

НОВЫЕ ПРИБОРЫ И МЕТОДЫ ИЗМЕРЕНИЙ

66.085.1+621.378

**ГЕНЕРАЦИЯ КОГЕРЕНТНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ ДАЛЬНОГО
ИНФРАКРАСНОГО ДИАПАЗОНА,
ОСНОВАННАЯ НА ПРИМЕНЕНИИ ЛАЗЕРОВ***А. А. Веденов, Г. Д. Мылъников, Д. Н. Соболенко*

СОДЕРЖАНИЕ

1. Введение	477
2. Источники излучения дальнего ИК диапазона, основанные на выделении разностной частоты излучения двух лазеров	481
3. Поляритонные генераторы излучения дальнего ИК диапазона	486
4. Газовые лазеры с оптической накачкой в дальнем ИК диапазоне	491
а) Общие принципы работы газовых лазеров с оптической накачкой (491). 1) Трех- и четырехуровневые лазеры с оптической накачкой (491); 2) Характерные мощности (492); 3) Коэффициент усиления. Его зависимость от давления и мощности накачки (492); 4) Уровни и правила отбора (493); 5) Оптимальное давление (494); 6) Поляризация излучения (494). б) Экспериментальная техника (495). 1) Оптическая схема (495); 2) Волноводные лазеры (496); 3) Накачка CO_2 -лазером (496). в) Экспериментальные результаты по генерации излучения дальнего ИК диапазона (497). 1) Какие линии генерируются сейчас с помощью оптической накачки в дальнем ИК диапазоне (497); 2) Первый лазер с оптической накачкой на CH_3F (498); 3) Лазер на NH_3 (499); 4) Лазер на CH_3OH (499); 5) Лазер на HF (500); 6) Лазер на D_2O (500); 7) Лазеры на резонансном ВКР (NH_3 , HCl , HF , D_2O) (500).	
5. Электроразрядные лазеры в дальнем ИК диапазоне	502
а) Возбуждение газового лазера электрическим разрядом (502). б) Лазеры дальнего ИК диапазона на переходах в нейтральных атомах (503). 1) Первый электроразрядный лазер на Ne (503); 2) Лазер на He (503); 3) Лазер на Xe (504). в) Лазеры дальнего ИК диапазона на переходах в молекулах (504). 1) Лазер на HCN (505); 2) Лазер на H_2O (506); 3) ТЕ-лазеры на HCN и H_2O (507); 4) Волноводный HCN -лазер (508); 5) Лазер на NH_3 (508); 6) Лазер на SO_2 (508); 7) Лазеры на OCS и H_2S (508); 8) Лазер на HBr (509).	
6. Заключение	509
Цитированная литература	509

1. ВВЕДЕНИЕ

Обзор, посвященный экспериментальной технике дальнего ИК диапазона (длина волны $\lambda = 50\text{--}1000$ мкм, $1/\lambda = 10\text{--}200$ см $^{-1}$), был опубликован в УФН в 1969 г.¹ За последующие годы в этом диапазоне были созданы новые генераторы (на биениях двух волн ИК диапазона, поляритонные, на резонансном вынужденном комбинационном рассеянии) с непрерывной или квазинепрерывной (по плотному ряду дискретных линий) перестройкой длины волны. Получена также генерация на сотнях дискретных линий молекулярных и атомарных переходов в этом диапазоне при возбуждении с помощью электрического разряда или при оптической

накачке. Проведены исследования поглощения, отражения и нелинейных свойств ряда материалов в дальнем ИК диапазоне; разработаны новые приемники излучения.

В табл. I приведены некоторые характеристики современных генераторов излучения дальнего ИК диапазона—лазеров или возбуждаемых лазерами.

Таблица I

	Импульсная мощность, Вт	Длительность импульса, с	Длина волны, мкм	Непрерывная мощность, Вт
Смещение волн в твердом теле	$1-10^3$	$10^{-8}-10^{-6}$	70—1000	10^{-6}
Поляритонный генератор	10^2	10^{-8}	50—700	—
Оптическая накачка	10^3-10^7	10^{-6}	Дискретная	$10^{-2}-10$
Электрический разряд	$1-10^4$	10^{-6}	»	10^{-3}

Созданные генераторы излучения дальнего ИК диапазона могут использоваться для физических исследований газов (вращательные спектры молекул ³, спектры, соответствующие внутреннему вращению радикалов в сложных молекулах ⁶ и т. д.), жидкостей ⁴, твердых тел (спектры полупроводников ⁷, полимерных комплексов ⁵ и т. д.), плазмы (диагностика плазмы больших установок для термоядерных исследований ^{8, 216}). Успешно применяются такие генераторы и для моделирования устройств, работающих в СВЧ диапазоне ^{217, 218}. Получены изображения предметов при освещении их лучами дальнего ИК диапазона ².

Мощные импульсные генераторы излучения среднего ИК диапазона успешно используются для многофотонной бесстолкновительной диссоциации некоторых химических соединений в газовой фазе ²¹⁹. В некоторых случаях малая ширина линии излучения генератора и хорошее совпадение частот излучения генератора и поглощения облучаемого вещества позволили осуществить селективную диссоциацию молекул, содержащих определенный изотоп одного из элементов. Так, с помощью CO_2 -лазера ($\lambda \sim 10$ мкм) были разделены изотопы серы в соединении SF_6 ²²⁰, изотопы Os в соединении OsO_4 ²²¹ и др. В то же время многофотонная бесстолкновительная диссоциация молекул, содержащих более тяжелые элементы (например, уран) требует более длинноволновых мощных импульсных генераторов излучения ($\lambda \sim 16$ мкм). С помощью газовых лазеров на молекулах CF_4 ($\lambda \sim 16$ мкм) и NH_3 ($\lambda \sim 12$ мкм), оптически накачиваемых CO_2 -лазером, осуществлялась многофотонная диссоциация соединения UF_6 ^{222, 223}, однако селективность по изотопам урана не была достигнута, что, вероятно, связано с отсутствием плавной перестройки частоты CF_4 - и NH_3 -лазеров. Новые возможности в этом направлении, по-видимому, открывает осуществление ВКР в параводороде при накачке CO_2 -лазером ²²⁴. Здесь плавность перестройки частоты в области $\lambda \sim 16$ мкм определяется возможностью изменения частоты CO_2 -лазера.

Задача о разделении изотопов титана в соединении TiCl_4 с помощью многофотонной диссоциации требует применения мощного импульсного источника излучения диапазона $\lambda \sim 20$ мкм ²³¹.

Физические процессы, протекающие в описанных ниже генераторах излучения дальнего ИК диапазона, так или иначе связаны с применением лазеров. Это либо электроразрядная или лазерная накачка помещенного в оптический резонатор газа, способного генерировать излучение дальнего ИК диапазона, либо нелинейные оптические процессы.

Один из нелинейно-оптических процессов, приводящий к генерации излучения дальнего ИК диапазона, — это выделение волны с разностной частотой при взаимодействии двух монохроматических электромагнитных волн различной частоты, посылаемых в образец (кристалл, кювету с газом) внешним источником. Из-за нелинейности электрических свойств образца в нем возникает электромагнитная волна с частотой ω_3 , равной разности частот $\omega_1 - \omega_2$, падающих на образец волн. При удовлетворении условия $\mathbf{k}_3(\omega_3) = \mathbf{k}_1(\omega_1) - \mathbf{k}_2(\omega_2)$ эффективность такого процесса значительно возрастает, а амплитуда волны с разностной частотой (в стационарном случае) монотонно растет внутри образца по мере удаления от входной грани кристалла.

Этот процесс не имеет порога по амплитуде падающих волн (независимо от затухания на частотах $\omega_1, \omega_2, \omega_3$) и является одним из частных случаев параметрического преобразования частоты электромагнитного излучения¹⁰, а соотношение для волновых векторов $\mathbf{k}_1 = \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_3$ взаимодействующих волн, частоты которых связаны условием $\omega_1 = \omega_2 + \omega_3$, называют фазовым синхронизмом.

Важный частный случай параметрического преобразования частоты в нелинейной среде, снабженной резонатором, когда на нелинейную среду падает одна сильная электромагнитная волна (ω_1), а две других (ω_2, ω_3 при условии $\omega_1 = \omega_2 + \omega_3$) нарастают в резонаторе, называется параметрической генерацией¹⁰ (процесс 1). Параметрическое усиление волн ω_2, ω_3 в нелинейной среде в отсутствие затухания этих волн не имеет порога по амплитуде падающей на нелинейную среду волны ω_1 . Если затухание только одной из волн ω_2, ω_3 , например ω_2 , отсутствует, а другая сильно затухает, то в среде имеется усиление без порога именно для волны ω_2 ⁹.

Другой нелинейный оптический процесс (процесс 2), который идет, когда на нелинейную среду (в резонаторе или без него) падает одна сильная электромагнитная волна с частотой ω_1 , а в нелинейной среде нарастает волна с частотой ω_2 (стоксов сателлит) и возбуждение среды с характерной частотой Ω , называется вынужденным комбинационным рассеянием (ВКР). В этом случае для частот имеет место условие $\omega_1 = \omega_2 + \Omega$ (Ω — обычно частота колебания или вращения молекул нелинейной среды). Соответствующее условие фазового синхронизма $\mathbf{k}_1 = \mathbf{k}_2 + \Delta\mathbf{k}$ выполняется в этом процессе всегда, так как рассеивающая среда принимает на себя любой импульс $\Delta\mathbf{p} = \hbar \Delta\mathbf{k}$. Процесс 2, в принципе, не имеет порога по амплитуде падающей волны (ω_1), если потери на частоте ω_2 отсутствуют.

Вынужденное рассеяние света в нецентросимметричных кристаллах на поляритонах — коллективных возбуждениях кристаллической решетки, связанных с электромагнитным полем и активных как в поглощении, так и в комбинационном рассеянии света, может быть описано как ВКР с учетом закона дисперсии поляритона²¹⁵.

В реальных условиях порог возбуждения процессов 1 и 2 возникает из-за наличия затуханий γ_2, γ_3 для волн ω_2, ω_3 , нарастающих в параметрическом генераторе (или для волны ω_2 и колебания среды Ω при ВКР). Каждый из этих процессов 1, 2 идет, если амплитуда E падающей волны ω_1 выше соответствующего порогового значения $E_{\text{пор}}$; при этом в процессе 1 в образце нарастают обе волны ω_2 и ω_3 , образующиеся в результате параметрической генерации (при затуханиях γ_2, γ_3 одного порядка), а в процессе 2 нарастает стоксов сателлит ω_2 .

Пороги процессов 1 и 2 близки:

$$E_{\text{пор}}^{(1, 2)} = \frac{1}{d} \frac{V \sqrt{\gamma_2 \gamma_3}}{\omega}.$$

Здесь величина ω — порядка частоты волны накачки, $\gamma_{2,3}$ — декременты затухания волн ω_2 и ω_3 в случае, когда идет процесс 1; при этом $d = d_{(2)}$ ⁹, где $d_{(2)}$ — нелинейная поляризуемость среды («квадратичная» нелинейная восприимчивость) в разложении

$$\mathcal{P} = \frac{\varepsilon - 1}{4\pi} E + d_{(2)} E E + d_{(3)} E E E + \dots$$

Для процесса 2 γ_3 — декремент затухания молекулярного колебания, а d определяется выражением

$$d = \frac{\sqrt{\pi} N}{\omega} \sqrt{\frac{\omega_2}{\Omega}} \frac{\partial \alpha}{\partial Q},$$

где α — поляризуемость, Q — оптическая фононная координата. Для ВКР в жидкостях, газах d , конечно, определяется «кубичной» нелинейной восприимчивостью $d_{(3)}$ из приведенного выше разложения поляризации по степеням поля E .

Значение порога для лазера с оптической накачкой (процесс 3) определяется равенством декремента затухания генерируемой волны γ инкременту резонансной инвертированной среды

$$\gamma = \frac{\omega_2}{c} \operatorname{Im} \sqrt{\varepsilon},$$

где

$$\varepsilon = \frac{4\pi (n_2 - n_1) e^2}{i v \omega_2 M}.$$

Если энергия волны накачки переходит в энергию верхнего лазерного уровня

$$\frac{E^2}{4\pi} = \frac{n_2 \hbar \omega_1}{\tau},$$

то для порога получаем (считаем $n_1 = 0$)

$$\frac{E_{\text{пор}}^{(3)}}{\sqrt{8\pi}} \approx \sqrt{\frac{\hbar \omega_1}{4\pi e^2/M}} \sqrt{\gamma v}.$$

Обычно в газах $\sqrt{n \hbar \omega_1} \ll 1/d$, порог процесса 3 лежит ниже, чем процесса 2, и оптически накачиваемый лазер начинает действовать раньше (при меньших E), чем возникает ВКР; исключение составляет случай резонансного ВКР, когда процессы 2 и 3 могут сосуществовать (см. гл. 4).

Описание процесса взаимодействия волн в нелинейной среде основывается чаще всего на представлении о плоских волнах с бесконечными размерами волнового фронта (в направлениях $\perp \mathbf{k}$). Однако такое представление справедливо лишь в том случае, когда $a^2/\lambda L \gg 1$, где a — поперечный размер области взаимодействия, L — длина взаимодействия волн⁴⁸. Когда в результате нелинейного процесса генерируются волны сравнительно большой длины ($\lambda \sim 1000$ мкм) и применяются сильно сфокусированные пучки накачки, учет дифракционной расходимости волны дальнего ИК диапазона становится необходимым⁴⁸. С другой стороны, при работе лазеров дальнего ИК диапазона (электроразрядных или с оптической накачкой) применение волноводной техники, заимствованной из СВЧ диапазона, часто приводит к повышению эффективности работы таких лазеров^{86, 186}.

Настоящий обзор содержит материал, относящийся только к генераторам излучения дальнего ИК диапазона, основанным на лазерной технике (нелинейные оптические процессы в твердых телах и газах, электрическая и оптическая накачка газов), и не включает в себя работ по генераторам с электронными потоками (лампы обратной волны, гиротроны и т. д.).

2. ИСТОЧНИКИ ИЗЛУЧЕНИЯ ДАЛЬНЕГО ИК ДИАПАЗОНА; ОСНОВАННЫЕ НА ВЫДЕЛЕНИИ РАЗНОСТНОЙ ЧАСТОТЫ ИЗЛУЧЕНИЯ ДВУХ ЛАЗЕРОВ

Выделение разностной частоты излучения двух лазеров (вообще, двух волн различной частоты) возможно лишь в нелинейной среде, не имеющей центра инверсии, так как только в этом случае среда имеет «квадратичную» нелинейную восприимчивость $d_{(2)}$, определяющую процесс смешения. Таким образом, для реализации процесса вычитания частот излучения от двух источников пригодны нецентросимметричные кристаллы, многие из которых дают возможность получать в результате излучение дальнего ИК диапазона.

Следует отметить, что суммирование (или вычитание) частот трех или более волн может быть выполнено и в центросимметричных средах, например в газе, так как за эти процессы ответственны нелинейные восприимчивости третьего или более высокого порядка. В частности, в ²²⁶ наблюдалось резонансное четырехфотонное смешение частот $\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 = \omega_4$ в парах Cs, при этом в результате смешения в ²²⁶ получалось излучение оптического диапазона ($\lambda \sim 0,36$ мкм). Ссылки на работы такого типа можно найти в ²³². В работах ^{227, 228} были сформулированы предложения об использовании постоянного электрического поля для нарушения центросимметричности газов и жидкостей, а в ^{229, 230} было экспериментально реализовано смешение излучения двух частот в водороде, помещенном в электрическое поле. Волна, получившаяся в результате смешения, принадлежала ближнему ИК диапазону ($\lambda \sim 2,4$ мкм).

Теоретическое рассмотрение процесса вычитания частот двух волн в среде, имеющей квадратичную нелинейную восприимчивость $d_{(2)}$, основывается на использовании так называемых уравнений для медленных амплитуд ¹⁰, получаемых из уравнений Максвелла и разложения поляризации \vec{P} по степеням электрического поля $\vec{E}^0 = \mathbf{e}_n \mathcal{E}_n(t, x, y, z) \exp[i(\omega_n t - \mathbf{k}_n \mathbf{r})]$:

$$\vec{P}_i = \alpha_{ij} \mathcal{E}_j + d_{ijk} \mathcal{E}_j \mathcal{E}_k + \dots; \quad (2.1)$$

здесь \vec{E}^0 — вектор электрического поля, поляризованного по вектору \mathbf{e} , \mathcal{E} — медленно меняющаяся амплитуда, ω и \mathbf{k} — частота и волновой вектор волны, индекс n принимает значения 1, 2, 3 и относится к излучению, падающему на нелинейную среду ($n = 1, 2$) и излучению разностной частоты ($n = 3$). Линейная α_{ij} и квадратичная нелинейная d_{ijk} поляризуемости среды являются тензорными величинами, однако для конкретного взаимодействия в выбранном кристалле нелинейная часть поляризации (2.1) $d_{ijk} \mathcal{E}_j \mathcal{E}_k$ после суммирования слагаемых с ненулевыми компонентами тензора d_{ijk} может быть записана в виде $d_{\text{эфф}} \mathcal{E}(\omega_1) \mathcal{E}(\omega_2)$.

