи между магнитным полем и индукцией $B = \mu(H) H$, имеющей место в трансформаторах и соленоидах, содержащих железо. Результатом этой нелинейности является искажение формы колебаний⁴. Нелинейные явления такого рода на оптических частотах совершенно поразительны. Их можно легко рассчитать, объединив нелинейное материальное уравнение (1) с уравнениями Максвелла. В первом десятилетии нашего столетия Лоренц⁵ вычислил $\chi^{(1)}$, исходя из модели, рассматривающей электрон как гармонический осциллятор. Если бы он допустил некоторую ангармоничность, то он мог бы развить некоторые представления нелинейной оптики еще семьдесят лет назад. Однако изучение нелинейных оптических явлений в то время было недоступно в экспериментальном плане, и Лоренцу не доставало стимула со стороны стимулированного испускания излучения.

Нелинейные эффекты существенны для работы лазеров. С помощью лазеров на красителях можно перекрыть непрерывным образом диапазон длин волн от 350 до 950 нм, включающий всю видимую область. Используя различные нелинейные процессы такие, как генерация гармоник, параметрическое преобразование частоты вниз и вынужденное комбинационное рассеяние, область действия источников когерентного излучения можно расширить как на весь инфракрасный диапазон, так и в область вакуумного ультрафиолета. Благодаря этому нелинейная лазерная спектроскопия смогла быстро развиваться в течение последних двух десятилетий. Развитию ее в значительной мере способствовали предшествующие исследования соответствующих явлений в радиочастотном диапазоне. Поэтому представляется уместным начать этот обзор с напоминания о некоторых нелинейных явлениях, впервые открытых в области магнитного резонанса.

НЕЛИНЕЙНЫЕ ПРЕДШЕСТВЕННИКИ ИЗ ОБЛАСТИ МАГНИТНОГО РЕЗОНАНСА

Будучи студентом профессора Э. М. Парселла в Гарвардском университете, я изучал релаксационные явления в ядерном магнитном резонансе в твердых телах, жидкостях и газах. Резонансное радиочастотное поле стремится выравнять населенности двух спиновых уровней, в то время как релаксационные процессы стремятся поддерживать разность населенностей, соответствующей бальмановскому распределению при температуре других степеней свободы в образце. Уменьшение разности населенностей называется насыщением. Последнее представляет собой нелинейное явление, так как величина восприимчивости имеет тенденцию к уменьшению с возрастанием амплитуды поля. В 1946 г. мы обнаружили, что в контуре неоднородно уширенной линии возможно «выжигание дырки», или, другими словами, можно получить провал, связанный с насыщением⁶. На рис. 1, а изображена линия протонного спинового резонанса в воде, уширенная за счет неоднородности поля использованного магнита. Рис. 1, б и в иллюстрируют насыщение определенного участка в распределении, которое в дальнейшем зондируется свипированием через резонанс слабого сигнала через различные интервалы времени. Скорость исчезновения дырки определяется временем спин-решеточной релаксации. Эти результаты явились также первым указанием на то, что линии ЯМР

в жидкости имеют чрезвычайно малую ширину, что обусловлено динамическим сужением (motional narrowing) — явлением, открытие которого послужило основой для разнообразных применений ЯМР-спектроскопии.

Если две пары уровней имеют один общий уровень, то насыщение одного из резонансов может сказываться на восприимчивости в области другого резонанса. Этот эффект впервые был наблюден для ЯМР в спиновых системах с квадрупольным расщеплением и квадрупольной релаксацией⁷. Детектирование резонансов Герца оптическими методами, описанное Кастлером⁸, является другим проявлением этого эффекта. Изменение населенностей подуровней с различными значениями магнитного квантового числа m_J , вызванное действием радиочастотного поля, приводит к изменению поляризации испущенного света. Эффект Оверхаузера⁹ отражает изменение населенностей ядерных спиновых уровней в металлах¹⁰, обусловленное действием микроволнового поля на электронный спиновый резонанс. Методы накачки как оптическим, так и микроволновым излучением использовались для получения мишеней с поляризованными ядерными спинами¹¹.

Оказывается, что имеется возможность поддерживать стационарную инверсную населенность, т. е. создать условия, когда уровень с большей энергией заселен сильнее, нежели другой уровень, лежащий ниже¹². Можно сказать, что в этом случае рассматриваемая пара уровней имеет отрицательную температуру. Такую систему можно получить, как это показано на рис. 2, при одновременном действии селективной по частоте накачки между парой несмежных уровней и соответствующего релаксационного механизма. Накачка стремится установить высокую температуру для пары уровней, разделенных большим частотным интервалом, тогда как релаксация поддерживает низкую температуру между парой уровней, более близких по частоте. Индуцированное испускание будет доминировать над поглощением на переходе между третьей парой уровней трехуровневой системы. Басов и Прохоров¹³ предложили механизм создания инверсии селективной по частоте накачкой для мазеров на молекулярных пучках, не вдаваясь при этом в подробное обсуждение релаксации.

Спиновые уровни парамагнитных ионов в кристаллах используются для получения мазерного действия в диапазоне СВЧ. Вынужденное излучение можно рассматривать как результат действия термодинамической тепловой машины¹⁴, у которой температура нагревателя определяется накачкой, а низкая температура резервуара — релаксацией. Эти две температуры имеют место в одном и том же элементе объема, в то время как в обычной тепловой машине нагреватель и холодильник, конечно, пространственно разделены. Проблема тепловой изоляции между парамагнитными спиновыми переходами базируется на разности частот и различии в скоростях релаксации. Этот вопрос был поставлен при изучении явлений кросс-релаксации¹⁵, которые определяют перенос тепла между различными частями спинового гамильтониана. Оказывается, что кон-

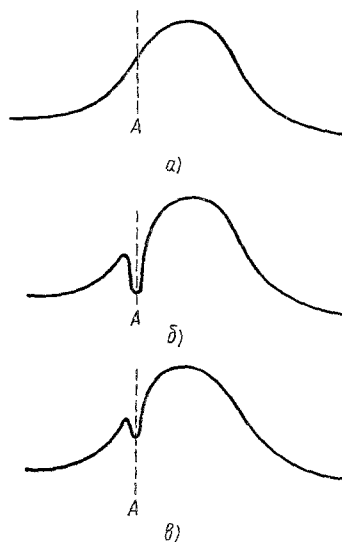


Рис. 1. а) Контур неоднородно уширенной линии ЯМР в воде; б) провал в неоднородном контуре, обусловленный насыщением (наблюден в 1946 г.); в) то же, что в б), но при большей задержке между сигналом накачки и пробным сигналом (по работе⁶).

центрированные парамагнитные соли нельзя использовать в лазерах, поскольку в них невозможно поддерживать большой перепад температур в системе магнитных уровней энергии. В качестве исторического курьеза могу добавить, что при разработке схемы накачки для меня величайшим препятствием был вопрос о том, как получить исчезающий матричный элемент перехода между несмежными уровнями. Конечно же, эта проблема

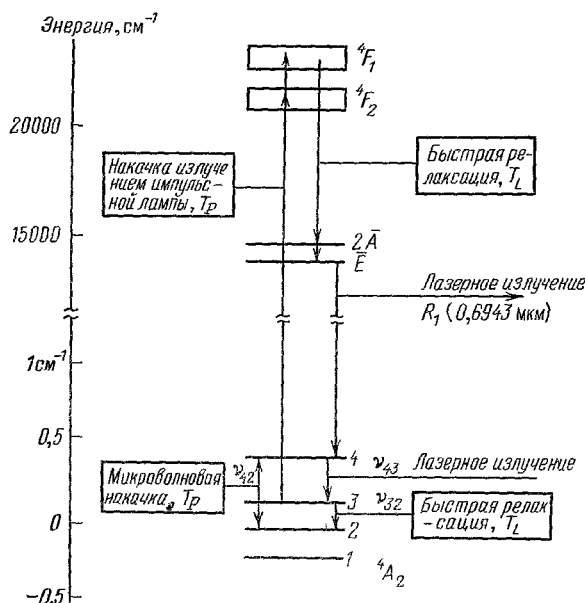


Рис. 2. Диаграмма уровней энергии иона Cr^{3+} в рубине. Масштаб по вертикали для уровней, участвующих в генерации микроволнового излучения и оптического лазерного излучения, различен.