Уравнения для медленных амплитуд дают следующее выражение для интенсивности излучения на разностной частоте ω_3 ¹⁰:

$$J_{\omega_3} = \frac{128\pi^3 \omega_3^2}{c^3 n_1 n_2 n_3} d_{\text{эфф}}^2 \times \\ \times \frac{\exp(-2\gamma_3 x) |\exp[(-\gamma_1 - \gamma_2 - \gamma_3)x + i\Delta kx] - 1|^2}{(\Delta k)^2 + (-\gamma_1 - \gamma_2 + \gamma_3)^2} I_{\omega_1} I_{\omega_2}, \quad (2.2)$$

где $I_{\omega_{1,2,3}} = n\mathcal{E}^2/8\pi$ — интенсивность излучения на соответствующей частоте, $n_{1,2,3}$ — коэффициент преломления, $\gamma_{1,2,3}$ — коэффициент затухания, разность $\Delta k = \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3$ характеризует отклонение от условий фазового синхронизма. В случае $2\gamma x \ll 1$, $\Delta kx \ll 1$ для практических целей удобно пользоваться более простой формулой мощности излучения

на разностной частоте:

$$P_{\omega_3} = 128\pi^3 \frac{d_{\text{эфф}}^2 \omega_3^2}{c^3 n_1 n_2 n_3} \frac{P_{\omega_1} P_{\omega_2}}{S} T_1 T_2 T_3 L_{\text{эфф}}^2, \quad (2.3)$$

где $P_{\omega} = IS$ — мощность излучения на соответствующей частоте, S — площадь поперечного сечения взаимодействующих пучков, $T = 4n/(n+1)^2$ — коэффициент пропускания излучения поверхностью образца, $L_{\text{эфф}}$ — эффективная длина взаимодействия, которая определяется интегрированием выражения (2.2) вдоль «нитей», направленных по \mathbf{k}_3 (см. ниже рис. 1, б).

В этом разделе мы будем рассматривать генерацию излучения разностной частоты в твердых телах, когда эта частота попадает в дальний ИК диапазон. На основе выражения (2.2) можно сформулировать основные требования к кристаллу — смесителю, которые позволяют обеспечить высокую выходную мощность излучения дальнего ИК диапазона: 1) кристалл должен обладать нелинейной восприимчивостью второго порядка и иметь большую величину параметра $d_{\text{эфф}}^2/n_1 n_2 n_3$; 2) кристалл должен быть прозрачен как для волн накачки ($2\gamma_1 x, 2\gamma_2 x \ll 1$), так и для излучения дальнего ИК диапазона ($2\gamma_3 x \ll 1$); 3) дисперсия коэффициента преломления кристалла должна позволить осуществить фазовый синхронизм волн, участвующих в процессе ($\Delta k = 0$); 4) кристалл должен обладать значительной лучевой стойкостью, так как процесс преобразования частоты эффективно происходит при больших интенсивностях накачки.

Генерация излучения дальнего ИК диапазона выделением разностной частоты излучения различных лазеров была получена в следующих кристаллах: LiNbO_3 ^{14,15,49}, ZnO , ZnS , CdS , CdSe ¹⁴, ZnTe ¹², ZnSe ^{16,34}, GaAs ^{22-32,35}, InSb ¹⁷⁻²⁰, ZnGeP_2 ²¹, CdTe ³⁶, а также в магнитоактивной плазме полупроводника ^{37,212-214}.

В литературных источниках имеется разброс значений $d_{\text{эфф}}$ для генерации излучения дальнего ИК диапазона. Это связано не только с дисперсией $d_{\text{эфф}}$, но и с различными методиками измерения. Перспективный кристалл для генерации излучения дальнего ИК диапазона GaAs имеет величину параметра $d_{\text{эфф}}^2/n_1 n_2 n_3 \sim 10^{-14}$ ед. CGSE. Значение этого параметра имеет тот же порядок для наиболее подходящих кристаллов-преобразователей и падает до 10^{-16} ед. CGSE для других смесителей.

В используемых для преобразования частоты кристаллах-смесителях между частотой источников накачки (ω_1, ω_2) и разностной частотой (ω_3) лежит полоса решеточного поглощения кристалла. Поэтому, как правило, затухание излучения для коротковолновой области дальнего ИК диапазона велико. Для того чтобы эффективно генерировать излучение в этой области частот, кристалл охлаждают ^{27,28}, что приводит к сужению полосы решеточного поглощения и уменьшению поглощения излучения дальнего ИК диапазона. Величина затухания существенно изменяется в пределах дальнего ИК диапазона для одного и того же кристалла (например, для ZnSe $2\gamma_3$ (1000 мкм) = $0,5 \text{ см}^{-1}$, а $2\gamma_3$ (200 мкм) = 6 см^{-1} ¹⁶). Однако для охлажденного кристалла, например GaAs , затуханием излучения во всем диапазоне 100—1000 мкм можно пренебречь ($2\gamma_3 < 0,03 \text{ см}^{-1}$ ⁴⁴).

Генерация излучения дальнего ИК диапазона выделением разностной частоты в кристаллах проводилась и без выполнения условий фазового синхронизма ^{20,22,34,47}, однако для увеличения мощности излучения дальнего ИК диапазона необходимо выполнение условий фазового синхронизма.

Проанализируем способы осуществления фазового синхронизма, т. е. способы выполнения условий $\omega_1 - \omega_2 = \omega_3$ и $\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2 = \mathbf{k}_3$. Часто используется метод согласования фаз при помощи двулучепреломления ^{11,13,21,52}. Этот метод основан на том, что поляризуя одну из волн, например

ω_1 , как обыкновенную, а другую (ω_2) — как необыкновенную, в ряде кристаллов можно выполнить условия фазового синхронизма при коллинеарном распространении волн. Однако этот метод пригоден только для двухлучепреломляющих кристаллов. Большие возможности для осуществления условий фазового синхронизма представляет магнитоактивная плазма полупроводников^{17, 18, 37, 53-55, 212-214}.

В работе²³ фазовый синхронизм осуществлялся помещением нелинейного кристалла в волновод. Согласование фаз можно также осуществить подбором коэффициентов преломления, изменяя температуру образца¹⁹. В⁵⁶ предлагается осуществить фазовый синхронизм периодическим изменением нелинейной восприимчивости.

В случае нормальной дисперсии в изотропных кристаллах невозможно осуществить фазовый синхронизм. Однако полосы решеточного поглощения (ω_0) и аномальной дисперсии многих кристаллов находятся между частотами ω_1 , ω_2 и разностной частотой ω_3 : $\omega_1, \omega_2 > \omega_0 > \omega_3$. Это позволяет осуществить неколлинеарный фазовый синхронизм для процесса вычитания частот в кристаллах, для которых $n_3 > n_1, n_2$ ^{16, 19, 24, 47}, т. е. в кристаллах с аномальной дисперсией. Зная коэффициенты преломления, можно решить треугольник волновых векторов (см. ниже рис. 1, б) и найти углы θ и φ внутри кристалла для различных комбинаций $\omega_1, \omega_2, \omega_3$: $\omega_3^2 n_3^2 = \omega_1^2 n_1^2 + \omega_2^2 n_2^2 - 2\omega_1 \omega_2 n_1 n_2 \cos \theta$. Воспользовавшись малостью угла θ и тем, что $n_1 \approx n_2$, а $(n_3 - n_1)/n_1 \ll 1$, легко получить следующее приближенное выражение для углов θ и φ ²⁵:

$$\theta = \frac{\omega_3}{\sqrt{\omega_1 \omega_2}} \sqrt{\frac{2\Delta n}{n}}, \quad \sin \varphi = \sqrt{\frac{2\Delta n}{n}} = \text{const}, \quad (2.4)$$

где $n \approx n_1 \approx n_2$; $\Delta n = n_3 - n_1$.

Приведем численное значение углов θ и φ для случая смещения излучения двух CO_2 лазеров в кристалле GaAs: θ (град) = $2,5 \cdot 10^{-2} \omega_3 (\text{см}^{-1})$, $\varphi \approx 22^\circ$. Угол $\theta_{\text{вн}}$ между лучами \mathbf{k}_1 и \mathbf{k}_2 вне кристалла определяется из очевидного соотношения $\theta_{\text{вн}} = n\theta$.

Высокие интенсивности накачки вызывают разрушение кристалла. Обычно прежде всего наступает поверхностное разрушение кристалла. Порог поверхностного разрушения кристалла определяется свойствами конкретного материала, качеством полировки поверхности, условиями эксплуатации кристалла. Поэтому величина порога поверхностного разрушения кристалла-смесителя не может быть точно названа. Более того, кристалл может начать разрушаться под действием не первого, а последующих импульсов облучения. Опыт показывает, что для устойчивой и длительной работы генератора излучения дальнего ИК диапазона выделением разностной частоты двух лазеров в полупроводнике интенсивность накачки следует выбирать $\sim 10^6$ Вт/см², для диэлектриков эту мощность можно увеличивать на порядок. В узкозонном кристалле InSb вводимая интенсивность ограничивается не поверхностным разрушением, а объемным двухфотонным поглощением излучения CO_2 -лазера на уровне интенсивности $\sim 10^5$ Вт/см²¹⁹⁶.

Произведем оценку мощности генератора излучения дальнего ИК диапазона, работающего на основе выделения разностной частоты двух CO_2 -лазеров в кристалле GaAs. Подставив численное значение величин, входящих в (2.3), взяв мощность накачки $P_{\omega_1} \sim P_{\omega_2} \sim 10^6$ Вт, $S = 1$ см², $L_{\text{эфф}} = 5$ см, получим $P_{\omega_3} (\text{Вт}) = 0,14 \omega_3^2 (\text{см}^{-1})$. Так, например, для $\omega_3 = 100 \text{ см}^{-1}$ ($\lambda_3 = 100$ мкм) $P_{\omega_3} = 1,4 \cdot 10^3$ Вт.

Лазеры, служащие источниками накачки для выделения разностной частоты, должны обеспечивать мощное излучение на частотах ω_1 и ω_2

таких, чтобы частота $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$ находилась в дальнем ИК диапазоне. Вследствие того, что мощность излучения дальнего ИК диапазона сильно зависит от мощности лазеров накачки, источниками накачки обычно служат мощные импульсные лазеры. Ширина спектра генерации таких источников излучения дальнего ИК диапазона порядка ширины спектров лазеров накачки. Для импульсных лазеров эта величина, как правило, меньше $0,1 \text{ см}^{-1}$. С помощью CO_2 -лазеров непрерывного действия создан источник излучения дальнего ИК диапазона с шириной спектра 100 кГц с плавной перестройкой в пределах одной линии 50 МГц ²⁷. В экспериментах по генерации излучения дальнего ИК диапазона использовались следующие источники накачки: рубиновый лазер ^{11,12}, неодимовый лазер ¹³, лазеры на красителях ^{14,15}, CO_2 -лазеры ¹⁶⁻³², лазер на перевороте спина ^{33, 312-314}.

Сравнительные характеристики источников излучения дальнего ИК диапазона, основанных на выделении разностной частоты излучения двух лазеров, приведены в табл. II.

Таблица II

Сравнительные характеристики источников дальнего ИК излучения, основанных на выделении разностной частоты излучения двух лазеров

Литература	$P_{\omega_1}, P_{\omega_2}, \text{ Вт}$	$P_{\omega_3}, \text{ Вт}$	$\omega_3, \text{ см}^{-1}$	Перестройка $\Delta\omega_3, \text{ см}^{-1}$	Материал	Лазер накачки	Температура образца
17	10^3	10^{-6}	100	—	InSb	CO_2	Охлаждение
19	$3 \cdot 10^2$	10^{-6}	100	—	InSb	CO_2	»
21	150	$1,7 \cdot 10^{-6}$	83	70—110	ZnGeP_2	CO_2	Комнатная
	$1,8 \cdot 10^3$	$3 \cdot 10^{-6}$	30	—	GaAs	CO_2	»
37	80	$0,4 \cdot 10^{-6}$	100	—	Плазма полупроводника	CO_2	Охлаждение
212	$2 \cdot 10^3, 10$	$2 \cdot 10^{-6}$	101	—	Плазма полупроводника	Лазер на перевороте спина	»
23	$4 \cdot 10^2$	$4 \cdot 10^{-6}$	1,79 1,81	—	GaAs	CO_2	»
24	$5 \cdot 10^4$	10^{-3}	100	—	GaAs	CO_2	»
27	25	$2 \cdot 10^{-7}$	100	10—140	GaAs	CO_2	»
28	$2 \cdot 10^5$	$2 \cdot 10^{-2}$	100	5—140	GaAs	CO_2	»
31	$2 \cdot 10^5$	0,6	100	—	GaAs	CO_2	»
32	$1,3 \cdot 10^5$	50	100	5—140	GaAs	CO_2	»
32	$2 \cdot 10^6$	$4 \cdot 10^3$	100	5—140	GaAs	CO_2	»
16	$2 \cdot 10^5$	0,1	25	2—50	ZnSe	CO_2	Комнатная
29	10^5	10^{-2}	30	2—100	GaAs	CO_2	»
30							
45	$3 \cdot 10^5$	10	25	2—30	GaAs	CO_2	»
49	$3,5 \cdot 10^6$	10^{-3}	—	10,9—18,6	LiNbO_3	Рубиновый	»
14	$6 \cdot 10^5$	10^{-2}	20	20—127	LiNbO_3	На красителе	»
		$2 \cdot 10^{-2}$	20	20—95	LiNbO_3	»	Различные
		0,8	50	40—160	LiNbO_3	»	схемы фазового синхронизма
14	$6 \cdot 10^5$	$1,4 \cdot 10^{-2}$	190	—	ZnO	»	Комнатная
14	$6 \cdot 10^5$	$3 \cdot 10^{-3}$	180	—	CdS	»	»
14	$6 \cdot 10^5$	$0,74 \cdot 10^{-3}$	91	—	ZnS	»	»
14	$6 \cdot 10^5$	$0,15 \cdot 10^{-3}$	150	—	CdSe	»	»

Источники излучения, основанные на смещении частот электромагнитного излучения в нелинейных кристаллах, обычно состоят из следующих элементов (рис. 1). Излучение от двух лазеров 2, которые дисперсионными элементами 1 (например, дифракционными решетками), настраиваются на частоты ω_1 и ω_2 , с помощью системы зеркал 3 направляются в кристалл-смеситель 4. Затем излучение на частоте $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$ регистрируется приемником 5 *). В конкретных установках по генерации излучения дальнего ИК диапазона существуют отклонения от этой схемы.

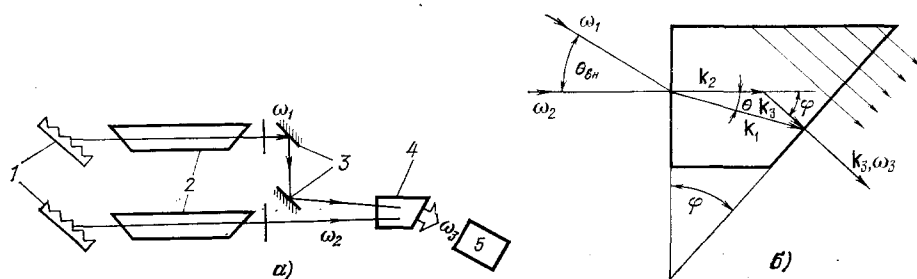


Рис. 1. а) Схема источника излучения дальнего ИК диапазона (выделяется разностная частота излучения двух лазеров); б) неколлинеарный фазовый синхронизм.

Так, например, в случае коллинеарного фазового синхронизма целесообразно из одного лазера получать излучение двух частот ω_1 и ω_2 , распространяющееся в одном направлении^{14,38}. В работах^{50,51} реализован оригинальный способ генерации излучения дальнего ИК диапазона выпрямлением пикосекундных лазерных импульсов.

Рассмотрим подробнее источники излучения дальнего ИК диапазона на смещении излучения двух CO_2 -лазеров. Этот способ имеет преимущества перед другими способами, заключающиеся в простоте CO_2 -лазера и довольно высокой мощности генерируемого излучения дальнего ИК диапазона^{16-32,35-37}.

CO_2 -лазер представляет значительный интерес с точки зрения использования в качестве источника накачки для генерации излучения дальнего ИК диапазона. Это связано с тем, что полоса генерации CO_2 -лазера состоит из набора колебательно-вращательных переходов молекулы CO_2 , находящихся в диапазоне $920-1060 \text{ см}^{-1}$, с расстоянием между вращательными подуровнями порядка нескольких обратных сантиметров³⁹. Таким образом, разностная частота от двух CO_2 -лазеров находится в диапазоне $2-140 \text{ см}^{-1}$ ($5000-70 \text{ мкм}$). Комбинируя различные частоты двух CO_2 -лазеров, можно получить более 3000 дискретных частот, находящихся в указанном диапазоне. Применение CO_2 -лазера высокого давления, у которого вследствие столкновительного уширения произошло перекрытие вращательных подуровней⁴⁰, открывает возможность создания непрерывно перестраиваемого источника излучения в дальнем ИК диапазоне. Создание компактных CO_2 -лазеров непрерывного действия сделало возможным получение непрерывной генерации в дальнем ИК диапазоне²⁷.

В работах²¹²⁻²¹⁴ излучение CO_2 -лазера накачки с частотой ω_1 направляется в кристалл, где происходит вынужденное комбинационное рассеяние излучения с частотой ω_1 на электронах проводимости в полупроводнике, помещенном в магнитное поле (лазер на перевороте спина).

*) По приемникам излучения дальнего ИК диапазона имеется обширная библиография, например¹⁹⁷⁻²⁰⁶, с помощью которой исследователь может сделать выбор приемника, подходящего для проводимого эксперимента.

Затем стоксова компонента частоты ω_2 смешивается с излучением опорного лазера частоты ω_1 и генерируется излучение дальнего ИК диапазона частоты $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$. Этот способ интересен возможностью плавной перестройки частоты излучения дальнего ИК диапазона.

Нелинейной средой в источниках излучения дальнего ИК диапазона, основанных на преобразовании частоты двух CO_2 -лазеров, служили следующие монокристаллы: InSb ¹⁷⁻²⁰, ZnGeP_2 ²¹, GaAs ^{22-32, 35}, ZnSe ¹⁸, CdTe ³⁶, а также магнитоактивная плазма в InSb ³⁷. Из указанных материалов следует выделить кристалл GaAs . Этот кристалл удовлетворяет требованиям, предъявляемым к кристаллам-смесителям. Кристалл прозрачен как в дальнем ИК диапазоне, так и в области 10 мкм. Коэффициенты поглощения и преломления для GaAs хорошо известны при различных температурах ⁴¹⁻⁴³. Дисперсия GaAs позволяет осуществить в нем неколлинеарный фазовый синхронизм для взаимодействующих волн ²⁸ (см. рис. 1). GaAs обладает сравнительно большой нелинейностью для процесса выделения разностной частоты ²³. При хорошей обработке поверхности кристалла GaAs обладает высоким порогом поверхностного разрушения ⁴⁴. Кристаллы GaAs достаточно хорошего качества широко распространены и выпускаются отечественной промышленностью.

Схема экспериментальной установки для генерации излучения дальнего ИК диапазона выделением разностной частоты двух CO_2 -лазеров в кристалле GaAs приведена на рис. 1. Так как в GaAs осуществляется неколлинеарный фазовый синхронизм, выходная грань кристалла срезана под углом $\varphi = 21^\circ$ для предотвращения полного внутреннего отражения дальнего ИК излучения на этой грани.

Следует отметить, что источники излучения дальнего ИК диапазона, основанные на выделении разностной частоты двух CO_2 -лазеров в кристалле GaAs , имеют сравнительно небольшие размеры и могут быть размещены на лабораторном столе. Так, в работе ³² с помощью двух импульсных CO_2 -лазеров мощностью $2 \cdot 10^6$ Вт (эта цифра легко достижима с помощью компактных ТЕА CO_2 -лазеров) получено излучение дальнего ИК диапазона, перестраиваемое в диапазоне $5-140 \text{ см}^{-1}$, с мощностью на длине волны 100 мкм (100 см^{-1}) $\sim 4 \cdot 10^3$ Вт. Однако в этой работе GaAs использовался при криогенных температурах, что технически усложнило эксперимент. Для получения эффективной генерации в диапазоне $30-2 \text{ см}^{-1}$ ($300-5000$ мкм) можно использовать кристалл GaAs при комнатной температуре ^{29, 30}, что делает такие источники излучения дальнего ИК диапазона сравнительно простыми в изготовлении и эксплуатации. В подобной схеме нетрудно получить излучение в диапазоне $30-2 \text{ см}^{-1}$ с мощностью 10 Вт на длине волны 400 мкм (25 см^{-1}) при мощности излучения накачки $3 \cdot 10^5$ Вт. Шириной спектра излучения дальнего ИК диапазона в таком источнике можно управлять, изменяя спектр генерации CO_2 -лазеров накачки. Так, например, при использовании в качестве источника накачки «гибридного» CO_2 -лазера ⁴⁶ может быть получена ширина линии импульсной генерации $\sim 50 \text{ МГц}$.

3. ПОЛЯРИТОННЫЕ ГЕНЕРАТОРЫ ИЗЛУЧЕНИЯ ДАЛЬНОГО ИК ДИАПАЗОНА

Как уже отмечалось во введении, процессы ВКР в газах, определяемые нелинейной восприимчивостью третьего порядка $d_{(3)}$, когда частота излучения накачки не имеет резонанса с каким-либо разрешенным переходом в рассеивающей среде, позволили в экспериментах генерировать излучение с длинами волн вплоть до 20 мкм. Упомянутое ВКР в параводороде с накачкой импульсным CO_2 -лазером позволяет иметь длину волн

стоксова излучения вблизи 17 мкм. Этот процесс сопровождался вращательным переходом в параводороде с $\Delta\nu \sim 354 \text{ см}^{-1}$ ²²⁴. В другом случае авторами ²²⁶ наблюдалось ВКР в парах Cs при накачке второй гармоникой ($\lambda = 3470 \text{ \AA}$) излучения рубинового лазера с синхронизацией мод. Длина волны стоксова излучения в этой работе была $\sim 20 \text{ мкм}$, и процесс сопровождался электронным переходом в Cs.

Препятствием для увеличения длины волны стоксова излучения подбором частот лазера накачки и перехода в рассеивающей среде является квадратичное уменьшение коэффициента усиления ВКР с уменьшением частоты стоксова излучения ⁹ и, следовательно, увеличение порога ВКР (в том смысле, как это отмечалось во введении).

Возможность генерировать с помощью ВКР процессов излучение дальнего ИК диапазона появилась в результате экспериментальной реализации резонансного ВКР в газах (см. гл. 4). Достаточно низкий для экспериментальной реализации порог резонансного ВКР (РВКР) является следствием резонанса излучения накачки с одним из разрешенных переходов в рассеивающей среде ^{137-139, 207, 209-211}.

Параметрические генераторы света (ПГС), в основе действия которых лежит процесс параметрической сверхлюминесценции ²¹⁵, определяемый квадратичной нелинейной восприимчивостью $d_{(2)}$, дают возможность генерировать излучение с длинами волн до 16 мкм ^{58, 59}, когда частоты волн накачки (ω_1) и излучения ПГС (ω_2, ω_3) расположены вдали от частот решеточного поглощения кристалла. Имеющиеся кристаллы позволяют расширить этот диапазон до 22 мкм ⁷⁴. Параметрические генераторы накачиваются лазерами видимого или ближнего ИК диапазона, при этом по волнам с частотами ω_2 и ω_3 или одной из них создается обратная связь с помощью резонатора. ПГС работают при выполнении условий фазового синхронизма

$$\omega_1 = \omega_2 + \omega_3, \quad \mathbf{k}_1 = \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_3, \quad (3.4)$$

чаще всего коллинеарного ($\mathbf{k}_1 \parallel \mathbf{k}_2 \parallel \mathbf{k}_3$). Изменение частот генерации ω_2, ω_3 осуществляется изменением геометрии фазового синхронизма и выбором $n_1(\omega_1), n_2(\omega_2), n_3(\omega_3)$ в дисперсионных характеристиках нелинейного элемента ПГС. Порог параметрической генерации (в том смысле, как это отмечалось во введении) определяется из условия равенства коэффициента усиления потерям ^{9, 10, 57, 58}. Уменьшение одной из генерируемых ПГС частот (например, ω_3) приводит к приближению частоты ω_3 к полосе решеточного поглощения нелинейного кристалла, где волна с частотой ω_3 оказывается сильно связанной с колебаниями кристаллической решетки и называется поляритоном (поляритонной модой) ⁷⁰. Волна с частотой ω_3 при этом сильно поглощается, что приводит к повышению порога возбуждения параметрической генерации. В этой области частот выполнение условий фазового синхронизма в коллинеарной геометрии становится невозможным.

Если, однако, волна с частотой ω_3 отделена на дисперсионной кривой $n(\omega)$ от волн ω_1, ω_2 полосой решеточного поглощения, то возможно выполнение неколлинеарного фазового синхронизма (векторы $\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3$ образуют треугольник) ⁶⁰⁻⁶⁹. Близость частоты ω_3 к полосе решеточного поглощения в нелинейном кристалле порождает специфические особенности нелинейного взаимодействия волн в этой области частот, которое называется вынужденным рассеянием на поляритоне ²¹⁵. Колебания кристаллической решетки в поляритонной моде кристаллов без центра инверсии (имеется квадратичная нелинейная восприимчивость $d_{(2)}$!) активны в комбинационном рассеянии ⁴⁵, так что на такой поляритонной моде возможно ВКР, определяемое нелинейной восприимчивостью $d_{(3)}$. Таким образом,

нелинейное взаимодействие волн при вынужденном рассеянии на поляритоне определяется комбинацией $d_{(2)}$ и $d_{(3)}$ и может быть описано как ВКР, определяемое нелинейной восприимчивостью $d_{(3)}^{\text{эфф}}$ ²¹⁵. Однако $d_{(3)}$ имеет резонанс на частоте оптического фонона в кристалле и дает заметный вклад в рассеяние на поляритоне лишь в узкой области частот вблизи

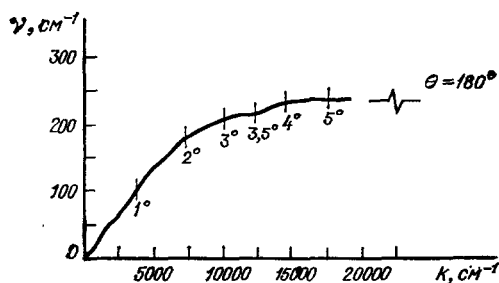


Рис. 2. Дисперсия поляритона в ниобате лития.

$\nu = 1/\lambda_s$, $k = 2\pi n_s/\lambda_s$; числа на кривой дают значения углов θ , соответствующих синхронизму для частоты рубинового лазера.

этого резонанса. В области частот вдали от резонанса, где выполняется неколлинеарный фазовый синхронизм, вынужденное рассеяние на поляритоне может быть описано как параметрическая генерация²¹⁵.

Экспериментальные устройства, в которых реализуется вынужденное рассеяние на поляритоне, называют поляритонными генераторами, а волну с частотой ω_2 — стоксовой волной⁶² (ω_1 — частота накачки).

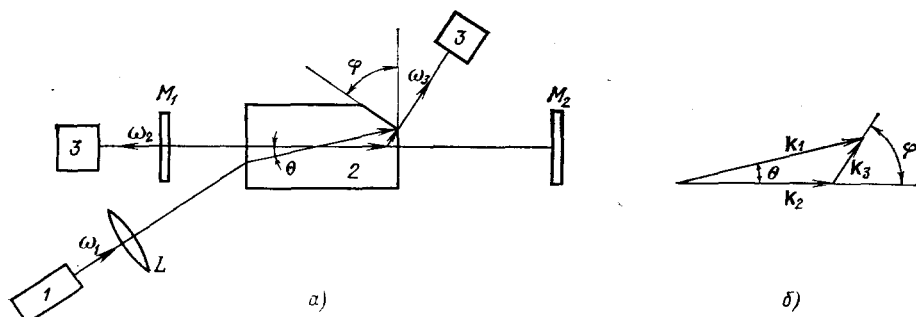


Рис. 3. а) Схема поляритонного генератора излучения дальнего ИК диапазона (M_1 , M_2 — зеркала, L — линза; 1 — лазер накачки, 2 — нелинейный кристалл, 3 — диагностическая аппаратура); б) фазовый синхронизм.

В настоящее время наиболее подходящим нелинейным кристаллом для поляритонных генераторов излучения дальнего ИК диапазона является кристалл LiNbO_3 . В видимом диапазоне электромагнитных волн коэффициент поглощения LiNbO_3 $2\gamma_{1,2} \approx 0,08 \text{ см}^{-1}$, а показатель преломления $n_{1,2} = 2,2$ ⁷¹. Дисперсия поляритона 248 см^{-1} приведена на рис. 2⁷². Из этих данных следует, что в LiNbO_3 при волне накачки, распространяющейся перпендикулярно оптической оси, с вектором \vec{E}_1 , параллельным оптической оси, можно выполнить условия (3.1) для трех необыкновенных волн, т. е. осуществить неколлинеарный фазовый синхронизм (рис. 3, б). Выражения для углов синхронизма получаются аналогично случаю фазового синхронизма для смешения двух волн в изотропной среде:

$$\theta = \frac{\omega_3}{\omega_1} \sqrt{\left(\frac{n_3}{n_1}\right)^2 - 1}, \quad \sin \varphi = \sqrt{1 - \left(\frac{n_1}{n_3}\right)^2}. \quad (3.2)$$

Следует отметить, что при малых $\Delta n/n$ выражение (3.2) переходит в (2.4). Подставив численные значения величин, входящих в (3.2), получим

для LiNbO_3 углы θ и φ внутри кристалла для поляритонного генератора, накачиваемого излучением рубинового лазера: θ (град) = $10^{-2} \omega_3$ (см^{-1}); $\varphi \approx 60^\circ$. Так как угол φ больше угла полного внутреннего отражения, то для вывода излучения дальнего ИК диапазона из кристалла на образце делается срез под углом φ .

Типичная схема экспериментальной установки для генерации излучения дальнего ИК диапазона с помощью вынужденного рассеяния на поляритоне приведена на рис. 3, а. Линза L фокусирует излучение лазера, работающего в режиме гигантского импульса, в кристалл. Зеркала M_1 и M_2 образуют резонатор по стоксовому излучению (ω_2 , \mathbf{k}_2) (в некоторых экспериментах зеркалами служили плоскопараллельные грани кристалла). Стоксово излучение и излучение дальнего ИК (ω_3 , \mathbf{k}_3) диапазона направляются в диагностическую аппаратуру. Перестройка излучения дальнего ИК диапазона по длине волны осуществляется изменением угла θ между осью резонатора, образованного зеркалами M_1 и M_2 и направлением распространения волны накачки.

Исследования поляритонных генераторов излучения дальнего ИК диапазона идут как по пути анализа непосредственно излучения дальнего ИК диапазона, так и излучения на стоксовой частоте. В работе ⁶⁵ впервые наблюдалось перестраиваемое по частоте стоксово излучение. В этой работе импульс излучения рубинового лазера ($\lambda_1 = 0,6943$ мкм) длительностью $2 \cdot 10^{-8}$ с фокусировался в кристалл LiNbO_3 , помещенный в резонатор по стоксовому излучению, до плотностей мощности 10^8 Вт/см². Стоксова частота ω_2 изменялась с изменением угла θ . При этом излучение на частоте ω_2 , соответствующее рассеянию на поляритоне 248 см^{-1} , перестраивалось на 36 см^{-1} изменением угла θ .

Частота ω_2 , а следовательно, и частота ω_3 , рассчитанные по формуле (3.2), не всегда соответствуют углу θ между осью резонатора и направлением распространения волны накачки \mathbf{k}_1 . Причина этого кроется в том, что из-за больших коэффициентов усиления стоксово излучение (ω_2 , \mathbf{k}_2) может оказаться неколлинеарным оси резонатора. Оно «разгорается» от уровня шумов за несколько проходов внутри резонатора в направлении, не совпадающем с осью резонатора, и с частотой, определяемой для этого направления условиями (3.2). Это направление определяется соотношением коэффициента усиления для излучения с частотой ω_2 и потерями в резонаторе. Такие особенности поляритонного генератора детально исследовались в работе ⁶⁸.

В работах ^{63, 64, 67, 69} исследовалась генерация излучения дальнего ИК диапазона при рассеянии излучения рубинового лазера на поляритоне 248 см^{-1} в кристалле LiNbO_3 . Получена перестройка излучения дальнего ИК диапазона в интервале $238\text{—}50$ мкм ($42\text{—}200 \text{ см}^{-1}$) при мощности несколько ватт, когда мощность излучения накачки составляла несколько мегаватт. Расширение перестройки в коротковолновую область ограничивается частотой поляритона, а в длинноволновую — возможностью ввода излучения накачки в резонатор по стоксовому излучению. Ширина линии излучения дальнего ИК диапазона определялась по ширине линии стоксова излучения и составляла несколько десятых долей обратного сантиметра. Эта величина дает хорошее согласие с соотношением Мэнли — Роу (см. ⁵⁷) для связи мощности стоксова излучения (P_2) и разности мощности излучения накачки на входе ($P_{1\text{вх}}$) и выходе ($P_{1\text{вых}}$) из кристалла $P_2 = (\omega_2/\omega_1) (P_{1\text{вх}} - P_{1\text{вых}})$. Из-за сильного затухания излучения дальнего ИК диапазона в кристалле для связи стоксова и дальнего ИК излучения следует применять соотношение с учетом затухания ^{9, 61, 65}

$$P_3 = P_2 \frac{\omega_3}{\omega_2} \frac{1}{1 + (2\gamma_3/\mu S \cos \varphi)},$$

где g_s — коэффициент усиления стоксовой волны. Эта формула дает удовлетворительное согласие с экспериментальными результатами.

Применение лазеров накачки с большей длиной волны, чем у рубинового лазера, позволяет расширить интервал перестройки излучения дальнего ИК диапазона в длинноволновую область. С увеличением длины волны излучения накачки согласно (3.2) растет угол θ и появляется возможность ввода излучения накачки во внешний резонатор по стоксовому излучению под углами, обеспечивающими синхронизм для генерации длинноволнового излучения. В работе ⁶⁵ источником накачки служил неодимовый лазер ($\lambda_1 = 1,06$ мкм). Излучение лазера фокусировалось в кристалле LiNbO_3 до плотностей мощности $5 \cdot 10^7$ Вт/см². При этом получена генерация излучения дальнего ИК диапазона в интервале 153—708 мкм ($14,1$ — $65,4$ см⁻¹). Зарегистрирована мощность излучения дальнего ИК диапазона 10—100 Вт, в зависимости от длины волны.

Из-за высоких порогов вынужденного рассеяния на поляритоне ($I_{\text{пор}} \sim 4 \cdot 10^7$ Вт/см²) в качестве источников накачки используют мощные лазеры в режиме модуляции добротности с небольшими длительностями излучения (10—20 нс). Это приводит к тому, что стоксово излучение, по которому устроена обратная связь, за время импульса едва успевает «разгореться» от уровня шумов до регистрируемого значения. Нестационарное поведение поляритонных генераторов исследовалось в ⁶⁹.

Следует отметить, что генерация излучения дальнего ИК диапазона также получена в кварце при накачке излучением рубинового лазера ⁶⁶. Кристалл кварца при этом охлаждался до температуры 10 К. В этой работе не сообщается о мощности зарегистрированного излучения дальнего ИК диапазона. Анализ экспериментальных данных показывает, что регистрировалось излучение с длиной волны $\lambda_3 \sim 75$ мкм (130 см⁻¹).

В определенном смысле близким к поляритонным генераторам излучения дальнего ИК диапазона оказывается лазер на перевороте спина намагниченных электронов проводимости в полупроводнике (spin-flip Raman laser).