решается использованием состояний, являющихся суперпозицией нескольких состояний с различными значениями магнитного квантового числа m_s . Этого можно достичь наложением внешнего магнитного поля под любым углом по отношению к оси потенциала внутрикристаллического поля. Многоуровневый парамагнитный твердотельный лазер можно использовать в качестве СВЧ-усилителя с чрезвычайно низким уровнем шумов. Такой лазер, базирующийся на уровнях энергии Cr^{3+} в рубине, был использован, например, Пензиасом и Уилсоном при регистрации космического фонового излучения¹⁶.

Тот же принцип был в дальнейшем использован и для получения усиливающих сред в большинстве лазеров. Он явился составной частью проекта оптического лазера, разработанного Шавловым и Таунсом¹⁷. Примечательно, что в первом действующем лазере, созданном Мейманом¹⁸, в качестве активной среды также использовались ионы Cr^{3+} в рубине. Конечно, в лазере и лазере рабочими являются различные наборы энергетических уровней. К тому же следует отметить еще и отличие шкалы частот в верхней и нижней части рис. 2. Амплитуда выходного излучения лазера, как и любого генератора с обратной связью, ограничивается нелинейностью характеристики. В данном случае нелинейность обусловлена насыщением под действием самого лазерного излучения, которое стремится выравнять населенности верхнего и нижнего уровней, участвующих в генерации.

НЕЛИНЕЙНАЯ ОПТИКА

С созданием различных типов лазеров наступил период быстрого развития исследований нелинейных оптических явлений. Эксперимент Франкена с сотрудниками по генерации второй гармоники излучения рубинового лазера в кристалле кварца ознаменовал собой рождение новой области — нелинейной оптики¹⁹. Простая схема установки, использованной в эксперименте Франкена, показана на рис. 3.

Нелинейная восприимчивость низшего порядка $\chi^{(2)}$, входящая в выражение (1), имеет ненулевые тензорные компоненты только в средах без центра инверсии. Поляризация, квадратичная по амплитуде поля, обуслов-

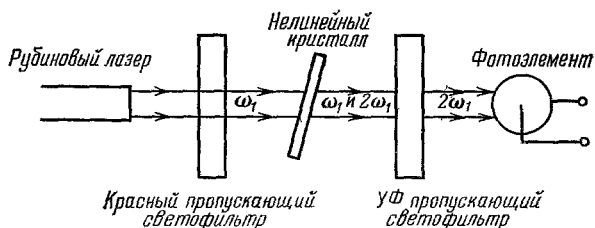


Рис. 3. Генерация второй гармоники световых волн.

ливает такие оптические явления, как генерация второй гармоники, генерация суммарных и разностных частот, а также эффект выпрямления света. Конечно, подобные свойства устройств с квадратичным откликом хорошо известны в радиотехнике. Например, ток фотоэлектрической эмиссии является квадратичной функцией амплитуд светового поля, и если на фотокатод падают два световых пучка, немного отличающиеся по частоте, то фототок оказывается промодулированным с разностной частотой.

Вообще, восприимчивость $\chi^{(2)}$ обеспечивает связь между тремя электромагнитными волнами. Каждая из волн характеризуется собственной частотой ω_i , волновым вектором \mathbf{k}_i , состоянием поляризации \mathbf{e}_i , а также комплексной амплитудой $E_i = A_i \exp(i\varphi_i)$. Точно так же восприимчивость $\chi^{(3)}$ обуславливает связь между четырьмя электромагнитными волнами. Общее рассмотрение процессов трех- и четырехволнового смешения оптических частот было проведено нашей группой в Гарвардском университете²¹. Вскоре были выполнены квантовомеханические расчеты комплексных нелинейных восприимчивостей, основанные на применении к оптическим задачам кинетических уравнений для матрицы плотности²². Результатом явилось обобщение дисперсионной формулы Крамерса — Гайзенберга. Нелинейные восприимчивости являются функциями нескольких частот и содержат не один резонансный знаменатель, а больше. Они представляют собой тензоры высших порядков, причем каждая компонента при наличии затухания имеет действительную и мнимую части. Эти восприимчивости описывают целый ряд разнообразных нелинейно-оптических эффектов. Одновременно с нами Ахманов и Хохлов²³ также распространили представления о нелинейных и параметрических явлениях из радиодиапазона на оптическую область.

Возвращаясь к вопросу о генерации второй оптической гармоники в прозрачных пьезоэлектрических кристаллах, следует сказать, что здесь самостоятельную проблему представляет согласование волновых векторов при преобразовании двух квантов основного излучения в один квант на частоте второй гармоники. Благодаря наличию частотной дисперсии обычно $\mathbf{k}_2 - 2\mathbf{k}_1 = \Delta\mathbf{k} \neq 0$. Различие фазовых скоростей волны поляризации

на частоте второй гармоники и свободно распространяющейся волны на частоте 2ω приводит к тому, что в нелинейном кристалле существуют две волны, имеющие частоту 2ω : одна — вынужденная с волновым вектором $\mathbf{k}_S = 2\mathbf{k}_1$ и вторая — свободная с волновым вектором $\mathbf{k}_T = \mathbf{k}_2$. Кроме того, имеется отраженная волна второй гармоники с волновым вектором \mathbf{k}_R . На рис. 4 изображена схема расположения волновых векторов в случае, когда нелинейный кристалл погружен в жидкость с большим значением линейного коэффициента преломления. Такая геометрия определяется

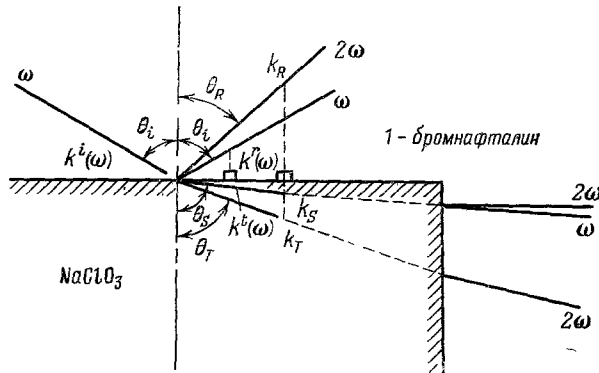


Рис. 4. Волновые векторы световых волн накачки и второй гармоники на границе кубического пьезоэлектрического кристалла, погруженного в жидкость с большим показателем преломления.

сохранением компонент импульса, параллельных поверхности ²⁴. Амплитуды свободных волн, являющихся решениями однородных волновых уравнений, находятся из условия непрерывности на границе тангенциальных компонент электрического и магнитного полей излучения второй гармоники. Такая очень простая процедура, основанная на сохранении компонент импульса на границе, позволяет обобщить на нелинейный случай

Таблица

Исторические даты открытия законов линейной и нелинейной оптики

| | Линейные | Нелинейные |
|---|-------------------------------------|-------------------------------|
| Закон отражения | I век н. э. (Герон Александрийский) | 1962 г. (Бломберген и Першан) |
| Закон преломления | 1621 г. (Снеллиус) | 1962 г. (Бломберген и Першан) |
| Интенсивность отраженного и преломленного света | 1823 г. (Френель) | 1962 г. (Бломберген и Першан) |
| Теория конической рефракции | 1833 г. (Гамильтон) | 1969 г. (Бломберген и Ши) |
| Эксперимент | 1833 г. (Ллойд) | 1977 г. (Шелл и Бломберген) |

хорошо известные оптические законы отражения и преломления ²⁴. Таблица иллюстрирует громадную разницу в темпах развития линейной и нелинейной оптики. Такое сжатие временной шкалы стало возможным, конечно, благодаря общей формулировке законов электромагнетизма, данной Максвеллом во второй половине девятнадцатого столетия. В своей доктор-

ской диссертации Лоренц²⁵ показал, каким образом из уравнений Максвелла получаются все законы линейной оптики — закон линейного отражения, описанный Героном Александрийским (первый век нашей эры), законы Снеллиуса (1621 г.) и формулы Френеля для интенсивностей и поляризации световых волн (1823 г.).

Геометрическая схема на рис. 4 указывает на то, что при увеличении угла падения θ_i должны иметь место нелинейные аналоги эффекта полного отражения и затухающих поверхностных волн. Действительно, все предсказания такого рода были подтверждены²⁶. В частности, нелинейная связь между поверхностными возбуждениями представляет значительный интерес и в настоящее время²⁷. В 1833 г. Гамильтон, которому предстояло три года спустя сформулировать гамильтонову механику, предсказал явление конической рефракции. При этом он исходил из уравнений Френеля для распространения света в двусосных оптических кристаллах. Экспериментальное подтверждение, полученное Ллойдом в том же году, рассматривалось как триумф уравнений Френеля, в которых свет рассматривался как колебания упругой среды. Временной интервал между предсказанием эффекта нелинейной конической рефракции и его экспериментальным подтверждением был, как видно из таблицы, намного больше²⁸. В двадцатом столетии законы распространения электромагнитных волн не вызывают сомнений, и большинство исследователей были слишком заняты более важными применениями лазерных лучей, чем проблема конической рефракции, представляющая, пожалуй, лишь академический интерес.

Параметрическую связь световых волн в непоглощающей среде можно рассматривать как перераспределение фотонов между собственными модами или волнами электрического поля за счет нелинейности материи. Гейзенберг и Ойлер²⁹ рассмотрели собственную нелинейность вакуума. В этом случае роль промежуточных виртуальных состояний в нелинейном процессе играют состояния, связанные с рождением электронно-дырочных пар. Энергия этих состояний примерно в миллион раз превосходит энергию возбужденных состояний связанных электронов в материальной среде. Поскольку в выражение для $\chi^{(3)}$ входит разность энергий промежуточных состояний и падающих фотонов в кубе, то нелинейность вакуума очень мала и до сих пор не наблюдалась. Если пытаться зарегистрировать нелинейность вакуума с помощью лазерных пучков предельной интенсивности, то трудно избежать вклада в нелинейность отдельных атомов или молекул, находящихся в фокальном объеме.

В параметрических процессах, протекающих без диссипации, должны сохраняться энергия и импульс; т. е. для частот и волновых векторов, падающих и рождающихся фотонов, имеем $\sum_i \hbar \omega_i = 0$ и $\sum_i \hbar \mathbf{k}_i = 0$;

здесь частоты и волновые векторы падающих фотонов берутся со знаком «минус». Как было отмечено выше, частотная дисперсия в общем случае приводит к наличию расстройки волновых векторов $\Delta \mathbf{k} = \mathbf{k}_2 - 2\mathbf{k}_1$. Тем самым активный объем преобразования оказывается ограниченным и представляет собой слой толщиной $|\Delta \mathbf{k}|^{-1}$. Возможно, однако, скомпенсировать частотную дисперсию за счет оптического двулучепреломления в анизотропных кристаллах. Это было продемонстрировано Джордмейном³⁰ и независимо Терхьюном³¹. При $\Delta \mathbf{k} = 0$ вклады поляризаций всех элементарных ячеек кристалла в излучение второй гармоники совпадают по фазе, и если кристалл достаточно длинный, а интенсивность падающего света достаточно высока, то во вторую гармонику может быть преобразована заметная часть энергии основного излучения²¹. Согласование

фаз весьма существенно. Если фазы случайны, то конечным состоянием будет состояние, в котором мощности основного излучения и второй гармоники равны между собой.

В недавних экспериментах по преобразованию излучения с длиной волны 1,06 мкм мощного лазера на неодимовом стекле в третью гармонику на длине волны 0,35 мкм был достигнут коэффициент преобразования более восьмидесяти процентов³². Для этого в первом каскаде две трети энергии основной волны преобразовывались в излучение второй гармоники. Затем во втором кристалле происходило слияние равного количества фотонов основной и второй гармоник в фотоны третьей гармоники. Такое преобразование может иметь важное значение для инерционного удержания термоядерных мишеней, так как на более высоких частотах улучшаются параметры связи лазерного излучения с плазмой. Соотношения Мэнли — Роу, описывающие баланс плотности чисел фотонов в пучках, участвующих в параметрическом процессе, находят в нелинейной оптике практическое применение. Итак, несколько простых законов сохранения определяют целый ряд фундаментальных особенностей, присущих нелинейной оптике.

НЕЛИНЕЙНАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ

Мнимая часть нелинейной восприимчивости $\chi^{(3)}$ описывает такие процессы, как насыщение, кросс-насыщение, двухфотонное поглощение и вынужденное комбинационное рассеяние. Соответствующая действительная часть $\chi^{(3)'}$ описывает изменение показателя преломления под действием интенсивного излучения. Она ответственна за эффекты самофокусировки и самодефокусировки световых пучков, а также проявляется в сдвигах линий, обусловленных динамическим эффектом Штарка.

Провалы, связанные с насыщением, широко используются для устранения доплеровского уширения в спектроскопии высокого разрешения и для стабилизации частоты лазеров. Рассмотрим прохождение через газ двух бегущих волн, имеющих одинаковые частоты и противоположные по направлению волновые векторы $\mathbf{k} = -\mathbf{k}'$. Волна с волновым вектором \mathbf{k} взаимодействует с группой молекул, скорости которых удовлетворяют соотношению $\omega = \omega_{ba} - \mathbf{k}\mathbf{v}$, где ω_{ba} — резонансная частота молекулы. При этом вследствие насыщения образуется провал в доплеровском контуре. Встречный пучок взаимодействует с группой молекул, скорости которых удовлетворяют соотношению $\omega = \omega_{ba} - \mathbf{k}'\mathbf{v}' = \omega_{ba} + \mathbf{k}\mathbf{v}'$. Эти две группы совпадают лишь при $\omega = \omega_{ba}$. Если ω сканировать по спектру, то встречный пробный пучок зарегистрирует провал, обусловленный насыщением, точно в центре доплеровского контура. Соответствие с ситуацией при ЯМР, описанной ранее, не требует пояснений. На оптических частотах этот эффект был впервые зарегистрирован в виде провала в выходной мощности гелий-неонового лазера^{33,34}, который известен как провал Лэмба³⁵. В экспериментальном плане рядом преимуществ обладает метод наблюдения данного эффекта во внешней поглощающей ячейке, на которую в одном направлении падает сильный пучок накачки, а слабый пробный пучок распространяется в противоположном направлении. В то время как доплеровская ширина колебательно-вращательного перехода в метане вблизи длины волны 3,39 мкм составляет примерно 300 МГц, Холл и Борде смогли получить спектральное разрешение порядка 1 кГц³⁶. На рис. 5 показана картина спектра, полученная по провалам, связанным с насыщением, при модуляции частоты пробного пучка. С помощью спектроскопии насыщения выявлены не только сверхтонкая структура молекулярного перехода, обусловленная взаимодействием спинов ядер с вращением, но также и эффект отдачи при взаимодействии инфракрасных

фотонов с молекулами, приводящий к раздвоению каждой отдельной компоненты. При достижении разрешающей способности порядка 10^{11} необходимо учитывать и многие другие эффекты такие, как кривизна фазового фронта волны и время пролета молекул через пучок.

Было проведено сравнение между собой частот лазеров, работающих в инфракрасном диапазоне. Частота каждого из лазеров была стабилизирована по провалу, вызванному насыщением в соответствующих резонансных линиях поглощения молекул. Для сравнения частот использовался диод, основу конструкции которого составлял точечный контакт вольфрамовой нити с никелем ^{37,38}. Разность частоты одного лазера и частоты

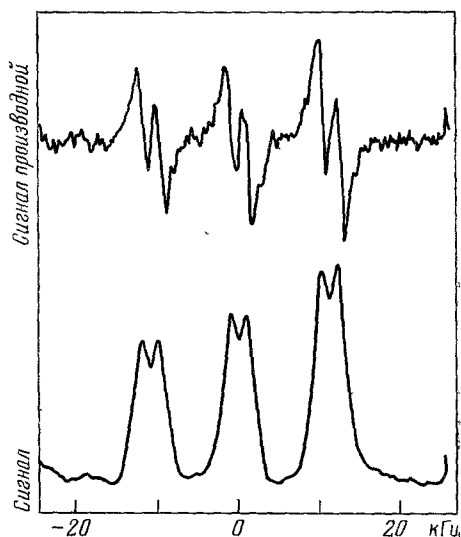


Рис. 5. Спектр линии с длиной волны вблизи 3,39 мкм молекулы, полученный с помощью спектроскопии насыщения с высоким разрешением (< 1 кГц).

Каждая из трех компонент сверхтонкой структуры представляет собой дублет, обусловленный эффектом отдачи. Верхняя кривая — производная сигнала, полученная в эксперименте (из работы ³⁶).