В основе работы такого лазера лежит ВКР на переходе намагниченных электронов проводимости между спиновыми подуровнями уровней Ландау в охлажденном до температуры $T \sim 20$ К полупроводнике (часто InSb) ²³³. Частота ω_{sp} рассеивающего перехода в магнитном поле напряженностью H определяется как $\omega_{\text{sp}} = \omega_L - \omega_S = (2/\hbar) g_{\text{B}} \mu_B H$, где ω_L — частота накачки, ω_S — частота стоксова излучения, μ_B — магнетон Бора, g — фактор Ланде. Лазеры на перевороте спина чаще всего накачиваются либо CO_2 -лазером ($\lambda_1 \sim 10$ мкм), либо CO -лазером ($\lambda_2 \sim 5$ мкм). Изменение магнитного поля дает возможность непрерывно изменять длину волны λ_3 стоксова излучения. Таким образом, лазер на перевороте спина может перестраиваться по длинам волн вблизи $\lambda_1 \sim 10$ мкм ($\lambda_S > \lambda_1$) в случае накачки CO_2 -лазером и вблизи $\lambda_2 \sim 5$ мкм ($\lambda_S > \lambda_2$) в случае накачки CO -лазером.

В то же время переход электронов между спиновыми подуровнями при ВКР на перевороте спина является коллективным возбуждением в полупроводнике, связанным с электромагнитной волной ⁷³. В ⁷³ экспериментально реализован вывод из полупроводникового кристалла этой, так называемой «спиновой» волны, частота которой ω_{sp} , изменяемая магнитным полем, попадает в дальний ИК диапазон. Это обстоятельство позволяет упомянуть о лазерах на перевороте спина вместе с поляритонными генераторами излучения дальнего ИК диапазона.

Наряду с преимуществами, которыми обладают поляритонные генераторы (использование одного лазера накачки, отсутствие необходимости изменения частоты этого лазера, непрерывная перестройка по частоте

излучения дальнего ИК диапазона), имеются трудности в экспериментальной реализации поляритонного генератора. Эти трудности связаны с тем, что экспериментальные условия должны быть выбраны таким образом, чтобы мощность лазера накачки попала в «вилку» — была больше порога вынужденного рассеяния на поляритоне, но ниже порога разрушения кристалла. Если порог разрушения ниже порога вынужденного рассеяния на поляритоне, то создание поляритонного генератора невозможно.

4. ГАЗОВЫЕ ЛАЗЕРЫ С ОПТИЧЕСКОЙ НАКАЧКОЙ В ДАЛЬНОМ ИК ДИАПАЗОНЕ

а) Общие принципы работы газовых лазеров с оптической накачкой

Лазеры с оптической накачкой работают в разных областях спектра, в том числе и в дальнем ИК диапазоне (от $\lambda = 30$ мкм до $\lambda = 2000$ мкм). В качестве рабочей среды таких лазеров используются как твердые тела и жидкости, так и газы.

1) Трех- и четырехуровневые лазеры с оптической накачкой. Источниками накачки таких лазеров могут быть лампы с широким спектром излучения и лазеры. В дальнем ИК диапазоне

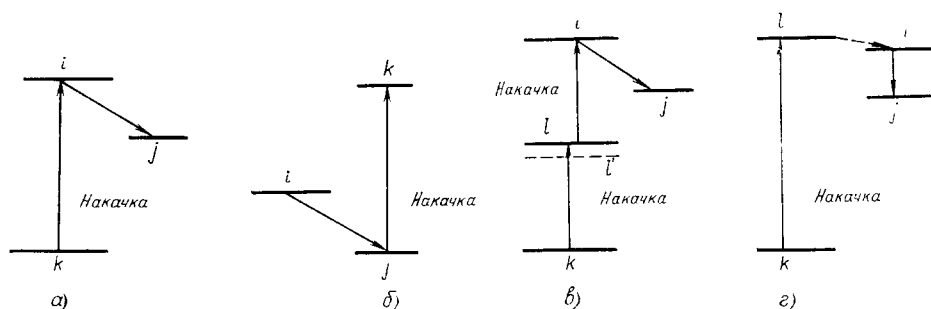


Рис. 4. Схемы работы лазеров с оптической накачкой.

работают лазеры с газовой активной средой, накачиваемые лазерами ^{75,78}. В рабочем газе поглощение излучения накачки приводит к инверсии населенности Δn_{ij} верхнего рабочего уровня i по отношению к нижнему j , так что на частоте перехода ν_{ij} возникает коэффициент усиления излучения γ . На рис. 4 ⁷⁸ показаны различные варианты трех- и четырехуровневой схемы работы лазеров с оптической накачкой. В трехуровневых схемах инверсия образуется либо в результате «заселения» верхнего лазерного уровня i , либо в результате опустошения нижнего уровня j (рис. 4, а, б). Инверсия населенностей в четырехуровневой схеме может достигаться за счет последовательного перевода активных частиц вначале на уровень l , а затем с уровня l на уровень i (рис. 4, в). При этом используется двухчастотная накачка (ν_{kl} и ν_{li}). Работа лазера по такой схеме возможна и тогда, когда промежуточный уровень l отстроен от резонанса поглощения в положение l' , а также когда уровень l вовсе отсутствует. Эффективность накачки в двух последних случаях зависит от нелинейных свойств среды. В четырехуровневой схеме на рис. 4, г возбуждение среды (заселение уровня i) происходит за счет радиационного или безызлучательного перехода частиц $l \rightarrow i$ при накачке частотой ν_{kl} .

Работа лазеров по схемам 4.1 может сопровождаться ВКР-процессами, если рабочая среда обладает достаточными нелинейными свойствами.

2) **Х а р а к т е р н ы е м о щ н о с т и.** При возбуждении рабочего газа коротким (по сравнению с временем релаксации газа) мощным импульсом лазерного излучения генерация в дальнем ИК диапазоне может быть интенсивной (~ 1 Мвт). В случае стационарной (или квазистационарной) накачки мощности стационарного излучения в дальнем ИК диапазоне могут быть от нескольких микроватт до нескольких милливатт⁷⁸.

3) **К о э ф ф и ц и е н т у с и л е н и я.** Его зависимость от давления и мощности накачки. Выражение для коэффициента усиления γ (в см^{-1}) активной среды имеет вид⁷⁷

$$\gamma(v) = F_{ij} \left(n_i - n_j \frac{g_i}{g_j} \right) S(v, v_{ij}), \quad (4.1)$$

где n_i и n_j — населенности уровней i и j (в см^{-3} , см. рис. 4); g_i и g_j — статистические веса состояний i и j ; S — функция контура линии (в Гц^{-1}).

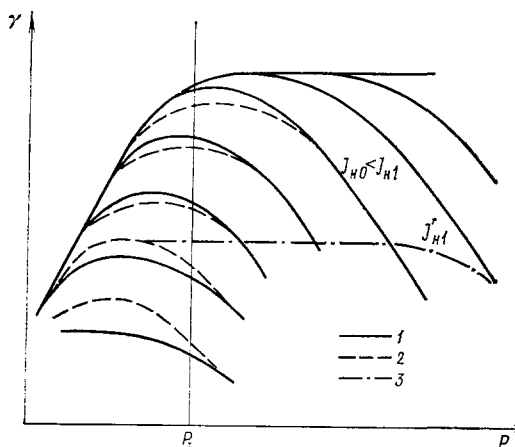


Рис. 5. Зависимость коэффициента усиления лазера от давления при различных интенсивностях накачки.

1 — при накачке излучением с широким спектром, 2 — при одночастотной накачке, 3 — при отстройке частоты излучения накачки от частоты перехода рабочего газа,

F_{ij} может быть выражено через безразмерную «силу осциллятора» f_{ij} , или через длину волны перехода λ_{ij} и один из коэффициентов Эйнштейна A_{ij} (или B_{ij}), или через длину волны λ_{ij} и дипольный момент перехода μ_{ij} :

$$F_{ij} = 2,654 \cdot 10^{-2} f_{ij} = 3,979 \cdot 10^{-10} \lambda_{ij}^2 A_{ij} =$$

$$= \frac{h B_{ij}}{\lambda_{ij}} = 1,2478 \cdot 10^{-4} \frac{\mu_{ij}^2}{\lambda_{ij}}, \quad (4.2)$$

где A_{ij} — в с^{-1} , μ_{ij} — в дебаях, λ_{ij} — в мкм, h — постоянная Планка. Коэффициент усиления оптически накачиваемой активной среды (газа) зависит от его давления, интенсивности накачки и отстройки частоты излучения накачки от центра линии поглощения газа. На рис. 5 приведена диаграмма, иллюстрирующая зависимость γ от давления и интенсивности накачки; здесь же показано влияние ширины спектра накачки и отстройки излучения накачки от центра линии поглощения⁷⁸. На рис. 5 p_1 — давление, при котором столкновительное уширение линии усиления (перехода v_{ij}) сравнивается с доплеровским. Обычно p_1 бывает порядка нескольких торр при комнатной температуре. При достаточно интенсивной накачке (в пределе — насыщающей переход $k \rightarrow i$) и при $p < p_1$ коэффициент усиления γ растет с ростом p из-за увеличения плотности актив-

ных частиц. При росте $p > p_1$ и при насыщающей переход интенсивности накачки рост числа активных частиц компенсируется увеличением столкновительной ширины линии усиления. Если насыщения нет ($I \leq I_n$), то столкновительное уширение линии усиления уменьшает γ (конечно для времен $\tau \ll \tau_{i1}$). Пунктирные кривые показывают изменение соответствующих зависимостей, когда накачка «одночастотная» (с узким спектром). При малых интенсивностях накачки сужение ее спектра уменьшает разброс по скоростям активных частиц и, вследствие этого, приводит к сужению линии усиления и к увеличению γ . При больших интенсивностях одночастотная накачка «истощает» начальное состояние, и на доплеровском контуре уровня k образуется провал. Однако теперь уже и разброс по скоростям в состоянии i растет из-за динамического Штарк-эффекта⁹⁰, уширяющего уровень i , так что γ здесь меньше соответствующих γ для накачки с относительно широким спектром. Влияние отстройки частоты накачки от центра линии поглощения демонстрируется штрихпунктирной кривой (I_{n1}), которой соответствует сплошная кривая (J_{n1}) без отстройки. Из рис. 5 видно, что оптимальными для достижения γ_{\max} при минимальной интенсивности накачки являются условия $p \sim p_1$, $I \sim I_{n0}$ (без отстройки, спектр накачки относительно широк)⁷⁸.

4) У р о в н и и п р а в и л а о т б о р а. В дальнем ИК диапазоне ($\lambda = 30 \div 2000$ мкм) работают лазеры на молекулярных газах, излучающий переход которых $i \rightarrow j$ является либо чисто вращательным (для

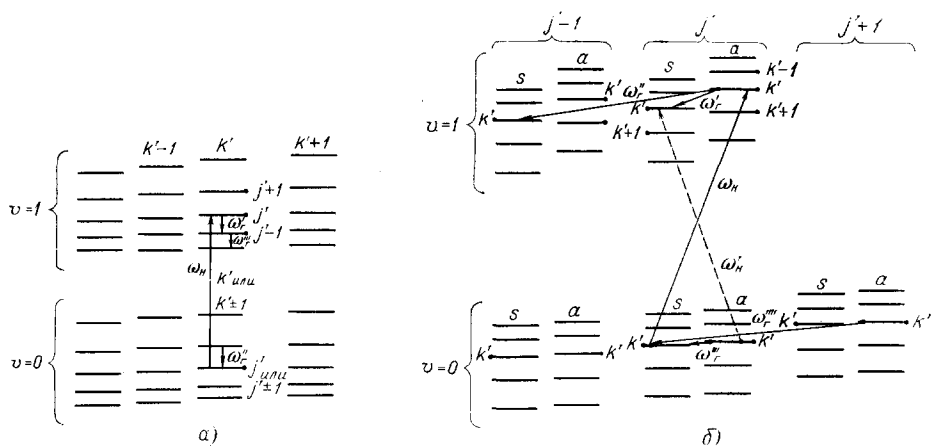


Рис. 6. Частичная схема уровней молекул CH_3F (а), NH_3 (б).

двухатомных молекул, молекул типа асимметричного и симметричного волчка, кроме NH_3), либо инверсионным или инверсионно-вращательным (для NH_3 ⁷⁸). На рис. 6, а приведена примерная схема колебательно-вращательных уровней молекулы типа симметричного волчка (например, CH_3F), где показаны переходы накачки и генерации в дальнем ИК диапазоне⁷⁵. На рис. 6, а v' , $v' + 1$ — колебательные состояния какой-либо колебательной моды молекулы (в нижнем электронном состоянии), а «подуровни», соответствующие индексам j и k , — вращательная структура (k — индекс проекции вращательного момента импульса на ось молекулы). Для линейных молекул $k = 0$; в остальном схема рис. 6, а справедлива для них. На рис. 6, б показана схема части уровней вблизи основного колебательного состояния ($v = 0,1$) моды ν_2 аммиака NH_3 . Молекула NH_3 — и

симметричный волчок, каждый колебательный уровень которого расщеплен на два, соответствующих симметричному и асимметричному состояниям (инверсионное расщепление). Величина инверсионного расщепления для моды ν_2 растет с ростом ν ; с увеличением числа k энергия уровня убывает⁸¹⁻⁸⁴. Инверсионное расщепление колебательных уровней, отличающее молекулу NH_3 от других молекул типа симметричного волчка, является следствием «туннелирования» атома N через плоскость треугольника, образованного атомами водорода в NH_3 .

Колебательные состояния молекул типа асимметричного волчка (например, H_2O , CH_3OH и др.) тоже имеют вращательную (j , k) структуру, причем здесь отсутствует вырождение уровней с индексами $-k$, $+k$ (в отличие от симметричных волчков). Правила отбора (для симметричных волчков) для колебательно-вращательных переходов в поглощении (накачка ω_n) иллюстрируются рис. 6, а; $\Delta\nu = 1$; $\Delta j = 0, \pm 1$; $\Delta k = 0, \pm 1$. Правила отбора для колебательно-вращательных переходов в NH_3 при поглощении света (накачка $\omega_n \sim \omega'_n$) иллюстрируются рис. 6, б; $\Delta\nu = 1$; $\Delta j = 0, \pm 1$; $\Delta k = 0$; $s \rightarrow a$ или $a \rightarrow \tilde{s}$. Для линейных молекул $k = 0$, поэтому при поглощении излучения накачки $\Delta\nu = 1$; $\Delta j = 0, \pm 1$.

При излучении света чисто вращательными переходами правила отбора для линейных молекул $\Delta j = -1$; для молекул типа симметричного волчка $\Delta j = -1$; $\Delta k = 0$. Часто (например, в NH_3 и др.) оказывается возможной каскадная генерация, когда излучающий переход создает инверсную населенность на нижнем лазерном уровне, как это иллюстрируется рис. 6, а (ω'_1 и ω''_1). Для NH_3 (см. рис. 6, б) правила отбора при излучении $\Delta j = 0, \pm 1$; $\Delta k = 0$; $s \rightarrow a$ или $a \rightarrow s$; здесь $\Delta j = 0, 1$ оказываются возможными благодаря инверсионному расщеплению уровней. Для асимметричных волчков запреты, налагаемые правилами отбора, оказываются более слабыми, чем для симметричных молекул, так что количество линий поглощения, связанных с колебательно-вращательными переходами в асимметричных молекулах, значительно возрастает⁷⁸.

5) **О п т и м а л ь н о е д а в л е н и е.** Оптически накачиваемые лазеры дальнего ИК диапазона обычно работают при давлениях от 0,01 Торр до нескольких Торр (вблизи оптимума по η). Увеличению рабочего давления (для достижения большой мощности) препятствуют два обстоятельства. Во-первых, это столкновительная релаксация верхнего уровня или, что то же самое, быстрое установление равновесного распределения населенности вращательных уровней (с температурой порядка поступательной температуры газа T_r). Во-вторых, это самопоглощение генерируемого излучения вращательной структурой основного колебательного состояния, которая имеет больцмановское распределение населенностей. Уменьшение давления выявляет небольшой относительный сдвиг во вращательных структурах основного колебательного состояния по сравнению с более высокими, так что самопоглощение уменьшается вследствие выхода из резонанса. Особенно чувствительна к самопоглощению схема накачки и генерации рис. 4, б, когда каждый вращательный переход является k -мультиплетом (например, для симметричных волчков)⁷⁸.

6) **П о л я р и з а ц и я и з л у ч е н и я.** Интересной особенностью лазеров дальнего ИК диапазона с оптической накачкой является тот факт, что при линейно поляризованном излучении накачки излучение генерации оказывается чаще всего линейно поляризованным (см., например, ⁷⁸). Степень поляризации лазерного излучения при линейно поляризованной накачке оказывается высокой, когда накачка возбуждает уровни с $j \gg k$; в противном случае ($j \sim k$) степень поляризации лазерного излучения

низкая. Такая зависимость поляризации лазерного излучения от соотношения j и k связана с уменьшением времени столкновительной реориентации возбужденных молекул с $j \sim k$ по сравнению с молекулами, для которых $j \gg k$. Соотношение поляризаций накачки и лазерной генерации (параллельны, взаимно ортогональны) зависит от совпадения или различия правил отбора по j для накачки и генерации⁷⁹. Если $|\Delta j|$ накачки равно $|\Delta j|$ генерации, то поляризации накачки и генерации параллельны, в другом случае — взаимно ортогональны.

б) Экспериментальная техника

Экспериментальные установки, в которых наблюдается генерация излучения при оптической накачке газа, весьма разнообразны.