гармоники другого лазера сравнивалась с частотой СВЧ сигнала, которая в свою очередь калибровалась по международному стандарту частоты. Такой способ дал возможность расширить область абсолютной калибровки частоты в видимую часть спектра ³⁸. Схема всей цепочки сравнения частот показана на рис. 6. Длина волны излучения лазера независимо сравнивалась с криптоновым стандартом длины, что позволило установить значение скорости света с точностью, ограниченной лишь точностью эталона длины ³⁹. Полученное значение равно $c = 299792458 \pm 0,2$ м/с. Имеется предложение принять данную величину скорости света на основе международного соглашения с тем, чтобы измерения длины прямо связать со стандартом частоты.

Применение спектроскопии насыщения для определения постоянной Ридберга и целый ряд других спектроскопических достижений были обсуждены Шавловым ⁴⁰. Более подробное исчерпывающее изложение этих вопросов можно найти в книгах ⁴¹⁻⁴⁴. Методы оптической спектроскопии насыщения использовались также для исследования твердых тел, например для изучения ионов Nd^{3+} в кристалле LaF_3 . В этом случае аналогия с техникой ЯМР особенно наглядна ⁴⁴.

Процесс двухфотонного поглощения на оптических частотах, предсказанный Гешперт-Майер ⁴⁵, был впервые зарегистрирован Кайзером и Гарретом для ионов Eu^{2+} в кристалле CaF_2 ⁴⁶. Если два фотона, участвующие в процессе, имеют различные волновые векторы, то можно изучать возбуждения с энергией $2\hbar\omega$ и волновым вектором $\mathbf{k}(\omega) + \mathbf{k}'(\omega)$. Такой процесс, зависящий от значений волновых векторов, был исполь-

зован Фрблехом и др.⁴⁷: варьируя угол между \mathbf{k} и \mathbf{k}' , они исследовали продольные и поперечные экситонные ветви в CuCl .

Чеботаев⁴⁸ предсказал, что в газах можно получить спектр двухфотонного поглощения, свободный от доплеровского уширения. Снова рассмотрим два встречных пучка. Частоту ω выберем такой, что ее удвоенное значение соответствует частотному интервалу между двумя уровнями

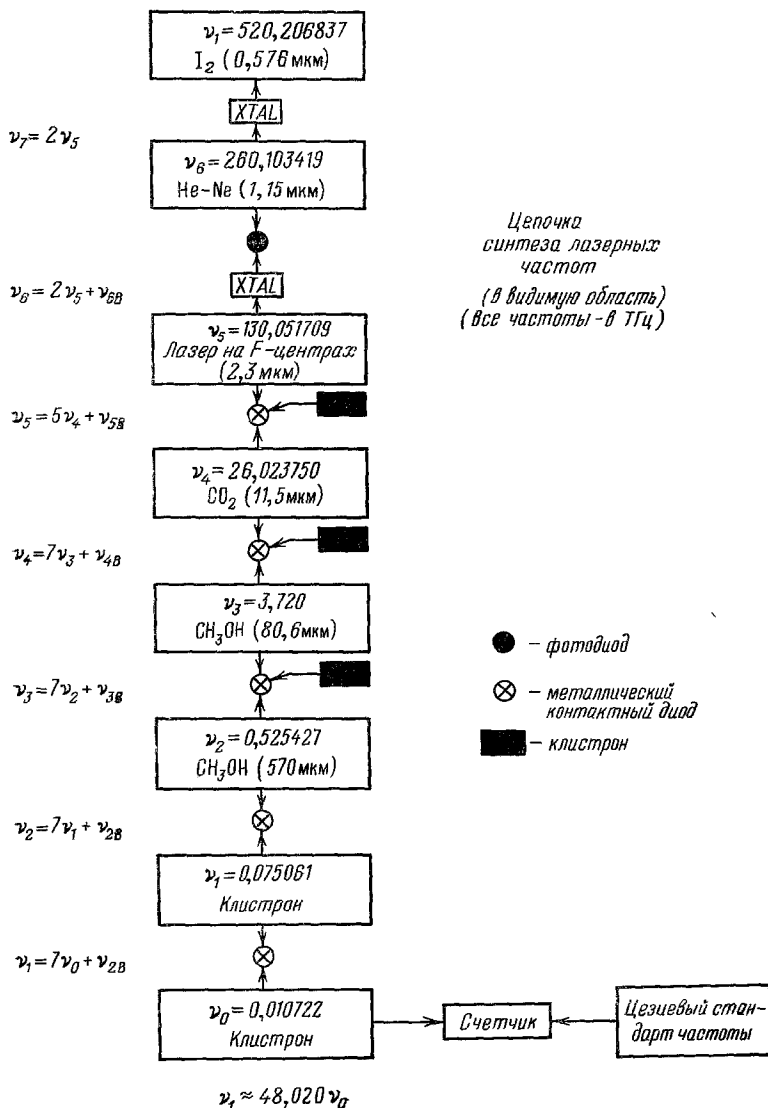


Рис. 6. Цепочка синтеза лазерных частот (из работы³⁸).

с одинаковой четностью, т. е. $2\omega = \omega_{ba}$. Тогда для процессов, в которых один фотон берется из пучка с волновым вектором \mathbf{k} , а другой фотон — из пучка с волновым вектором $\mathbf{k}' = -\mathbf{k}$, все атомы, независимо от их скоростей, будут резонансными. В системе отсчета, связанной с атомом, частоты фотонов во встречных пучках равны соответственно $\omega + \mathbf{k}\mathbf{v}$ и $\omega - \mathbf{k}\mathbf{v}$ и в сумме всегда дают ω_{ba} . Поэтому сигнал двухфотонного погло-

щения имеет вид узкого резонансного пика, свободного от доплеровского уширения. Это было впервые продемонстрировано в экспериментах, выполненных независимо в трех лабораториях ⁴⁹⁻⁵¹. Описанный метод позволяет получать высокое разрешение при изучении высоколежащих уровней энергии, включая и ридберговские состояния, обладающих той же четностью, что и основное состояние ⁵². За дальнейшими подробностями читатель может снова обратиться к книгам ^{41,43}.

Разумеется, имеется тесная связь между процессами двухфотонного поглощения и комбинационного рассеяния. Если в среде имеются два уровня энергии $|a\rangle$ и $|b\rangle$ с нормальной разностью заселенностей, между которыми разрешен комбинационный переход, то в присутствии сильной волны накачки на частоте ω_L волна на стоксовой частоте $\omega_S = \omega_L - \omega_{ba}$ будет испытывать усиление. Оуянг, например, используя технику вынужденного комбинационного рассеяния, разрешил тонкую структуру Q -ветви колебательно-вращательной полосы молекул метана ⁵³. Можно также провести прямое сравнение нелинейных методов комбинационного усиления и двухфотонного поглощения.

СПЕКТРОСКОПИЯ ЧЕТЫРЕХВОЛНОВОГО СМЕШЕНИЯ

Нелинейная восприимчивость $\chi^{(3)}$ описывает связь между четырьмя световыми волнами. Некоторые геометрические схемы расположения волновых векторов, удовлетворяющие законам сохранения энергии и импульса электромагнитных полей, приведены на рис. 7. Генерация нового

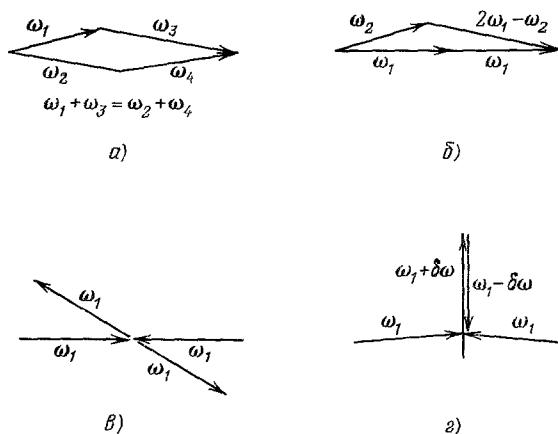


Рис. 7. Некоторые типичные схемы расположения волновых векторов при четырехволновом оптическом смешении.

пучка излучения с частотой $2\omega_1 - \omega_2$, обусловленная взаимодействием пучков с частотами ω_1 и ω_2 по схеме, приведенной на рис. 7, б, впервые наблюдалась Мейкером и Терхьюном ^{54,55}. Они зарегистрировали процесс когерентного антистоксового комбинационного рассеяния в органических жидкостях, для которого константа нелинейной связи $\chi^{(3)}$ имеет резонанс по промежуточной частоте $\omega_1 - \omega_2$, как это показано на рис. 8, б. Возрастание $\chi^{(3)}$ может также иметь место и за счет резонанса на промежуточной частоте $2\omega_1$. Таким образом, возможно с помощью световых пучков, длины волн которых лежат в видимом диапазоне в области прозрачности кристалла, получать информацию о резонансах и дисперсионных свойствах возбуждений вещества в инфракрасном ^{56,57} и ультрафиолетовом ⁵⁸ диапазонах.

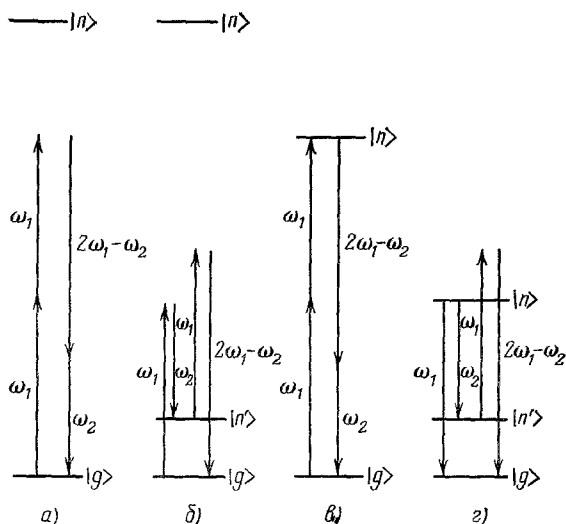


Рис. 8. Генерация нового пучка с частотой $2\omega_1 - \omega_2$ в поле двух падающих пучков с частотами ω_1 и ω_2 . Расположение волновых векторов соответствует рис. 7, б.

а) Нерезонансное смещение, б) промежуточный резонанс комбинационного типа (когерентное антистоксово комбинационное рассеяние или CARS), в) промежуточный резонанс типа двухфотонного поглощения, г) процесс CARS при наличии резонансного выигрыша за счет однофотонного перехода.

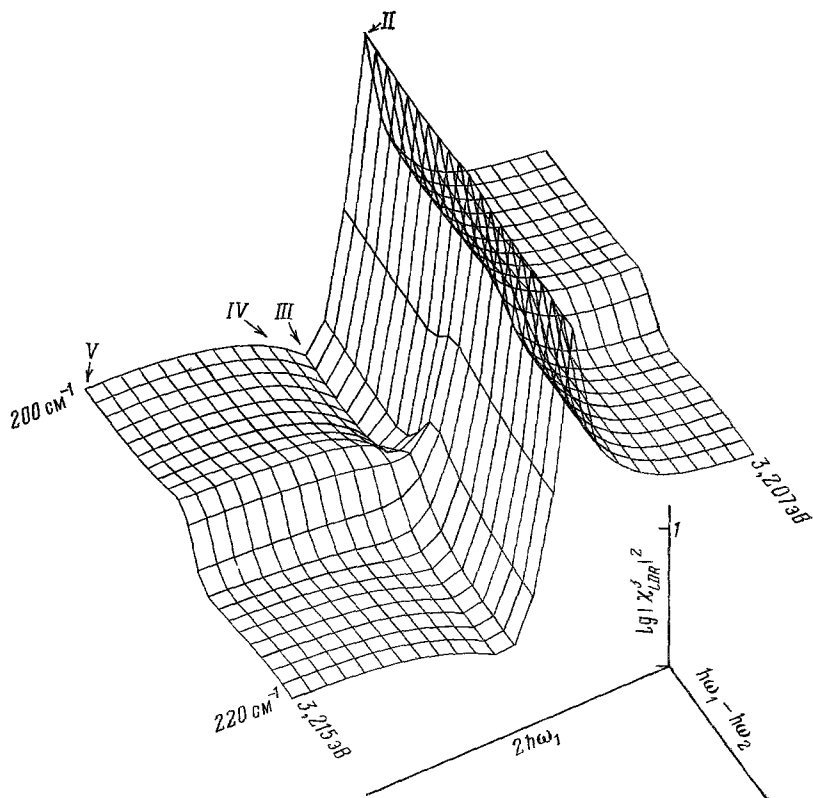


Рис. 9. Двумерная частотная дисперсия нелинейной восприимчивости $\chi^{(3)}$ в кристалле CuCl (из работы 58).

Пример нелинейной спектроскопии такого типа приведен на рис. 9. Здесь приведены результаты измерений двумерной дисперсии восприимчивости $\chi^{(3)}(-2\omega_1 + \omega_2, \omega_1, \omega_1 - \omega_2)$ в кристалле CuCl : частота $2\omega_1$ варьировалась вблизи узкого экситонного резонанса z_3 и одновременно частота $\omega_1 - \omega_2$ изменялась вблизи поляритонного резонанса в инфракрасной области. Интерференция двух комплексных резонансов друг с другом, а также интерференция их действительных частей с недиспергирующим вкладом, обусловленным нерезонансной частью $\chi^{(3)}$, дает возможность прямого сравнения этих нелинейностей.

Спектроскопия четырехволнового смешения в пространстве волновых векторов, основанная на вариации угла между падающими пучками, впервые была реализована Де Мартини⁵⁹. Несколькими группами исследователей был изучен процесс CARS *) в случае, когда имеется усиление процесса за счет однофотонного поглощающего резонанса. На рис. 8, а приведен пример подобной ситуации. Техника CARS используется также для контроля за составом пламен и распределением температуры в них. В этом и подобных ему случаях, когда имеется сильный фон, связанный со свечением раскаленного вещества или с флуоресценцией, когерентная техника предоставляет дополнительные возможности выделения сигнала⁶³.

В последние годы процессы четырехволнового смешения нашли еще одно важное применение: они используются для получения фазосопреженных волновых фронтов⁶⁴. Волновые фронты с обращенной во времени фазой получаются за счет процесса вырожденного по частоте рассеяния, схема которого изображена на рис. 7, в. Два пучка с частотой ω и с равными по величине, но противоположными по направлению волновыми векторами $\mathbf{k}_1 = -\mathbf{k}_3$, создают сильную стоячую волну накачки. В качестве нелинейной среды можно использовать жидкий CS_2 , пары Na, кристалл InSb , поглощающие жидкости, молекулярные газы и т. п.⁶⁵. Сигнальный пучок с той же частотой ω имеет волновой вектор \mathbf{k}_2 , составляющий произвольный малый угол с направлением \mathbf{k}_1 . В процессе четырехволнового рассеяния нелинейная поляризация

$$P_4(\omega) = \chi^{(3)}(-\omega, \omega, \omega, -\omega) E_1 E_2^* E_3 e^{-i\mathbf{k}_4 \cdot \mathbf{r}}$$

порождает новый пучок с волновым вектором $\mathbf{k}_4 = -\mathbf{k}_2$. Заметим, что обращается не только волновой вектор, но и фаза волны, поскольку $E_2^* = |E_2| \exp(-i\varphi_2)$. Отсюда вытекает, что обратная волна обращена во времени по отношению к сигнальной волне. Если при прохождении через среду фазовый фронт последней испытал искажения, то все эти искажения будут скомпенсированы при прохождении обратной волны через ту же среду. Амплитуда обратной волны может усиливаться, поскольку в рассматриваемом параметрическом процессе исчезновение двух фотонов накачки — по одному из каждого пучка — сопровождается добавлением по одному фотону в сигнальный пучок и в пучок с сопряженной фазой. Этот процесс можно также рассматривать как мгновенную голографию в реальном времени⁶⁶. В результате интерференции сигнальной волны с каждым из пучков накачки образуется интерференционная картина распределения интенсивности. Имеется целый ряд физических причин, обуславливающих образование при этом дифракционной решетки. Ими, в зависимости от материала среды, могут быть изменения температуры, плотности носителей, связанных объемных зарядов, ориентации молекул.

*) CARS — сокращение слов «Coherent Antistokes Raman Spectroscopy» (когерентная антистоксова спектроскопия комбинационного рассеяния). (Прим. перев.)

Второй пучок считывает эту голограмму, и, рассеиваясь, образует фазо-сопряженную волну.