1) Оптическая схема. Типичная схема устройства для генерации излучения дальнего ИК диапазона оптической накачкой газа показано на рис. 7. Обычно это откачиваемая на вакуум камера метровой длины (вдоль оси резонатора). Зеркала резонатора чаще всего вставляются внутри

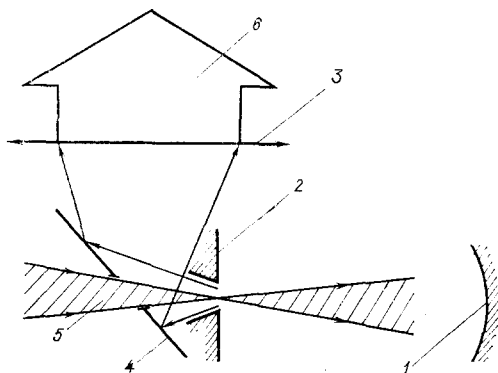


Рис. 7. Оптическая схема лазера дальнего ИК диапазона.

1 — глухое сферическое зеркало, 2 — плоское зеркало с отверстиями, 3 — оконная линза, 4 — разделитель пучков, 5 — излучение накачки, 6 — излучение дальнего ИК диапазона.

камеры, чтобы избежать поглощения генерируемого излучения в резонаторе атмосферой. Связь резонатора, заполненного оптически накачиваемым газом, с излучением накачки осуществляется через отверстие в одном из зеркал, куда фокусируется пучок накачки. Через это же отверстие генерируемое излучение, направляемое рупором, выходит из резонатора. Разделение пучков накачки и генерации происходит установленным наклонно зеркалом с отверстием — «разделителем пучков». Пучок накачки малого поперечного сечения проходит в ответствии разделителя пучков, а излучение генерации, образующее на разделителе большое пятно, отражается и через линзу выходит из генератора.

Поскольку вывод излучения дальнего ИК диапазона осуществляется через то же отверстие связи в зеркале, что и накачка, необходимо применение конического рупора, чтобы уменьшить расходимость генерируемого излучения, как это делается в СВЧ технике. Использование одного отверстия связи для излучения накачки и дальнего ИК диапазона затрудняет оптимизацию связи. Возможности оптимизации расширяются, если для связи резонатора с генерируемым излучением используется зеркало, полностью отражающее излучение накачки, но частично пропускающее излучение дальнего ИК диапазона (гибридное зеркало⁸⁵). Связь резонатора с излучением накачки, как и прежде, осуществляется через малое отверстие в металлическом зеркале.

При накачке газа излучением мощного импульсного ТЕА CO_2 -лазера, когда частота поглощающего перехода в газе достаточно близка к частоте накачки, может оказаться возможным режим так называемого «сверхизлучения»^{100, 120–122}. В этом режиме обычно излучение накачки поглощается за один проход в кювете длиной 1–5 м и диаметром до 10 см, а генерация излучения дальнего ИК диапазона происходит без применения зеркала. Отделение генерируемого излучения в такой схеме осуществляется с помощью фильтра в конце кюветы, не пропускающего излучение накачки.

2) **В о л н о в о д н ы е л а з е р ы.** Для лазеров с оптической накачкой непрерывного действия известную трудность представляет недостаточная скорость расселения нижнего лазерного уровня. Так как дезактивация частиц, находящихся на нижнем лазерном уровне, происходит на стенках (в результате диффузии), то диаметр трубки, в которой заключена активная среда, должен быть малым. Следствием этого положения явилось создание «волноводного» резонатора для излучения дальнего ИК диапазона, в то время как для излучения накачки резонатор оставался открытым. Типичным является использование в качестве волновода для волноводного лазера металлической трубки с внутренним диаметром ~ 12 мм. Такой лазер может работать при повышенных давлениях рабочего газа⁸⁶. Работа лазера на длинах волн $\lambda \sim 1$ мм и выше требует использования в качестве волновода трубки диаметром 25 мм. Другим способом увеличения скорости рассеяния нижнего лазерного уровня является выбор подходящего буферного газа и его количества в смеси. Так, для лазера на CH_3F примесь C_6H_{14} в соотношении 1:1 увеличивает мощность генерации в 1,5 раза⁸⁷. Использование других углеводородов в качестве буферного газа также дает эффект.

3) **Н а к а ч к а CO_2 -л а з е р о м.** Имеется целый ряд газов, генерирующих излучение в дальней ИК области, когда источником накачки служит CO_2 -лазер. CO_2 -лазер, активный элемент которого представляет собой трубку с электрическим разрядом постоянного тока при низком давлении газа, может работать как в непрерывном режиме, так и в режиме модулированной добротности. Оба эти режима работы CO_2 -лазера могут использоваться для накачки лазеров, работающих в дальнем ИК диапазоне. Часто стационарный разрядный ток в трубке низкого давления CO_2 -лазера модулируется импульсами тока с длительностью 0,1–0,5 мс с амплитудой в несколько сотен мА⁸⁸. Такой импульсно-периодический режим работы дает возможность иметь сравнительно высокую пиковую мощность CO_2 -лазера с длительностью импульса излучения $\tau \sim 100$ –500 мкс (в отличие от режима модулированной добротности, где $\tau \leq 1$ мкс).

Совершенно новые возможности открывает использование для накачки газов импульсных ТЕА CO_2 -лазеров с уровнем мощности 100 кВт — 10 МВт²³⁴. Из-за уширения уровней энергии молекул газа электрическим полем накачки оказывается возможным возбуждать уровни, имеющие значительную отстройку от частоты накачки⁸⁹. Кроме того, в последнее время появилась возможность непрерывной перестройки частоты импульсного электроионизационного CO_2 -лазера, работающего при высоком (до 10 атм) давлении рабочего газа⁴⁰, что расширяет возможности CO_2 -лазера как источника излучения накачки. Таким образом, в спектрах генерации газов появляются новые линии, которые без применения импульсных ТЕА-лазеров были недостижимыми. При этом для работы с импульсными ТЕА- CO_2 -лазерами нужны детекторы, передающие импульсы с длительностью ~ 100 нс.

в) Экспериментальные результаты по генерации излучения дальнего ИК диапазона

1) Как не линии генерируются сейчас с помощью оптической накачки в дальнем ИК диапазоне. В настоящее время имеется более 30 веществ, молекулы которых (в газовой фазе) при оптической накачке способны генерировать более чем 800 линий в дальнем ИК диапазоне. Весь дальний ИК диапазон занимает чуть более шести октав от 30 мкм до 2000 мкм, и плотность линий генерации в разных местах диапазона неодинакова.

На рис. 8 показана гистограмма распределения по диапазону количества линий на октаву⁷⁸. Максимум этого распределения находится между 20 и 40 см⁻¹ (250—500 мкм). Уменьшение количества линий, наблюдаемых на краях дальнего ИК диапазона, отчасти обязано тому, что детекторы, применяемые в экспериментах, на одном или другом краю диапазона имеют «завалы» чувствительности. Кроме того, зеркала открытых резонаторов на длинноволновом конце диапазона могут ухудшать отражательную способность. Однако, по-видимому, имеется физическая причина, которая по существу приводит к распределению вида, показанного на рис. 8⁷⁸. Коэффициент усиления лазера дальнего ИК диапазона, грубо говоря, пропорционален произведению $\nu_{ij}\Delta n_{ij}$, где $\nu_{ij} = 2Bj$ — частота генерирующего перехода (он здесь считается вращательным), B — вращательная постоянная, j — вращательное квантовое число, а Δn_{ij} — величина достижимой инверсной населенности, которая при достаточной интенсивности накачки определяется населенностью исходного уровня, с которого осуществляется накачка. Равновесное (тепловое) распределение населенностей вращательных уровней должно соответствовать рис. 9 и описываться выражением

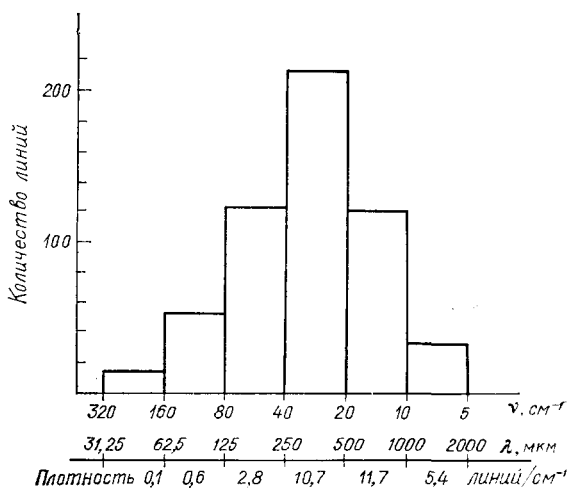


Рис. 8. Гистограмма плотности лазерных линий в дальнем ИК диапазоне.

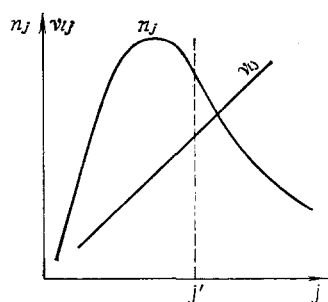


Рис. 9. Зависимость населенности уровней n_j и частоты перехода ν_{ij} от j .

$$n_j \sim (2j + 1) \exp \left(- \frac{E_j}{kT} \right), \quad (4.3)$$

где E_j — энергия j -го вращательного уровня при температуре газа T .

На этом же рисунке показана зависимость ν_{ij} от j . Из рис. 9 очевидно, что произведение $n_j \nu_{ij}$ имеет максимум вблизи некоторого значения j , которое можно обозначить j' . Здесь $E_{j'} \sim \hbar B j'^2 c \approx kT$, откуда $j' \approx \sqrt{kT/\hbar B c}$, а частота генерирующего перехода в максимуме коэффициента

усиления будет $\nu_{ij} \sim \sqrt{4BkT/ch}$. Для многих молекул постоянная B лежит в интервале $0,5-1 \text{ см}^{-1}$, так что положение максимума коэффициента усиления (и, соответственно, плотности линий) находится в интервале $22-32 \text{ см}^{-1}$ при T газа $\sim 300 \text{ К}$.

Список молекулярных газов, генерирующих при оптической накачке излучение дальнего ИК диапазона, дан в табл. III, где также указаны ссылки на работы, в которых соответствующие соединения изучались. (Соответствующая таблица по состоянию на середину 1976 г. имеется в ⁷⁸.) Кроме молекулы HF, которая возбуждалась излучением HF-лазера, и молекулы $^{14}\text{NH}_3$, две линии которой возбуждались N_2O -лазером, все молекулы из табл. III возбуждались излучением CO_2 -лазера. Как уже

Таблица III

Молекулярные газы, генерирующие при оптической накачке излучения дальнего ИК диапазона

Тип молекулы	Молекула	Литература	Тип молекулы	Молекула	Литература
Двухатомная молекула	HF	111, 112, 139	Асимметричный волчок	O_3 D_2O	96 100, 101, 119-123, 207-211
Симметричный волчок	CH_3F CH_3Cl CH_3Br CH_3I CH_3CN CH_3CCH CD_3I CD_3Cl CH_3CF_3	88, 90, 113, 114, 121-123 90-92 92 92, 93, 116 92, 94, 114 114 116 116 90		CH_3OH CH_3OD CD_3OD $\text{CH}_3\text{CH}_2\text{OH}$ HCOOH	88, 90, 94, 96, 99, 102-106, 115 102, 115 107 91 94, 96, 108, 109, 118
Симметричный волчок с инверсией	NH_3 $^{15}\text{NH}_3$	89, 90, 95-97-121-123, 125 124		$\text{CH}_2\text{OHCH}_2\text{OH}$ NH_2NH_2 CH_3NH_2 $\text{CH}_3\text{CH}_2\text{F}$ $\text{CH}_3\text{CH}_2\text{Cl}$ CH_3CHF_2 CH_3OCH_3 HCOOD DCOOH DCOOD CD_3OH	108 110 94, 98, 108 94, 96 91 90, 99 108 118 118 118 117
Асимметричный волчок	CH_2Cl_2 CH_2CHCl CH_2CHCN CH_2CF_2	91 88, 94 94 94, 98, 99			

отмечалось выше, CO_2 -лазер как наиболее удобный и хорошо изученный источник излучения (в стационарном и импульсном варианте) доминирует в исследованиях в качестве источника накачки лазеров дальнего ИК диапазона. В ⁷⁸ приведен список 120 «сильных» лазерных линий в дальнем ИК диапазоне, которые генерируются при накачке излучением CO_2 -лазера. «Сильными» считаются переходы, способные давать в непрерывном или квазинепрерывном режиме излучение с мощностью 10^{-4} Вт и более. Конечно, список этот имеет ориентировочный характер, так как в последние годы открыты новые близкие совпадения как в известных ранее молекулах за счет использования CO_2 -лазера во второй полосе секвенции (переход $00^{\circ}2-02^{\circ}1$ или $00^{\circ}2-10^{\circ}1$) ¹²³, так и применением в качестве рабочего вещества лазера с оптической накачкой молекул, содержащих нетрадиционные изотопы ¹²⁴. Раньше (см. табл. III) в активных молекулах варьировались сочетания изотопов из пары H — D.

2) Первый лазер с оптической накачкой на CH_3F . Впервые возможность создания оптически накачиваемого лазера

дальнего ИК диапазона была продемонстрирована Т. Чангом и Т. Бриджесом в 1970 г.¹¹³ Молекулы CH_3F накачивались линией Р (20) 9,6 мкм — полосы генерации CO_2 -лазера с модулированной добротностью. В соответствии со спектроскопическими данными для CH_3F ¹²⁶ ожидалась накачка в Q-ветви при $j = 12$. Изменяемая в пределах 50 Мгц частота накачки позволила возбуждать в поглощении переходы с $k = 1, 2$; $j = 12$. В результате при каждом значении k было получено по 3 линии генерации в районе $\lambda = 496$ мкм — по две в полосе $v = 1$ (каскадная генерация) и по одной в полосе $v = 0$ (истощение исходного уровня). Мощность излучения была $\sim 10^{-1}$ Вт при $p = 0,1 - 0,2$ Торр. Использование в качестве источника накачки CH_3F импульсного ТЕА CO_2 -лазера^{105, 125-131} позволило получить мощность излучения $\sim 0,5$ МВт ($p \sim 3$ Торр) при работе оптически накачиваемой кюветы в режиме сверхизлучения (без зеркал). Ширина линии излучения при этом оказывалась > 100 Мгц, однако синхронизация мод CO_2 -лазера уменьшала ширину линии излучения до 30 Мгц¹⁰⁰. На основе CH_3F кюветы с оптической накачкой велись работы по созданию мощного лазера с узкой линией для изучения томсоновского рассеяния в плазме термоядерных установок.

В рамках этой программы исследовались системы задающий лазер + усилитель, которые позволяли достигать сотен киловатт при ширине линии $\sim 40 - 50$ Мгц^{132, 133}.

3) Л а з е р н а NH_3 . Одним из наиболее хорошо изученных в спектроскопическом отношении газов является аммиак NH_3 , молекулы которого принадлежат к типу симметричного волчка. Относительное положение спектральных линий NH_3 и линий генерации CO_2 -лазера и N_2O -лазера было изучено в¹³⁴. Это позволило Т. Чангу с соавторами⁹⁵ создать излучающий две линии дальнего ИК диапазона NH_3 -лазер, накачиваемый N_2O -лазером непрерывного действия (линии Р (13) 10,78 мкм). Одна из линий генерации ($\lambda = 81,5$ мкм) являлась результатом инверсионно-вращательного перехода молекул NH_3 , а вторая ($\lambda = 263,4$ мкм) — чисто инверсионного перехода с $\Delta j = 0$. Несмотря на то, что поглощающие переходы из основного состояния NH_3 в полосе моды ν_2 хорошо перекрываются с Р и R-ветвями генерации CO_2 -лазера, нет близких совпадений, обеспечивающих работу оптически накачиваемого лазера в непрерывном режиме. Применение для накачки мощного импульсного ТЕА- CO_2 -лазера^{89, 90} тем не менее позволило получить генерацию на многих переходах в NH_3 вследствие уширения поглощающих переходов электрическим полем накачки. Кроме того, помещая кювету с NH_3 в постоянное электрическое поле, Р. Феттерман с соавторами⁹⁷ получил генерацию на нескольких переходах с накачкой CO_2 -лазером в непрерывном режиме. При этом отмечалось, что Штарк-эффект не только приводит к сдвигу линий поглощения в NH_3 , оставляя почти не сдвинутыми линии генерации, но также и ослабляет строгость правил отбора в поглощении. Использование для накачки газов $^{14}\text{NH}_3$ и $^{15}\text{NH}_3$ стационарного CO_2 -лазера, работающего во второй полосе «секвенции»^{123, 124} (на переходе $00^{\circ}2 \rightarrow 02^{\circ}1$) дает возможность обходиться без внешнего электрического поля, так как обнаруживаются новые близкие совпадения между частотами накачки и поглощения.

4) Л а з е р н а CH_3OH . Удобным рабочим веществом для лазера дальнего ИК диапазона с накачкой непрерывно или квазинепрерывно действующим CO_2 -лазером является метиловый спирт CH_3OH ^{88, 80, 94}. Такой лазер имеет рекордное число (82) линий генерации в дальнем ИК диапазоне, что обусловлено асимметрией молекулы CH_3OH и наличием торсионной моды колебаний группы OH , активной в дальнем ИК диапазоне.