Другая разновидность четырехволнового смешения близких по величине оптических частот была реализована в недавних экспериментах по наблюдению когерентности, индуцированной столкновениями⁶⁷. Два пучка с частотой ω_1 , расположенные в вертикальной плоскости, падали на кювету, содержащую пары натрия и, в качестве буферного газа, гелий. Третий пучок, падающий на кювету, имеет переменную частоту ω_2 и ориентирован в горизонтальной плоскости. При этом на частоте $2\omega_1 - \omega_2$ генерируется пучок, также лежащий в горизонтальной плоскости, но ориентированный в другом направлении. В интенсивности этого нового пучка проявляются два резонанса при $\omega_1 = \omega_2$ и $\omega_1 - \omega_2 = 17 \text{ см}^{-1}$, что соответствует тонкой структуре дублета 3P атомов Na. Эти резонансы, однако, возникают лишь в присутствии столкновений. Их интенсивность изменяется в зависимости от парциального давления гелия по линейному либо по квадратичному закону⁶⁸. Возникает парадоксальная ситуация: столкновительный процесс, вызывающий дефазировку, может способствовать генерации пучка когерентного излучения. Разрешается парадокс следующим образом. В процессах четырехволнового смешения в конечный результат дают вклад много различных диаграмм рассеяния^{60,61}. Оказывается, что в рассматриваемом случае все эти когерентные вклады интерферируют между собой деструктивным образом. Столкновения же атомов Na разрушают эту деструктивную интерференцию.

НЕЛИНЕЙНОСТИ ВЫСШИХ ПОРЯДКОВ

В выражении (1) члены высших порядков в разложении по степеням поля ответственны за генерацию высших гармоник и за процессы многофотонного возбуждения. Ахмановым и др.⁶⁹ были исследованы генерация четвертой гармоники в кристалле формиата лития и генерация пятой гармоники в кальците. Рентжес и др.⁷⁰ получили когерентное излучение в вакуумном ультрафиолете на длинах волн 53,2 нм и 38,02 нм. Для этого они использовали процессы генерации пятой и седьмой гармоник в поле лазерного импульса с длиной волны 266,1 нм, сфокусированного в газобразный гелий. Излучение же на длине волны 266,1 нм получалось последовательным удвоением частоты излучения лазера на стекле с неодимом, работающего на длине волны 1,064 мкм. Другим нелинейным эффектом высшего порядка является многофотонный фотоэффект. Инфракрасное излучение может индуцировать фотоэлектрическую эмиссию из вольфрама. Для того чтобы превысить работу выхода, требуется энергия четырех фотонов. Таким образом, фототок оказывается пропорциональным интенсивности лазерного излучения в четвертой степени⁷¹.

Пионерские работы по изучению многофотонной ионизации атомов и молекул были выполнены Прохоровым с сотрудниками⁷². Четкое доказательство того, что для ионизации ксенона требуется одиннадцать фотонов излучения с длиной волны 1,06 мкм, было получено в работе⁷³. Ионный ток в этом случае возрастает пропорционально одиннадцатой степени интенсивности падающего излучения. Необходимые интенсивности оказываются столь высокими, что приходится принимать исключительные меры предосторожности, чтобы избежать лавинной ионизации, затравкой для которой служат электроны, возникающие за счет более легко ионизуемых примесей.

Атомы и молекулы, конечно, могут быть ионизованы также и ступенчатым образом, т. е. вначале их можно перевести в реальное возбужденное связанное состояние, а затем из этого состояния возбудить выше потенциа-

ла ионизации. На процессах многофотонного лазерного возбуждения основана также спектроскопия автоионизационных состояний ⁷⁴.

Промежуточные резонансы в процессе ступенчатой ионизации приводят к селективному воздействию на вещество. С помощью счетчика Гейгера — Мюллера можно зарегистрировать ионизацию одиночных атомов. Это устройство в комбинации с одним или несколькими перестраиваемыми лазерами на красителях используется в резонансной ионизационной спектроскопии ⁷⁵. Такой метод позволяет зарегистрировать наличие одного атома среди 10^{20} атомов другого вещества. Следовательно, можно идентифицировать редкие дочерние атомы, стабильные или нестабильные, совместно с распадом исходных атомов. Сверхнизкий уровень счета может помочь также в измерении продуктов обратного β -распада, вызванного потоком солнечных нейтрино ⁷⁵.

Диссоциация целого ряда многоатомных молекул, обладающих линиями поглощения, близкими по частоте к инфракрасному излучению импульсных CO_2 -лазеров, может происходить в отсутствие столкновений, т. е. в процессе мономолекулярной реакции ^{76,77}. При этом во многих случаях для достижения границы диссоциации требуется более тридцати квантов излучения на длине волны $\lambda = 9,6$ или $10,6$ мкм. Тем не менее скорость реакции оказывается такой, как если бы имела место последовательность процессов однофотонного поглощения (или излучения) ⁷⁸. Выход диссоциации зависит от полной энергии, заключенной в импульсе, и почти не зависит от длительности импульса (или пиковой интенсивности). Такое поведение можно объяснить на основе представлений о большой плотности состояний в многоатомных молекулах при высоких уровнях колебательно-го возбуждения. Энергия, поглощенная одной из мод, быстро передается другим степеням свободы, т. е. происходит ее равномерное распределение по степеням свободы. Времена внутримолекулярной релаксации для высоковозбужденных многоатомных молекул зачастую весьма малы, порядка одной пикосекунды (10^{-12} с). Доступность лазеров, обладающих высокой мощностью, послужила стимулом развития инфракрасной фотохимии высоковозбужденных молекул. Многофотонные процессы диссоциации и ионизации можно использовать также для лазерного разделения изотопов ⁷⁷.

ОПТИЧЕСКИЕ НЕСТАЦИОНАРНЫЕ ЯВЛЕНИЯ

Ряд в соотношении (1), представляющий собой разложение по степеням возмущений, сходится только в том случае, если частота Раби, $\hbar^{-1} |ex|_{ba} |E|$, пропорциональная величине матричного элемента дипольного момента и амплитуде поля, мала по сравнению с частотной расстройкой резонанса $\omega - \omega_{ba}$ или по сравнению с однородной шириной резонанса, определяемой константой затухания Γ_{ba} . Когда это условие не выполняется, возникают очень интересные нелинейные оптические явления. Среди прочих к ним относятся затухание свободной индукции ⁷⁸, оптические нутации ⁷⁹, световое эхо ^{80,81} и полевое расщепление резонансов ⁸². Эти явления также имеют своих предшественников в области магнитного резонанса. Полное соответствие эволюции любой двухуровневой системы с движением системы спинов $1/2$ в магнитном резонансе дает нам удобную базу для описания и имеет также эвристическое значение ^{83,84}.

Для эффекта самоиндуцированной прозрачности ⁸⁵ характерно распространение уединенной оптической волны или «солитона», который формируется при резонансном взаимодействии интенсивного светового импульса с материальной средой, обладающей узкой линией поглощения. Передняя часть импульса возбуждает резонансный переход; затем при прохождении заднего фронта возбужденное резонансное состояние возвращает

энергию в импульс. В конечном счете каждый двухуровневый элемент ансамбля совершает полный оборот вокруг направления эффективного поля во вращающейся системе отсчета⁸³. Для таких 2 π -импульсов отсутствуют потери электромагнитной энергии в среде, однако скорость переноса энергии замедляется; часть энергии импульса, запасенная в среде, не дает выклада в распространение.

Углублению нашего понимания концепции фотонов способствовали исследования процессов спонтанного испускания в присутствии сильного когерентного вынуждающего поля^{86,87}, кооперативных явлений при излучении, связанных с образованием сверхизлучательных состояний⁸⁸, а также изучение статистических свойств электромагнитных полей при наличии фазовых корреляций^{89,90}.

Короткие световые импульсы широко используются для изучения временной картины нестационарных явлений и для измерения коротких времен релаксации. Очень мощные импульсы с длительностью порядка 10 пс (10^{-11} с) легко получают методом синхронизации мод. Обычная схема временных измерений такова: первый короткий импульс возбуждает среду, а затем с переменным временем задержки подается второй импульс, который зондирует наведенное возбуждение. Например, первый импульс может возбудить молекулярные колебания за счет процесса вынужденного комбинационного рассеяния. Эти когерентные колебания будут взаимодействовать со вторым импульсом, приводя в результате к появлению антистоксовой компоненты. При прохождении пикосекундного импульса через кювету с водой вследствие фазовой модуляции происходит сильное уширение его спектра: спектр оказывается сплошным и почти «белым». Такой широкополосный пикосекундный импульс можно использовать для зондирования изменений поглощения, обусловленных действием первого импульса. Указанные методы получили фундаментальное развитие в работах Кайзера⁹¹ и других исследователей⁹². Совсем недавно были получены световые импульсы с длительностью короче $4 \cdot 10^{-14}$ с.

С помощью пикосекундного импульса можно также вызвать плавление тонкого поверхностного слоя металла, сплава или полупроводника. После окончания действия светового импульса этот слой (толщиной 10–20 нм) быстро затвердевает благодаря передаче тепла внутренним холодным областям. Скорости охлаждения достигают величины 10^{13} °C/с. Поэтому при таком затвердевании возможно получение аморфных фаз или других модификаций, нестабильных при обычных условиях⁹³. Таким образом, открываются возможности для исследования новых режимов кинетики твердого тела.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Нелинейная оптика превратилась в важную область физики. Зародилась она с появлением лазеров, обладающих высокой пиковой мощностью. Создание перестраиваемых лазеров на красителях сделало возможным проведение детальных нелинейных спектроскопических исследований во всей видимой области спектра, от 0,35 до 0,9 мкм. В свою очередь методы нелинейной оптики позволили расширить область генерации перестраиваемого когерентного излучения. Генерация гармоник, параметрическое преобразование частоты вниз, вынужденное комбинационное рассеяние различных порядков — все эти процессы позволяют охватить область от вакуумного ультрафиолета⁹⁴ до далекого инфракрасного диапазона⁹⁵. И лишь область мягкого рентгеновского излучения по-прежнему остается вызовом для исследователей.

Нелинейные оптические процессы находят много важных применений. Модуляторы и демодуляторы используются в системах оптической связи,

Эффекты насыщения в поглощающих и усиливающих средах играют важную роль в получении сверхкоротких импульсов. Область измерений с временным разрешением можно расширить вплоть до фемтосекундных длительностей. А это открывает новые возможности в изучении вещества и химической кинетики. Детальное знание нелинейных процессов существенно для раздвижения границ метрологии длины и времени, что важно для ее применения к решению геологических и космологических проблем.

Область нелинейной спектроскопии созрела быстро, но все еще таит в себе большие возможности для дальнейших исследований и приложений. Многочисленны применения в химии, биологии, медицине, технологии материалов и особенно в области передачи и обработки информации. Альфреду Нобелю понравилось бы такое взаимодействие физики и техники.

Я хочу выразить благодарность моим сотрудникам и студентам, бывшим и нынешним, а также многим коллегам, разбросанным по разным учреждениям по всему земному шару, чьим работам по нелинейной оптике и спектроскопии, цитированным или не цитированным здесь, оказана честь этой премией.

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА *)

1. Townes C. H.— In: Nobel Lectures in Physics.— Amsterdam: Elsevier, 1972,— V. 4, p. 58.— (Перевод: Таунс Ч.— УФН, 1966, т. 88, с. 461 *).
2. Basov N. G.— Ibid.— P. 89.— (См.: Басов Н. Г.— УФН, 1965, т. 85, с. 585).
3. Prokhorov A. M.— Ibid.— P. 110.— (См.: Прохоров А. М.— Ibid., с. 599).
4. Salinger H.— Arch. Electrotechnik, 1923, Bd. 12, S. 268.
5. Lorentz H. A. Theory of Electrons.— Lpz.: Teubner, 1909.— (Перевод: Лорентц Г. А. Теория электронов.— М.: Гостехиздат, 1956).
6. Bloembergen N., Purcell E. M., Pound R. V.— Phys. Rev., 1948, v. 73, p. 679.
7. Pound R. V.— Ibid., 1950, v. 79, p. 685.
8. Kastler A.— Цит. в ¹ сб.— V. 4, p. 186.— (Перевод: Кастлер А.— УФН, 1965, т. 93, с. 5).
9. Overhauser A. W.— Phys. Rev., 1953, v. 91, p. 476.
10. Carver T. R., Slichter C. P.— Ibid., 1956, v. 102, p. 975.
11. См., например: Abragam A. Principles of Nuclear Magnetism.— Lnd.: Oxford University Press, 1960.— (Перевод: Абрагам А. Ядерный магнетизм.— М.: ИЛ, 1963).
Goldman M. Spin Temperature and Nuclear Magnetic Resonance in Solids.— Lnd.: Oxford University Press, 1970.
12. Bloembergen N.— Phys. Rev., 1956, v. 104, p. 324.
13. Басов Н. Г., Прохоров А. М.— ЖЭТФ, 1955, т. 28, с. 249.
14. Scovil H. E. D., Schulz-du Bois E. O.— Phys. Rev. Lett., 1959, v. 2, p. 262.
15. Bloembergen N., Shapiro S., Pershan P. S., Artman J. O.— Phys. Rev., 1959, v. 114, p. 445.
16. Wilson R. W. Nobel Lecture 1978.— Rev. Mod. Phys., 1979, v. 51, p. 767.— (Перевод: Вильсон Р. У.— УФН, 1979, т. 129, с. 595).
17. Schawlow A. L., Townes C. H.— Phys. Rev., 1958, v. 112, p. 1940.
18. Maiman T. H.— Nature, 1960, v. 187, p. 493.
19. Franken P., Hill A. E., Peters C. W., Weinreich G.— Phys. Rev. Lett., 1961, v. 7, p. 118.
20. Forrester A. T., Gudmundsen R. A., Johnson P. O.— Ibid., 1955, v. 99, p. 1961.
21. Armstrong J. A., Bloembergen N., Ducuing J., Pershan P. S.— Ibid., 1962, v. 127, p. 1918.— (Перевод: Бломберген Н. Нелинейная оптика.— М.: Мир, 1966,— С. 265).
22. Bloembergen N., Shen Y. R.— Ibid. Ser. A, 1963, v. 133, p. 37.— (Перевод: Ibid.— С. 383).
23. Ахманов С. А., Хохлов Р. В. Проблемы нелинейной оптики.— М.: ВИНТИ, 1964.

*) Переводы на русский язык здесь и далее указаны переводчиком. (Прим. ред.)