5) Л а з е р н а Н F. Единственной двухатомной молекулой, генерирующей в дальнем ИК диапазоне, является Н F ^{111,112}. В результате накачки излучением импульсного Н F-лазера ($\lambda \sim 2,7$ мкм) кюветы с газом Н F (длина 12 см), молекулы Н F оказываются в колебательно-вращательной полосе с $\nu = 1$ (переход из основного состояния). При давлении газа в кювете 0,05—6 Торр и мощности накачки 3—4 кВт генерируется 7 линий с длинами волн от 36,5 мкм до 252,7 мкм. Вследствие того, что молекула Н F имеет большой постоянный дипольный момент, а также того, что частота излучения накачки совпадает с частотой поглощающего перехода, в кювете с Н F реализуются большие коэффициенты усиления (>1 см⁻¹), позволяющие работать в сверхизлучательном режиме ¹³⁵. Авторы ¹³⁵ нашли, что при давлении Н F $\sim 10^{-3} - 2 \cdot 10^{-2}$ Торр и длине кюветы ~ 1 м сверхизлучательный режим приводит к выходу излучения дальнего ИК диапазона через оба конца кюветы с задержкой относительно импульса накачки 0,5—2 мкс. Развертка импульса сверхизлучения во времени состоит из «первого пика» длительностью в $1/4 - 1/2$ времени задержки генерации относительно накачки и «звнящего» хвоста. Уменьшение давления или мощности накачки приводит к увеличению задержки и длительности первого пика, а также к уменьшению пиковой мощности генерации.

6) Л а з е р н а D₂O. Молекула тяжелой воды D₂O, по-видимому, является одной из перспективнейших молекул для генерации мощных импульсов излучения дальнего ИК диапазона с накачкой от импульсного ТЕА СО₂-лазера. Хотя точных совпадений в частотах поглощения D₂O с какой-либо линией генерации СО₂-лазера нет, достаточно мощное излучение накачки (~ 100 МВт) приводит к генерации в сверхизлучательном режиме ^{100,101,119-122}. Мощность излучения на некоторых линиях достигает 10 МВт¹⁰⁰ (при усреднении быстрых колебаний на осциллограмме), а к. п. д. $\sim 7\%$. При накачке линиями Р (32), R (12) и R (22) полосы 9,6 мкм ТЕА-СО₂-лазера генерируются мощные линии $\lambda \sim 66$ мкм, $\lambda \sim 114$ мкм и 385 мкм, а кроме того, менее мощные $\lambda \sim 117$ мкм и 50 мкм. В работах ²⁰⁷⁻²¹¹ при накачке D₂O-лазера линией 9R (22) СО₂-лазера кроме излучения D₂O-лазера в области $\lambda \sim 385$ мкм наблюдалось излучение на длине волны $\lambda \sim 359$ мкм, а в ²¹⁰ и при $\lambda \sim 239$ мкм. В ²¹⁰ получено рекордное сочетание параметров оптически накачиваемой D₂O-кюветы ($p \sim 3$ Торр), излучающей вблизи $\lambda \sim 385$ мкм: импульсная мощность 800 кВт, ширина линии 50 МГц, перестройка $\Delta\nu \sim 2$ ГГц, энергетический к. п. д. равен 0,4%. Следует отметить, что в ²⁰⁹⁻²¹¹, а возможно, и в ²⁰⁷⁻²⁰⁸, оптически накачиваемые кюветы с D₂O работали как в лазерном режиме (с инверсией населенностей), так и в режиме резонансного ВКР (см. ниже). Применение для накачки кюветы с D₂O СО₂-лазера, работающего во второй полосе секвенции (переходы 00°2 \rightarrow 02°1), приводит к близким совпадениям, достаточным для генерации в непрерывном режиме ¹²³.

Кроме указанных выше, в режиме сверхизлучения при накачке излучением импульсного ТЕА СО₂-лазера могут работать кюветы с NH₃, CH₃CN, CH₃Cl и CH₃Br ¹⁰⁰.

7) Л а з е р ы н а р е з о н а н с н о м ВКР (NH₃, HCl, HF, D₂O). Освещение газа мощным излучением, длина волны которого соответствует энергии поглощающего перехода в газе или близка к ней, может приводить не только к действию лазера из-за инверсии населенностей у какой-либо пары уровней. Другая возможность состоит в том, что излучение накачки (ω_1) может возбудить в газе резонансное вынужденное комбинационное рассеяние (РВКР) с результирующей частотой ω_2 (рис. 10), когда в газе, активном в ВКР, имеются уровни энергии (например, $j + 1$ при $\nu = 1$

кулой NH_3 . Объяснения генерации таких серий линий могут основываться на предположении об участии РВКР-процессов или процессов резонансного оптического смешения частот излучения в NH_3 .

5. ЭЛЕКТРОРАЗРЯДНЫЕ ЛАЗЕРЫ В ДАЛЬНОМ ИК ДИАПАЗОНЕ

а) Возбуждение газового лазера электрическим разрядом

Лазеры на переходах в нейтральных атомах в газовой фазе могут возбуждаться электрическим разрядом, свойства которого связаны с особенностями создания инверсии на генерирующем переходе. Стационарные лазеры возбуждаются разрядом постоянного тока или высокочастотным разрядом; импульсный разряд (с послесвечением) возбуждает импульсную генерацию в газе; и, наконец, лазеры на самоограниченных переходах (когда нижний лазерный уровень не расселяется) возбуждаются разрядным импульсом с крутым передним фронтом.

Для накачки стационарных лазеров чаще всего используется положительный столб тлеющего разряда в цилиндрической трубке. Положительный столб тлеющего разряда представляет собой слабоионизированную неравновесную плазму со степенью ионизации 10^{-9} — 10^{-7} и со средней энергией электронов, много большей температуры газа (~ 1 — 2 эВ). Плотность тока в таком разряде обычно бывает 100 — 200 мА/см². Средняя энергия электронов T_e в положительном столбе определяется из баланса заряженных частиц, которые производятся зависящей от T_e объемной ионизацией, а исчезают вследствие диффузии к стенке трубки, где они рекомбинируют. Анализ процессов в положительном столбе разряда в чистом газе ¹⁴² и в смеси газов ¹⁴³ показал, что, если электроны теряют энергию в основном при упругих столкновениях с атомами, T_e (зависящая от E/p , где E — электрическое поле, p — давление газа) определяется произведением pD , где D — диаметр разрядной трубки. При уменьшении pD средняя энергия электронов и E/p возрастает, при увеличении pD средняя энергия T_e и E/p убывает. При одинаковых pD условия в разряде подобны, с помощью параметра pD можно управлять свойствами разряда для лучшего возбуждения того или иного верхнего лазерного уровня.

В положительном столбе тлеющего разряда генерирующий переход может возбуждаться селективно и неселективно. Неселективная накачка электронным ударом непосредственно или через промежуточные уровни заселяет верхний и нижний уровни, участвующие в процессе генерации, примерно с равной интенсивностью. Селективная накачка осуществляется либо электронным ударом, если заселяемый уровень связан с основным разрешенным (в дипольном приближении) переходом, либо резонансной передачей возбуждения на верхний рабочий уровень от атомов примеси к генерирующему атому (от молекулы к молекуле соответственно) ^{144,145}. При нерезонансной накачке инверсия населенностей образуется из-за разных скоростей расселения уровней.

Для коэффициента усиления электроразрядного лазера справедливо выражение (4.1). Расчет коэффициента усиления наталкивается в большинстве случаев на трудности, связанные с отсутствием данных о сечениях возбуждения уровней электронным ударом. В том случае, когда эффективные сечения возбуждения в зависимости от энергии известны, динамика возбуждения вместе со свойствами разряда могут быть рассчитаны на ЭВМ, подобно тому как это было впервые сделано для лазера на CO_2 (для гене-

рации $\lambda = 10$ мкм) в ¹⁴⁶. Во всяком случае, качественно увеличению коэффициента усиления на заданном переходе способствует 1) увеличение вероятности перехода; 2) увеличение селективности возбуждения верхнего лазерного уровня; 3) увеличение разности времен релаксации верхнего и нижнего лазерных уровней.

Импульсный разряд для возбуждения генерации лазера на нейтральных атомах был впервые использован в ¹⁴⁷. Плотность тока в импульсных разрядах может достигать сотен ампер на квадратный сантиметр.

Импульсный разряд может осуществляться при различных значениях межэлектродного расстояния: в трубках ~ 1 м, а в лазерах с поперечным разрядом — несколько см. ^{148, 186, 187}. В зависимости от способа возбуждения верхнего лазерного уровня (прямое, не прямое) и свойств импульсного разряда генерация может развиваться вместе с импульсом тока или с задержкой относительно импульса тока.

Условия в импульсном разряде не могут быть охарактеризованы только произведением pD . Они зависят также и от вида и давления газа, от способа потерь энергии электронами разряда, от формы фронта и спада импульса тока и от электротехнических параметров цепи. В импульсном разряде, как правило, реализуются высокие коэффициенты усиления и большие пиковые мощности излучения.

б) Л а з е р ы д а л ь н е г о И К д и а п а з о н а н а п е р е х о д а х в н е й т р а л ь н ы х а т о м а х

1) П е р в ы й э л е к т р о р а з р я д н ы й л а з е р н а Н е. Уже в 1964 г. на переходах неона при накачке разрядом постоянного тока была получена генерация в диапазоне от 30 до 133 мкм ^{149, 150}. Генератор представлял собой разрядную трубку длиной $l \sim 3-5$ м и диаметром 10—25 мм, заполняемую неоном при давлении 0,01—0,1 Торр. В некоторых экспериментах к неону добавлялся гелий, количество которого в 2—5 раз превышало количество неона. В генерации участвовали высоколежащие уровни неона (главное квантовое число $n \sim 6-9$). Резонатор был открытого типа, вывод излучения из резонатора осуществлялся через отверстие связи в одном из зеркал. Полный список линий генерации неона (их в дальнем ИК диапазоне ~ 30) приводится в ¹⁵¹.

2) Л а з е р н а Н е. Две линии генерации в дальнем ИК диапазоне $\lambda_1 \approx 95,8$ мкм и $\lambda_2 \approx 216,3$ мкм были обнаружены в гелии при возбуждении разрядом. Первоначально была зафиксирована генерация линии λ_1 при импульсном возбуждении ¹⁵² в трубке диаметром 7,5 см при $p = 0,5$ Торр, а затем обе линии генерировались в гелиевом разряде постоянного тока в трубке диаметром 6 см при $p = 0,1$ Торр ¹⁵³. Переходы были идентифицированы как $3\ ^1P_1 \rightarrow 3\ ^1D_2$ для λ_1 и $4\ ^1P_1 \rightarrow 4\ ^1D_2$ для λ_2 . Позднее, при уточнении длин волн генерации λ_1 и λ_2 ¹⁵⁴, обе линии были получены в импульсном разряде в гелии с длительностью тока по полувысоте ~ 1 мкс и амплитудой тока 4—18 кА в трубке длиной 2 м и $D = 15$ см. Эксперименты проводились при $p \sim 0,1-0,7$ Торр, а импульс генерации длительностью $\sim 0,7$ мкс возникал на нарастающей части тока, длительность которой ~ 1 мкс. Как отмечается в ¹⁵⁴, инверсии населенностей участвующих в генерации уровней оказывается возможной, во-первых, из-за увеличения времен жизни верхних лазерных уровней пленением возникающего при распаде верхних уровней резонансного излучения, а во-вторых, из-за большего сечения возбуждения верхнего уровня по сравнению с нижним (примерно в 10 раз).

3) Л а з е р н а Х е. Единственная линия дальнего ИК диапазона ($\lambda \approx 75,6$ мкм) обнаружена в ксеноне, когда в трубке диаметром 0,6 см в смеси He — Xe (100 : 1) при давлении ксенона 0,035 Торр поддерживался непрерывный разряд¹⁵⁵.

в) Л а з е р ы д а л ь н е г о И К д и а п а з о н а н а п е р е х о д а х в м о л е к у л а х

К настоящему времени известны семь молекулярных газов, которые могут генерировать излучение дальнего ИК диапазона ($\lambda \approx 30-2000$ мкм) при возбуждении их электрическим разрядом: HCN, H₂O, SO₂, H₂S, OCS, NH₃ и HBr. Молекулы HCN и H₂O имеют каждая по три генерирующих в дальнем ИК диапазоне модификации, отличающиеся одна от другой

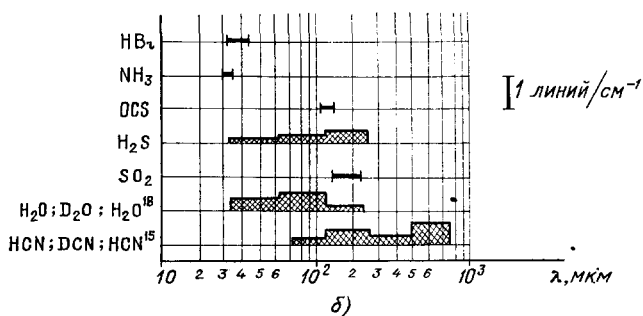
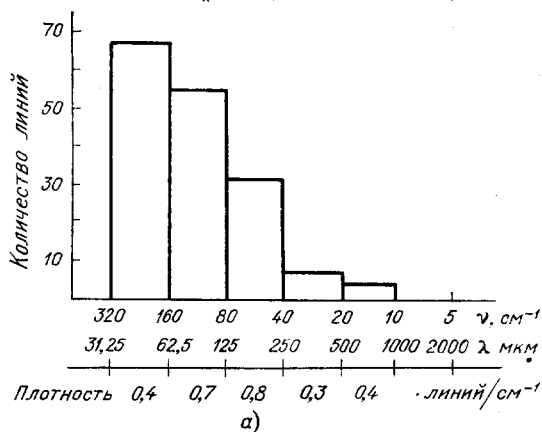


Рис. 11. а) Гистограмма плотности лазерных линий в дальнем ИК диапазоне, б) плотность лазерных линий в дальнем ИК диапазоне для различных газов.

наличием различных изотопов Н, N и О : HCN, DCN, HCN¹⁵, H₂O, D₂O и H₂O¹⁸. Одна молекула из приведенных выше списка двухатомная, одна четырехатомная, остальные — трехатомные. На рис. 11, а представлена гистограмма, показывающая число линий от молекулярных электроразрядных лазеров на октаву (весь диапазон 5—320 см⁻¹ разделен на 6 октав). В нижней части рис. 11, а указана плотность линий (на 1 см⁻¹) в каждой из октав. На рис. 11, б показаны интервалы длин волн, где расположены линии генерации соответствующих газов. В разных местах интервалов линии расположены с разной плотностью, и по интенсивности линии сильно отличаются одна от другой. Для газов H₂S, H₂O (вместе с H₂O¹⁸ и D₂O) и HCN (вместе с DCN и HCN¹⁵) интервалы на рис. 11, б, где расположены линии генерации, разделены, как и на рис. 11, а, на 6 октав. В каждой

октаве для этих газов высота зачерненного прямоугольника соответствует количеству линий генерации на 1 см^{-1} . Соответствующая шкала показана на рис. 11, б справа. Общее количество линий дальнего ИК диапазона, генерируемых электроразрядным лазером с активным газом НВг — 8, $\text{OCS} - 2$, $\text{SO}_2 - 4$, $\text{NH}_3 - 4$, $\text{H}_2\text{S} - 23$, HCN (вместе с DCN и HCN^{15}) ~ 37 , H_2O (вместе с D_2O и H_2O^{18}) ~ 88 . Список линий генерации с указанием частот и идентификацией переходов, где она имеется, приведен в ¹⁵⁶.

1) Л а з е р н а HCN . Впервые лазерное излучение дальнего ИК диапазона наблюдалось в 1963 г. в ¹⁵⁷, когда в стеклянной трубке с оптическим резонатором возбуждался импульсный разряд в смеси молекулярных газов, содержащих атомы Н, С и N. Вслед за этим появился ряд работ ¹⁵⁸⁻¹⁶¹, в которых изучались условия генерации излучения с длиной волны $\lambda \sim 337 \text{ мкм}$ и обнаруживались новые линии при импульсном разряде в газах или газовых смесях, таких, как $\text{CH}_4 + \text{NH}_3$, $\text{CH}_4 + \text{N}_2$, CH_3CN , $(\text{CH}_3)_2\text{NH}$, HCN , или в смесях, где вместо водорода присутствовал дейтерий: $\text{D}_2 + \text{BrCN}$, $\text{CD}_4 + \text{ND}_3$. Типичными для этих экспериментов являются условия, когда имеется разрядная трубка (стеклянная) длиной 3—6 м и диаметром 5—15 см при давлении газовой смеси внутри нее $p \sim 0,1-1$ Торр с импульсным напряжением на электродах $\sim 15-40 \text{ кВ}$ и током в импульсе 200 — 900 А. Длительность импульса тока бывает $\sim 10 \text{ мкс}$, импульс генерации в 2—3 раза длиннее, чем ток, а частота повторения импульсов обычно не превышает нескольких герц. Импульс генерации имеет задержку $\sim 30 \text{ мкс}$ относительно разрядного тока. Более подробно с экспериментальной техникой можно ознакомиться в ^{160,161} и приведенных в них ссылках.

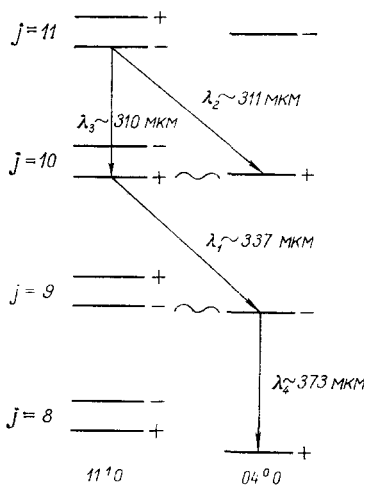


Рис. 12. Часть колебательно-вращательного спектра молекулы HCN .

Решающий шаг в понимании принципа работы лазера с разрядом в смеси молекулярных газов, где присутствуют атомы Н, С и N, был сделан в ¹⁶⁸. Авторы ¹⁶⁸ указали, что наблюдаемая генерация есть результат колебательно-вращательных переходов между одной из составных мод (11^1-0) и гармоникой деформационной моды (04^0) в линейной молекуле HCN , которая образуется в разряде. Вероятность указанных выше межмодовых переходов для HCN в обычных условиях слишком мала, чтобы можно было достичь необходимого для генерации коэффициента усиления. Однако в случае перехода $11^1_0 \rightarrow 04^0_0$ в молекуле HCN необходимое для генерации увеличение вероятности происходит вследствие совпадения энергий некоторых вращательных компонент с одинаковыми j , принадлежащих уровням 11^1_0 и 04^0_0 (рис. 12). Совпадения энергий вращательных компонент ведут к образованию так называемых «смешанных» квантовых состояний, которые являются хорошими кандидатами на участие в лазерных переходах ($\lambda_1 \sim 337 \text{ мкм}$, $\lambda_2 \sim 311 \text{ мкм}$ на рис. 12) ¹⁶⁹. Межмодовые колебательно-вращательные переходы, в свою очередь, порождают чисто вращательные переходы без изменения колебательного состояния молекулы HCN (например, $\lambda_3 \sim 310 \text{ мкм}$, $\lambda_4 \sim 373 \text{ мкм}$ на рис. 12), т. е. имеет место «каскадная» генерация ^{168,169}. Предположение о возникновении смешанных квантовых состояний ¹⁶⁹ позволило идентифицировать многие линии гене-

рации при разряде в газовых смесях, содержащих Н, С и N (D, C и N), с переходами $11^40 \rightarrow 04^00$, $12^20 \rightarrow 05^10$ и $12^00 \rightarrow 05^10$ в спектре молекулы HCN и переходами $22^00 \rightarrow 09^10$ в спектре DCN (плюс группа чисто вращательных переходов вследствие «каскадного» механизма¹⁵⁰). Однако многие линии генерации HCN-лазера и все линии генерации HCN¹⁵-лазера еще не идентифицированы.

Как правило, пиковая мощность наиболее сильных линий генерации не превышает 1—10 Вт^{156,162,163,160}, тем не менее авторам работы¹⁶⁴ удалось добиться пиковой мощности HCN-лазера с $\lambda \sim 337$ мкм, близкой к 1 кВт. Некоторые линии HCN- и DCN-лазера генерируются и в непрерывном режиме¹⁶⁵⁻¹⁶⁷, когда в разрядной трубке поддерживается разряд постоянного тока или высокочастотный разряд. Коэффициент усиления HCN-лазера обычно бывает $\sim 70\%$ на метр при импульсном возбуждении и $\sim 10\%$ на метр в стационарном разряде¹⁷⁰.

2) Л а з е р н а H_2O . Лазерное излучение из трубки с импульсными разрядами в парах H_2O впервые наблюдалось в 1964 г. в работе¹⁷¹. В трубке диаметром 2,5 см и длиной 4,8 м, имеющей на одном конце алюминизированное зеркало, а на другом — плоское полиэтиленовое или кремниевое окно, возбуждался импульсный разряд в H_2O ($p \sim 1$ Торр) с длительностью тока ~ 3 мкс и с напряжением на электродах ~ 46 кВ. В этих экспериментах была зафиксирована генерация на 9 длинах волн в интервале 23—79 мкм, из них 6 линий принадлежат диапазону $30 \text{ мкм} < \lambda < 2000 \text{ мкм}$. Три линии из шести имели мощность между одним и десятью ваттами, остальные — меньше 1 Вт. В том же 1964 г. была получена импульсная генерация из разрядной трубки, содержащей пары D_2O ¹⁷². Вслед за этим появились работы, в которых обнаруживались новые линии генерации лазера на парах H_2O и D_2O , а также изучались особенности и свойства излучения лазеров этого типа¹⁷³⁻¹⁷⁸. Всего в дальнем ИК диапазоне было обнаружено 46 линий генерации H_2O -лазера, наличие 15 из них не подтвердилось в более поздних исследованиях (см.¹⁵⁰); H_2O^{18} -лазер генерирует 7 линий в том же диапазоне, а D_2O — 35 линий (наличие 7 линий позднее не подтвердилось). Многие линии H_2O - и D_2O -лазера генерируются в непрерывном режиме^{179,180}: в H_2O — 10 линий, в D_2O — 4 линии. Экспериментальная техника для импульсной генерации излучения дальнего ИК диапазона в парах воды в основном аналогична аппаратуре, описанной выше, когда обсуждался HCN-лазер. Трубка, содержащая H_2O при $p \sim 1$ Торр, с импульсным разрядом при токе от нескольких ампер и напряжении 15—45 кВ имеет длину 3—5 м и диаметр 2,5—10 см. Одно из пар зеркал, размещенных в качестве резонатора на концах трубки, всегда металлизированное, полностью отражает электромагнитные волны, а другое либо изготовлено из материала, частично пропускающего излучение, либо имеет отверстие для вывода мощности из резонатора. Длительность импульса тока чаще всего бывает несколько мкс, длительность импульса генерации (в зависимости от линии) может быть от 1,5 до 15 мкс в типичных условиях¹⁷⁴. Время задержки между началом тока и генерации (в зависимости от линии) обычно бывает 1,5—5,5 мкс: время задержки и длительность импульса генерации определяются процессами, создающими инверсную населенность на соответствующем переходе¹⁷⁴. В¹⁷⁸, однако, при длительности разрядного тока ~ 500 мкс (и величине его ~ 2 —10 А) длительность генерации некоторых линий была ~ 50 —150 мкс, а задержка генерации была необычно большой (достигала 100 мкс). Частота повторения импульсов может достигать 500 Гц, при этом рабочий газ прокачивается через трубку, чтобы обеспечить отвод тепла из рабочей области. Более подробные сведения о деталях конструкции и свойствах H_2O -лазеров с импульс-

ным возбуждением можно получить в ¹⁸¹ и в приведенных там ссылках. Экспериментальная техника, используемая для непрерывной генерации излучения дальнего ИК диапазона в H_2O , та же, что и для импульсных экспериментов ^{179,180}.

Молекула H_2O (D_2O) — нелинейная, полярная молекула. Положение энергетических уровней, соответствующих нижним колебательным состояниям молекулы H_2O , было известно сравнительно давно. Так же давно было известно, что возбуждение изгибной моды в H_2O релаксирует значительно быстрее, чем симметричной или антисимметричной, так что инверсия населенностей на переходах $(v\ 00) \rightarrow (0\ v\ 0)$ или $(00\ v) \rightarrow (0\ v\ 0)$ могла бы возникнуть даже при неселективной накачке. Однако объяснение наблюдаемых линий генерации в молекуле воды переходами $(100) \rightarrow (020)$, $(001) \rightarrow (020)$ и связанными с ними чисто вращательными переходами (каскадный механизм генерации) стало возможным лишь после появления представления об образовании «смешанных» состояний ¹⁶⁸ из пар уровней, принадлежащих разным колебательным модам (как это было в HCN). Частичная схема энергетических уровней молекул H_2O и D_2O с идентификацией большинства из зарегистрированных лазерных переходов показана в ¹⁵⁹.

Импульсная мощность, генерируемая H_2O -лазером, сильно меняется от линии к линии ¹⁵⁹, на наиболее сильных линиях мощность достигает 10 Вт. Слабые линии дают пиковую мощность $\sim 10^{-3}$ Вт. Мощность D_2O -лазера обычно не превышает 1 Вт, мощность H_2O^{18} -лазера не превышает 10^{-2} Вт. Рекордной мощности ~ 5 кВт достигли авторы работ ^{182,183} оптимизацией параметров H_2O -лазера на длине волны $\lambda \sim 28$ мкм (эта линия является сверхизлучательной ¹⁷⁹), однако эта линия лежит за пределами рассматриваемого здесь диапазона.

Генерация излучения дальнего ИК диапазона как в HCN , так и в H_2O с помощью импульсного разряда характеризовалась так называемой «продольной» схемой возбуждения, в которой разрядный ток протекает вдоль оси разрядной трубки, совпадающей с оптической осью резонатора.

3) **ТЕ-лазеры на HCN и H_2O .** Хорошо известные успехи применения «поперечного» разряда с током, перпендикулярным оптической оси, для возбуждения импульсного газоразрядного CO_2 -лазера при атмосферном давлении рабочей смеси (ТЕА-лазер) ¹⁴⁸ стимулировали попытки распространить ТЕА-способ на возбуждение других газов ¹⁸⁴. Из молекул, генерирующих излучение дальнего ИК диапазона при электроразрядном возбуждении, H_2O генерировала в поперечном разряде при $p \sim 45$ Торр ¹⁸⁴ несколько линий, из которых «сильной» была признана только линия $\lambda \sim 28$ мкм. Однако и эта сильная линия не была более мощной, чем в лазерах с продольным разрядом. В ¹⁸⁵ указывается на отсутствие перспектив увеличения мощности импульсной генерации использованием поперечного разряда малой длительности (≤ 1 мкс) при повышенных давлениях, по крайней мере для HCN , SO_2 и H_2S . Отсутствие перспектив, по мнению автора ¹⁸⁵, связано с тем, что в разряде не происходит прямого возбуждения верхних лазерных уровней молекул HCN , SO_2 и H_2S электронным ударом. Об этом, в частности, свидетельствует тот факт, что импульс генерации HCN , SO_2 - и H_2S -лазера появляется через несколько десятков микросекунд после импульса тока. С другой стороны, при работе H_2O -лазера на длине волны ~ 28 мкм импульс генерации возникает практически одновременно с током, поэтому предполагается, что здесь верхний лазерный уровень возбуждается электронным ударом непосредственно. Следует отметить, что некоторые линии H_2O -лазера тоже могут иметь задержку импульса генерации относительно тока ¹⁷⁸.

4) **В о л н о в о д н ы й HCN-лазер.** Определенный успех применения поперечного разряда для возбуждения HCN-лазера, работающего на длине волны $\lambda \sim 337$ мкм, был достигнут в ¹⁸⁶, где разрядная зона длиной ~ 4 м представляла собой волновод прямоугольного сечения $5 \text{ см} \times 5,8 \text{ см}$ с одной металлической стенкой (анод) и тремя диэлектрическими. Расстояние между анодом и диэлектрической стенкой с катодными элементами, которые представляли собой торцы вставленных в стенку проволочек ($\varnothing \sim 0,5-1 \text{ мм}$) — 5 см . На концах волноводной разрядной зоны устанавливались металлические зеркала, вывод излучения осуществлялся установкой майларовой пленки в резонатор под углом к его оси. Авторы ¹⁸⁶ считают, что именно нарушения структуры электромагнитного поля в резонаторе элементами лазерных разрядных камер в схеме типа ТЕА-лазера ограничивают выходную мощность лазеров с поперечным разрядом.

Предложенная авторами ¹⁸⁶ волноводная конструкция разрядной зоны свободна от этого недостатка и позволяет увеличить мощность HCN-лазера «на два порядка по сравнению с прежними достижениями» ¹⁸⁶ (речь, вероятно, идет о достижении выходной мощности порядка нескольких десятков киловатт). Задержка между импульсами тока и генерации в ¹⁸⁶ отсутствуют.

Имеется публикация ¹⁸⁷, в которой сообщается о реализации импульсного HCN-лазера с поперечным возбуждением и использованием предионизации ультрафиолетовым излучением. В этой работе достигнута энергия излучения в импульсе между 1 мДж и 15 мДж при использовании смеси HCN — CH_4 — He. Разрядная камера обладала волноводными свойствами для излучения дальнего ИК диапазона.

5) **Л а з е р н а NH_3 .** Генерация излучения дальнего ИК диапазона при импульсном разряде в NH_3 была впервые обнаружена в 1965 году в работе ¹⁸⁸, затем генерация также наблюдалась в ¹⁸⁹. В ¹⁸⁸ использовалась разрядная трубка диаметром 5 см и длиной 7 м , давление газа было $2,4 \text{ Торр}$, частота следования импульсов 1 гц . В ¹⁸⁹ диаметр разрядной трубки был 10 см , длина $\sim 5 \text{ м}$, ток в импульсе был 600 А при давлении газа $0,5-1,0 \text{ Торр}$. Всего было обнаружено 4 линии генерации с длинами волн $30,69$; $31,47$; $31,95$ и $32,13 \text{ мкм}$. Ни одна из линий не идентифицирована, хотя некоторые более коротковолновые линии генерации при разряде в NH_3 имеют предположительную идентификацию ¹⁹⁰.

6) **Л а з е р н а SO_2 .** Две из четырех линий генерации ($\lambda \sim 141 \text{ мкм}$ и $\lambda \sim 193 \text{ мкм}$) в дальнем ИК диапазоне при разряде в SO_2 были впервые обнаружены в ¹⁹¹, где использовался разряд постоянного тока ($J = 0,15 \text{ А}$) в трубке длиной $2,5 \text{ м}$ с внутренним диаметром $5,6 \text{ см}$. В качестве буферного газа использовался гелий при давлении $1,5 \text{ Торр}$ (давление SO_2 — $2,1 \text{ Торр}$). При похожих условиях в разряде постоянного тока эти же две линии наблюдались и в ¹⁹². Все четыре линии генерации $\lambda \sim 141 \text{ мкм}$, $\lambda \sim 151 \text{ мкм}$, $\lambda \sim 193 \text{ мкм}$ и $\lambda \sim 215 \text{ мкм}$ наблюдались в ¹⁹² при импульсном разряде в смеси SO_2 с He ($0,4 + 0,4 \text{ Торр}$). Диаметр разрядной трубки — $7,6 \text{ см}$, ее длина — 2 м . Импульсный ток в разряде было 90 А при частоте следования импульсов 13 Гц . Импульсная генерация линий $\lambda \sim 141 \text{ мкм}$ и $\lambda \sim 215 \text{ мкм}$ при разряде в SO_2 с любым из буферных газов He, N_2 или O_2 наблюдалась в ¹⁹³. Все четыре линии идентифицированы как переходы в полосе $001 \rightarrow 020$ ¹⁹⁴.

7) **Л а з е р ы н а OCS и H_2S .** Две линии генерации при импульсном разряде в OCS ($\lambda \sim 123 \text{ мкм}$ и $\lambda \sim 132 \text{ мкм}$) и все 23 линии генерации при

импульсном разряде в H_2S принадлежат к дальнему ИК диапазону¹⁹³. Ни одна из указанных линий (в OCS и H_2S) не идентифицирована. Эти переходы наблюдались в H_2S без примесей (соответственно в чистом OCS или с одним из буферных газов N_2 , He или CO). Для H_2S -лазера длительность импульса генерации была 20—100 мксек с запаздыванием относительно тока ~ 20 —30 мкс при давлении газа в трубке $\sim 0,15$ Торр. Мощность H_2S -лазера, генерирующего какую-либо линию, определялась указанием линии H_2O -лазера, которая имеет такую же (как и H_2S) мощность в той же самой экспериментальной установке. Частоты всех линий H_2S -лазера с указанием относительной интенсивности линий приведены в 156.

8) Л а з е р н а HBr . Восемь линий генерации с длинами волн между 30 мкм и 41 мкм было обнаружено в работе¹⁹⁵ при импульсном разряде в трубке, содержащей смесь VBr_3 (0,05—0,2 Торр) с H_2O . Линии генерации были идентифицированы как чисто вращательные переходы при $v = 0$ (2 линии), $v = 1$ (3 линии) и $v = 2$ (3 линии) молекулы HBr , которая образуется в разряде. Частоты и идентификация линий HBr -лазера приведены в 156.

6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, за последнее десятилетие созданы импульсные и стационарные квантовые источники излучения, перекрывающие весь дальний ИК диапазон 50—1000 мкм.

Наиболее перспективными среди этих источников представляются лазеры с оптической накачкой (квантовая эффективность их — десятки процентов, число линий генерации будет увеличиваться) и генераторы на резонансном ВКР, допускающие при высокой (десятки процентов по числу квантов) эффективности непрерывную перестройку.

Кроме областей физических исследований, упомянутых во Введении, излучение дальнего ИК диапазона может найти применение в молекулярной биологии — при исследовании движений крупных молекул (белков, нуклеиновых кислот, фосфолипидов), мембран и более сложных структур. Это относится, в частности, к ламеллярным структурам лиотропного типа, для которых характерно существование пространственных периодов $d \sim 100 \text{ \AA}$. В таких системах должны существовать коллективные колебания с частотой $\nu \sim S/d$ (где S — величина порядка скорости звука), лежащей в дальнем ИК диапазоне.

Одним из возможных технических приложений дальнего ИК излучения может быть получение изображений предметов, скрытых от прямого наблюдения (например, закрытых диэлектрическим экраном, непрозрачным для видимого или ближнего ИК излучения).

Предполагается, что в результате освоения дальнего ИК диапазона в ближайшие несколько лет будут созданы системы формирования изображения в лучах этого диапазона для промышленности (неразрушающий контроль), медицины (например, снимки ранений под повязкой, нахождение скоплений воды) и других областей².

Институт атомной энергии
им. И. В. Курчатова

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. М о з е р Й. Ф., Ш т е ф е н Г., К н е й б ю л ь Ф. — УФН, 1969, т. 99, с. 469.
2. H a r t w i c k T. S. et al. — Appl. Opt., 1976, v. 15, p. 1919.
3. M i n k J. et al. — Spectrochim. Acta, Ser. A, 1980, v. 36, p. 151.