24. Bloembergen N., Pershan P. S.— Ibid., 1962, v. 128, p. 606.— (Перевод: ²¹Ibid.— С. 333).
 25. Lorentz H. A. Collected Papers. The Hauge: Martinus Nyhoff, 1935.— V. 1.
 26. Bloembergen N., Simon H. J., Lee C. H.— Phys. Rev., 1969, v. 181, p. 1261.
 27. DeMartini F., Colocci M., Kohn S. E., Shen Y. R.— Phys. Rev. Lett., 1977, v. 38, p. 1223.
 28. Schell A. J., Bloembergen N.— Phys. Rev. Ser. A, 1978, v. 18, p. 2592.
 29. Heisenberg W., Euler H.— Zs. Phys., 1936, Bd. 98, S. 714.
 30. Giordmaine J. A.— Phys. Rev. Lett., 1962, v. 8, p. 19.
 31. Maker P. D., Terhune R. W., Nisenhoff M., Savage C. M.— Ibid., 1962, v. 8, p. 21.
 32. Seka W., Jacobs S. D., Rizzo J. E., Boni R., Craxton R. S.— Opt. Comm., 1980, v. 34, p. 469.
 33. Szoke A., Javan A.— Phys. Rev. Lett., 1963, v. 10, p. 521.
 34. McFarlane R. A., Bennett W. R., Jr., Lamb W. E., Jr.— Appl. Phys. Lett., 1963, v. 2, p. 189.
 35. Lamb W. E.— Phys. Rev., 1964, v. 134, p. 1429.
 36. Hall J. L., Borde C. J., Uehara K.— Phys. Rev. Lett., 1976, v. 37, p. 1339.
 37. Hocker L. O., Javan A., Ramachandra Rao D.— Appl. Phys. Lett., 1967, v. 10, p. 147.
 38. Jennings D. A., Petersen F. R., Evenson K. M.— In: Laser Spectroscopy. IV./Ed. H. Walther, K. W. Rothe.— Heidelberg: Springer-Verlag, 1979.— P. 39.
 39. Baird K. M., Smith D. S., Whitford B. C.— Opt. Comm., 1979, v. 31, p. 367.
 - Rowley W. R. C., Shotton K. C., Woods P. T.— Ibid., 1980, v. 34, p. 429.
 40. Schawlow A. L. Les Prix Nobel 1981.— Stockholm: Almqvist and Wiksell International, 1982; то же: Rev. Mod. Phys., 1982 (to be published).— (Перевод — в этом же номере УФН).
 41. High-Resolution Laser Spectroscopy/Ed. K. Shimoda. Berlin; Heidelberg: Berlin, 1976.— (Topics in Applied Physics. V. 13).
 42. Letokhov V. S., Chebotayev V. P. Nonlinear Laser Spectroscopy.— Springer Series in Optical Sciences. V. 4.— Berlin: Springer-Verlag, 1977.— (См. также: Летохов В. С., Чеботаев В. П. Принципы нелинейной лазерной спектроскопии.— М.: Наука, 1975).
 43. Levenson M. D. Introduction to Nonlinear Laser Spectroscopy.— N.Y.: Academic Press, 1982.— Автор признателен д-ру М. Д. Левинсону за получение препринта его рукописи.
 44. McFarlane R. M., Shelby R. M.— Opt. Lett., 1981, v. 6, p. 96.
 45. Goerpert-Meyer M.— Ann. Phys., 1931, Bd. 9, S. 273.
 46. Kaiser W., Garrett G. C. B.— Phys. Rev. Lett., 1961, v. 7, p. 229.
 47. Fröhlich D., Stagninus B., Schönherr E.— Ibid., 1967, v. 19, p. 1032.
 48. Василенко Л. С., Чеботаев В. П., Шишаев А. В.— Письма ЖЭТФ, 1970, т. 12, с. 161.
 49. Cagnac B., Grynberg G., Biraben F.— Phys. Rev. Lett., 1974, v. 32, p. 643.
 50. Levenson M. D., Bloembergen N.— Ibid., p. 645.
 51. Hänsch T. W., Harvey K. C., Meisel G., Schawlow A. L.— Opt. Comm., 1974, v. 11, p. 50.
 52. Stoicheff B. P., Weinberger E.— Цит. в ³⁸ сб.— P. 264.
 53. O'Young A., Patterson C. W., McDowell R. S.— Chem. Phys. Lett., 1978, v. 59, p. 156.
- Исторический обзор ранних работ по вынужденному комбинационному рассеянию можно найти в статье: Bloembergen N.— Am. J. Phys., 1967, v. 35, p. 989.
54. Terhune R. W.— Sol. State Design, 1963, v. 4, p. 38.
 55. Maker P. D., Terhune R. W.— Phys. Rev. Ser. A, 1965, v. 137, p. 801.
 56. Levenson M. D., Bloembergen N.— Ibid. Ser. B, 1974, v. 10, p. 4447.
 57. Lotem H., Lynch R. T., Jr., Bloembergen N.— Ibid. Ser. A, 1976, v. 14, p. 1748.
 58. Kramer S. D., Bloembergen N.— Ibid., Ser. B, 1976, v. 14, p. 46—54.
 59. Coffinet J. P., DeMartini F.— Phys. Rev. Lett., 1969, v. 22, p. 60.
 60. Bloembergen N., Lotem H., Lynch R. T., Jr.— Ind. J. Pure and Appl. Phys., 1978, v. 16, p. 151.
 61. Attal B., Schnepf O. O., Taran J.-P. E.— Opt. Comm., 1978, v. 24, p. 77.

- Druet S. A. J., Taran J.-P. E., Bordé Ch. J.— J. de Phys., 1979, v. 40, p. 819.
62. Carreira L. A., Goss J. P., Malloy T. B., Jr.— J. Chem. Phys., 1978, v. 69, p. 855.
63. Eckbreth A. C.— Appl. Phys. Lett., 1978, v. 32, p. 421.
64. Hellwarth R. W.— J. Opt. Soc. Am., 1977, v. 67, p. 1.
65. См., например, серию статей различных авторов, опубликованную в: Opt. Lett., 1980, v. 5, p. 51, 102, 169, 182, 252, и цитированную в них литературу.
66. Gabor D. Les Prix Nobel 1971.— Stockholm: P. A. Norstedt und Söner, 1972.— P. 169.— (Перевод: Габор Д.— УФН, 1973, т. 109, с. 5).
67. Prior Y., Bogdan A. R., Dagenais M., Bloembergen N.— Phys. Rev. Lett., 1981, v. 46, p. 111.
68. Bloembergen N., Bogdan A. R., Downer M.— In: Laser Spectroscop. V/Ed. A. R. W. McKellan, T. Oka, B. Stoicheff.— Heidelberg: Springer-Verlag, 1981.— P. 157.
69. Ахманов С. А.— In: Nonlinear Spectroscopy/Ed. N. Bloembergen: E. Fermi Course 64.— Amsterdam: North-Holland: 1977.— P. 239.— (Перевод: Ахманов С. А.— В кн.: Нелинейная спектроскопия/Под ред. Н. Бломбергена.— М.: Мир, 1979.— С. 323).
70. Reintjes J., Eckardt R. C., She C. Y., Karangelen N. E., Elton R. C., Andrews R. A.— Phys. Rev. Lett., 1956, v. 37, p. 1540; Appl. Phys. Lett., 1977, v. 30, p. 480.
71. Bechtel J. H., Smith W. L., Bloembergen N.— Opt. Comm., 1975, v. 13, p. 56.
72. Бункин Ф. В., Прохоров А. М.— ЖЭТФ, 1964, т. 46, с. 1090. Бункин Ф. В., Карапетян Р. В., Прохоров А. М.— Ibid., т. 47, с. 216.
73. LeCompte C., Mainfray G., Manus C., Sanchez F.— Phys. Rev. Lett., 1972, v. 32, p. 265.
74. Armstrong J. A., Wypne J. J.— Цит. в ⁶⁹ сб.— P. 152.— (Перевод Армстронг Дж., Випн Дж.— Как в ⁶⁹— С. 192).
75. Hurst G. S., Payne M. G., Kramer S. D., Young J. P.— Rev. Mod. Phys., 1979, v. 51, p. 767.
76. Isenor N. R., Richardson M. C.— Appl. Phys. Lett., 1971, v. 18, p. 225.
77. Амбарцумян Р. В., Летохов В. С., Рябов Е. А., Чекалин Н. В.— Письма ЖЭТФ, 1974, т. 20, с. 597.
78. Bloembergen N.— Opt. Comm., 1975, v. 15, p. 416.
79. Brewer R. G.— Цит. в ⁶⁹ сб.— P. 87.— (Перевод: Брюер Р.— Как в ⁶⁹— С. 119).
80. Kurnit N. A., Abella I. D., Hartman S. R.— Phys. Rev. Lett., 1964, v. 13, p. 567; Phys. Rev., 1966, v. 141, p. 391.
81. Mossberg T. W. et al.— Phys. Rev. Ser. A, 1980, v. 22, p. 1962.
82. Salour M. M., Cohen-Tannoudji C.— Phys. Rev. Lett., 1977, v. 38, p. 757.
83. Rabi I. I., Ramsey N. F., Schwinger J. S.— Rev. Mod. Phys., 1954, v. 26, p. 167.
84. Feynman R. P. et al — J. Appl. Phys., 1957, v. 28, p. 49.
85. McCall S. L., Hahn E. L.— Phys. Rev. Lett., 1967, v. 18, p. 908; Phys. Rev., 1969, v. 183, p. 457.
86. Mollow B. R.— Ibid., 1969, v. 188, p. 1969.
87. Cohen-Tannoudji C., Reynaud S.— J. Phys. Ser. B, 1977, v. 10, p. 345.
88. Gibbs H. M. et al — Phys. Rev. Lett., 1977, v. 39, p. 547.
89. Glauber R.— Phys. Rev., 1963, v. 131, p. 2766.
90. См., например: Coherence and Quantum Optics. IV./Ed. L. Mandel, E. Wolf — N. Y.: Plenum Press, 1978.
91. Von der Linde D., et al — Phys. Rev. Lett., 1971, v. 26, p. 954.
92. См., например: Ultrashort Light Pulses/Ed. S. L. Shapiro.— Heidelberg: Springer-Verlag, 1977.— (Topics in Applied Physics. V. 18).— (Перевод: Сверхкороткие световые импульсы/Под ред. С. Шапиро.— М.: Мир, 1981).
93. Liu J. M., Yen R., Kurz H., Bloembergen N.— Appl. Phys. Lett., 1981, v. 39, p. 755.
94. Harris S. E.— Ibid., 1977, v. 31, p. 398.
95. Harris S. E. et al.— Цит. в ⁶⁸ сб.— P. 437.
96. Byer R. L., Herbst R. L.— In: Nonlinear Infrared Generation/Ed. Y. R. Shen.— Heidelberg: Springer-Verlag, 1977.— P. 81.— (Topics in Applied Physics. V. 16).
97. Nguen V. T., Bridges T. J.— Ibid.— P. 140.
98. Wypne J. J., Sorokin P. P.— Ibid.— P. 160.