4. Borg A. et al.— Ibid., 1980, v. 36, p. 119.
5. Miernik D., Kedzia B. B.— Bull. Acad. Pol. Sci. and Sev. sci. Chim., 1979, v. 27, p. 465.
6. Stern V. et al.— J. Mol. Spectr., 1980, v. 79, p. 345.
7. Сусликов Л. М., Герасименко В. С., Сливка В. Ю.— Опт. и спектр., 1980, т. 48, с. 789.
8. Okada T., Muraoka K., Akazaki M.— Какуюго кэнкю (яп.), 1980, v. 43, p. 169.
9. Бломбергс Н., Нелинейная оптика.— М.: Мир, 1966.
10. Цернике Ф., Мидвинтер Дж. Прикладная нелинейная оптика.— М.: Мир, 1976.
11. Faries D. W., Gehking K. A., Richards P. L., Shen Y. R.— Phys. Rev., 1969, v. 180, p. 363.
12. Yajima T., Inoue K.— Phys. Lett., Ser. A, 1968, v. 26, p. 281.
13. Zernike F., Jr., Berman P. R.— Phys. Rev. Lett., 1965, v. 15, p. 999.
14. Yang K. H., Morris A. M., Richards P. L., Shen Y. R.— Appl. Phys. Lett., 1973, v. 23, p. 669.
15. Auston D. N., Glass A. M., Le Fur P.— Ibid., p. 47.
16. Бобровский А. Н., Мыльников Г. Д., Соболенко Д. Н.— Квант. электрон., 1978, т. 5, с. 444.
17. Nguyen V. T., Patel C. K. N.— Phys. Rev. Lett., 1969, v. 22, p. 463.
18. Patel C. K. N., Nguyen V. T.— Appl. Phys. Lett., 1969, v. 15, p. 189.
19. Zernike F.— Phys. Rev. Lett., 1969, v. 22, p. 931.
20. Zernike F.— Bull. Am. Phys. Soc., 1967, v. 12, p. 687.
21. Boyd G. D., Bridges T. J., Patel C. K. N., Bucher E.— Appl. Phys. Lett., 1972, v. 21, p. 553.
22. Bridges T. J., Strnad A. R.— Ibid., 1972, v. 20, p. 382.
23. Chang T. Y., Nguyen V. T., Patel C. K. N.— Ibid., 1968, v. 13, p. 357.
24. Aggarwal R. L., Lax B., Favrot G.— Ibid., 1973, v. 22, p. 329.
25. Lax B., Aggarwal R. L.— Microwave J., 1974, v. 11, p. 31.
26. Bridges T. J., Chang T. Y.— Phys. Rev. Lett., 1969, v. 22, p. 811.
27. Aggarwal R. L., Lax B., Fetterman H. F., Tannenwald P. E., Clifton B. J.— J. Appl. Phys., 1974, v. 45, p. 3972.
28. Lax B., Aggarwal R. L., Favrot G.— Appl. Phys. Lett., 1973, v. 23, p. 679.
29. Vedenov A. A., Mylnikov G. D., Roslyakov V. A., Sobolenko D. N., Starostin A. N.— Phys. Lett., ser. A, 1974, v. 54, p. 79.
30. Вedenov A. A., Мыльников Г. Д., Соболенко Д. Н.— Квант. электрон., 1976, т. 3, с. 777.
31. Lee N., Lax B., Aggarwal R. L.— Opt. Comm., 1974, v. 11, p. 339.
32. Lee N., Lax B., Aggarwal R. L.— Ibid., 1976, v. 18, p. 50.
33. Nguyen V. T., Bridges T. J.— Appl. Phys. Lett., 1975, v. 26, p. 452.
34. Yajima T., Takeuchi N.— Japan. J. Appl. Phys., 1970, v. 9, p. 1361.
35. Богаткин В. И., Лобов Г. Д., Штыков В. В.— В кн. Квант. электрон. Киев: Наукова думка, 1973.— Вып. 5 (17), с. 129.
36. Aggarwal R. L., Lax B.— In: Nonlinear Infrared Generation (Ed. Y. R. Shen.— Berlin; Heidelberg; New York; Springer-Verlag, 1977.— P. 19.— (Topics in Applied Physics. V. 16).
37. Nguyen V. T., Bridges T. J.— Phys. Rev. Lett., 1972, v. 29, p. 359.
38. Бобровский А. Н., Вedenov A. A., Кожевников А. В., Соболенко Д. Н.— В кн. Тезисы докладов на II Всесоюзной конференции «Оптика лазеров». Ленинград, 1979.— С. 113.
39. Chang T. Y.— Opt. Comm., 1970, v. 2, p. 77.
40. Багратшвили В. Н., Князев И. Н., Лобко В. В.— Квант. электрон., 1976, т. 3, с. 1011.
41. Johnson C. J., Sherman G. H., Weil R.— Appl. Optics, 1969, v. 8, p. 1667.
42. Stolen R. H.— Appl. Phys. Lett., 1969, v. 15, p. 74.
43. Stolen R. H.— Phys. Rev., 1975, v. 11, p. 767.
44. Johnson C. J., Sherman G. H., Weil H.— Appl. Optics, 1973, v. 8, p. 1767.
45. Пуле А., Матье Ж.-П. Колебательные спектры и симметрия кристаллов.— М.: Мир, 1973.
46. Лиханский В. В., Мыльников Г. Д., Напартович А. П., Семерок А. Ф., Соболенко Д. Н. Квант. электрон., 1978, т. 5, с. 897.
47. Yajima T., Inoue K.— IEEE J. Quantum Electron., 1969, v. QE-5, p. 140.
48. Morris J. R., Shen Y. R.— Phys. Rev., Ser. A, 1977, v. 15, p. 1143.
49. Koster A., Vossoughi A.— J. Phys. Ser. E, 1976, v. 9, p. 340.

50. Yang K. H., Richards P. L., Shen Y. R.— *Appl. Phys. Lett.*, 1971, v. 19, p. 385.
51. Yajima T., Takeuchi N.— *Japan. J. Appl. Phys.*, 1971, v. 10, p. 907.
52. Faries D. W., Richards P. L., Shen Y. R., Yang K. H.— *Phys. Rev.* 1971, v. 133, p. 2148.
53. Brown T. L., Wolff P. A.— *Phys. Rev. Lett.*, 1972, v. 29, p. 362.
54. Веденов А. А., Мыльников Г. Д., Росляков В. А., Соболенко Д. Н., Старостин А. Н.— В кн. Тезисы докладов, представленных на VII Всесоюзную конференцию по когерентной и нелинейной оптике. М.: МГУ, 1972.— С. 453.
55. Росляков В. А., Старостин А. Н.— *ЖЭТФ*, 1977, т. 73, с. 1747.
56. Yashobu Y., Aggarwal R. L., Lax B.— *J. Appl. Phys.*, 1973, v. 44, p. 3180.
57. Ярив А. Квантовая электроника и нелинейная оптика.— М.: Сов. радио, 1973.
58. Фишер Р., Кулевский Л. А.— *Квант. электрон.*, 1977, т. 4, с. 045.
59. Arnold G. P., Wensel R. G.— *Appl. Opt.*, 1977, v. 16, p. 809.
60. London R.— *Proc. Phys. Soc.*, 1963, v. 82, p. 393.
61. Henry C. H., Garret C. G.— *Phys. Rev.*, 1968, v. 171, p. 1058.
62. Обуховский В. В., Стрижевский В. Л.— В кн. *Квант. электрон.* Киев: Наукова думка, 1975.— Вып. 9, с. 51.
63. Yarborough J. M., Sussman S. S., Puthoff H. E., Pantell R. H., Johnson B. C.— *Appl. Phys. Lett.*, 1969, v. 15, p. 102.
64. Johnson B. C., Puthoff H. E., Soohoo J., Sussman S. S.— *Ibid.*, 1971, v. 18, p. 181.
65. Priestrup M. A., Fleming R. N., Pantell R. H.— *Ibid.*, 1975, v. 26, p. 418.
66. Арефьев И. М., Кривохижа С. В., Кызыласов Ю. И., Старунов В. С., Фабелинский И. Л.— *Письма ЖЭТФ*, 1968, т. 8, с. 142.
67. Мищенко В. А., Мыльников Г. Д., Соболенко Д. Н.— В кн. Тезисы докладов Всесоюзного симпозиума по приборам, технике и распространению миллиметровых и субмиллиметровых волн. Москва, 1976.— С. 27.
68. Орлов В. А., Фомин Ю. Н., Маренников С. И., Пархоменко А. И., *Квант. электрон.*, 1978, т. 5, с. 1808.
69. Мищенко В. А., Мыльников Г. Д., Соболенко Д. Н.— *Ibid.*, 1979, т. 6, с. 146.
70. Борн М., Хуань Кунь. Динамическая теория кристаллических решеток.— М.: ИЛ, 1958.
71. Никогосян Д. Н.— *Квант. электрон.*, 1977, т. 4, с. 5.
72. Gelbwachs J., Pantell R. H., Puthoff E. H., Yarborough J. M. *Appl. Phys. Lett.*, 1969, v. 14, p. 258.
73. Shaw E. D.— *Bull. Am. Phys. Soc.*, 1976, v. 21, p. 224.
74. Weiss J. A., Goldberg L. G.— *Appl. Phys. Lett.*, 1974, v. 24, p. 389.
75. Chang T. Y.— *IEEE Trans.*, 1974, v. MTT-22, p. 983.
76. Bloembergen N.— *Phys. Rev.*, 1956, v. 104, p. 324.
77. Gordon J. P., In: *Laser Technology and Application*/Ed. S. L. Marshall.— N. Y.: McGraw-Hill, 1968.— P. 31.
78. Chang T. Y.— *Цит. в³⁸ сб.*— P. 215.
79. Javan Q.— *Phys. Rev.*, 1957, v. 107, p. 1579.
80. Anderson P. W.— *J. Appl. Phys.*, 1957, v. 28, p. 1049.
81. Townes C. H., Schawlow A. L.— *Microwave Spectroscopy*, N. Y.: McGraw-Hill, 1955.
82. Dowling J. M.— *J. Mol. Spectr.*, 1968, v. 27, p. 527.
83. Garing J. S., Nielsen H. H., Rao K. N.— *Ibid.*, 1959, v. 3, p. 496.
84. Mould H. M., Price W. C., Wilkinson G. R.— *Spectrochim. Acta*, 1959, v. 15, p. 313.
85. Danielewicz E. J., Plant T. K., De Temple T. A.— *Opt. Comm.*, 1975, v. 13, p. 366.
86. Hodges D. T., Hartwick T. S.— *Appl. Phys. Lett.*, 1973, v. 23, p. 252.
87. Chang T. Y., Lin C.— *J. Opt. Soc. Am.*, 1976, v. 66, p. 362.
88. Chang T. Y., Bridges T. J., Burkhardt E. G.— *Appl. Phys. Lett.* 1970, v. 17, p. 249.
89. Gullberg K., Hartmann B., Kleman B.— *Phys. Scripta*, 1973, v. 18, p. 177.
90. Fetterman H. R., Schlossberg H. R., Waldman J.— *Opt. Comm.*, 1972, v. 6, p. 156.
91. Jennings D. A., Evenson K. M., Jimenez J. J.— *IEEE J. Quantum Electron.*, 1975, V. QE-11, p. 637.
92. Chang T. Y., McGee J. D.— *Ibid.*, 1976, v. QE-12, p. 62.

93. Дюбко С. Ф., Свич В. А., Фесенко Л. Д.— *Опт. и спектр.*, 1974, т. 37, с. 208.
94. Radford H. E.— *IEEE J., Quantum Electron.*, 1975, v. QE-11, p. 213.
95. Chang T. Y., Bridges T. J., Burkhardt E. G.— *Appl. Phys. Lett.*, 1970, v. 17, p. 357.
96. Wagner R. J., Zelano A. J., Ngai L. H.— *Opt. Comm.*, 1973, v. 8, p. 46.
97. Fetterman H. R., Schlossberg H. R., Parker C. D.— *Appl. Phys. Lett.*, 1973, v. 23, p. 684.
98. Дюбко С. Ф., Свич В. А., Фесенко Л. Д.— *Письма ЖЭТФ*, 1972, т. 16, с. 592.
99. Hodges D. T., Reel R. D., Barker D. H.— *IEEE J., Quantum Electron.*, 1973, v. QE-9, p. 1159.
100. Plant T. K., Newman L. A., Danielewicz E. J., De Temple T. A., Coleman P. D.— *IEEE Trans.*, 1974, v. MTT-22, p. 988.
101. Keilmann F., Sheffield R. L., Leite J. R. R., Feld M. S., Javan.— *Appl. Phys. Lett.*, 1975, v. 26, p. 19.
102. Дюбко С. Ф., Свич В. А., Фесенко Л. Д.— *ЖТФ*, 1973, т. 43, с. 1772.
103. Домнин Ю. С., Татаренков В. М., Шумяцкий П. С.— *Квант. электрон.*, 1974, т. I, с. 603.
104. Tanaka A., Tanimoto A., Murata N., Yamana M., Yoshinaga H.— *Japan. J. Appl. Phys.*, 1974, v. 13, p. 1491.
105. Jzatta J. R., Bean B. L., Caudle G. F.— *Opt. Comm.*, 1975, v. 14, p. 385.
106. Tanaka A., Yamana M., Yoshinaga H.— *IEEE J., Quantum Electron.*, 1975, v. QE-11, p. 853.
107. Kon S., Hagiwara E., Yano T., Hirose H.— *Japan J. Appl. Phys.*, 1975, v. 14, p. 731.
108. Plant T. K., Coleman P. D., De Temple T. A.— *IEEE J., Quantum Electron.*, 1973, v. QE-9, p. 962.
109. Дюбко С. Ф., Свич В. А., Фесенко Л. Д.— *Квант. электрон.*, 1973, т. 17, с. 128.
110. Дюбко С. Ф., Свич В. А., Фесенко Л. Д.— *ЖПС*, 1974, т. 20, с. 718.
111. Kkribanowitz N., Herman J. P., Osgood R. M., Feld M. S. Jr., Javan A.— *Appl. Phys. Lett.*, 1972, v. 20, p. 408.
112. Herman I. P., McGillivray J. C., Skribanowitz N., Feld M. S.— In: *Laser Spectroscopy*/Ed. R. G. Brewer, A. Mooradian,— N. Y. Plenum Press, 1974, P. 379.
113. Chang T. Y., Bridges T. J.— *Opt. Comm.*, 1970, v. 1, p. 423.
114. Chang T. Y., McGee J. D.— *Appl. Phys. Lett.*, 1971, v. 19, p. 103.
115. Kon S., Yano T., Hagiwara E., Hirose H.— *Japan J. Appl. Phys.*, 1975, v. 14, p. 1861.
116. Дюбко С. Ф., Фесенко Л. Д., Баскаков О. И., Свич В. А.— *ЖПС*, 1975, т. 23, с. 317.
117. Дюбко С. Ф., Свич В. А., Фесенко Л. Д.— *Изв. вузов. Сер. «Радиофизика»*, 1975, т. 18, с. 1434.
118. Дюбко С. Ф., Свич В. А., Фесенко Л. Д.— *ЖТФ*, 1975, т. 45, с. 2458.
119. Evans D. E., Peebles W. A., Sharp L. E., Taylor G.— *Opt. Comm.*, 1976, v. 18, p. 479.
120. Evans D. E., Guinee R. A., Huckridge D. A., Taylor G.— *Ibid.*, 1977, v. 22, p. 337.
121. Lipton K. S., Nicholson J. P.— *Ibid.*, 1978, v. 24, p. 321.
122. Wiggins J. D., Drozdowicz Z., Temkin R. J.— *IEEE J., Quantum Electron.*, 1978, v. WE-14, p. 23.
123. Danielewicz E. J., Weiss C. O.— *Opt. Comm.*, 1978, v. 27, p. 98.
124. Danielewicz E. J., Weiss C. O.— *IEEE J., Quantum Electron.*, 1978, v. QE-14, p. 222.
125. Yoshida T., Yamabayashi N., Miyazaki K., Ejisawa K.— *Opt. Comm.*, 1978, v. 26, p. 410.
126. Chang T. Y., Wang C. H., Cheo P. K.— *Appl. Phys. Lett.*, 1969, v. 15, p. 157.
127. Brown F., Silver E., Chase C. E., Button K. J., Lax B.— *IEEE J., Quantum Electron.*, 1972, v. QE-8, p. 499.
128. De Temple T. A., Plant T. K., Coleman P. D.— *Appl. Phys. Lett.*, 1973, v. 22, p. 644.
129. Brown F., Kronheim S., Silver E.— *Ibid.*, 1974, v. 25, p. 394.
130. Evans D. E., Sharp L. E., James B. W., Peebles W. A.— *Ibid.*, 1975, v. 26, p. 630.

131. Temkin R. J., Cohn D. R., Drozdowicz Z.— Opt. Comm., 1975, v. 14, p. 314.
132. Semet A., Luhmann N. C., Jr.— Appl. Phys. Lett., 1976, v. 28, p. 659.
133. Evans D. E., Sharp L. E., Peebles W. A., Taylor G.— Opt. Comm. 1976, v. 18, p. 9.
134. Shimizu F.— J. Chem. Phys., 1970, v. 52, p. 3572.
135. Skribanowitz N., Herman J. P., McGillivray J. C., Feld M. S.— Phys. Rev. Lett., 1973, v. 30, p. 309.
136. Clogston A. M.— J. Phys. and Chem. Sol., 1958, v. 4, p. 271.
137. Chang T. Y., McGee J. D.— Appl. Phys. Lett., 1976, v. 29, p. 725.
138. Frey R., Pradere F., Ducuing J.— Opt. Comm., 1977, v. 23, p. 65.
139. De Martino A., Frey R., Pradere F.— Ibid., 1978, v. 27, p. 262.
140. Bierry M., Frey R., Pradere F.— Rev. Sci. Instrum., 1977, v. 48, p. 737.
141. Бобровский А. Н., Веденов А. А., Кожевников А. В., Соболенко Д. Н.— Письма ЖЭТФ, 1979, т. 29, с. 589.
142. Von Engel A., Steenbeck N.— In: Electrische Gasentladungen.— Berlin: Springer-Verlag, 1932, Bd. 2, p. 85.
143. Dorgela H. B., Alting H., Boers J.— Physic Haad., 1935, v. 2, p. 959.
144. Jones C. R., Robertson W. W.— Bull. Am. Phys. Soc., 1968, v. 13, p. 198.
145. Елецкий А. В., Смирнов Б. М. Газовые лазеры.— М.: Атомиздат, 1971.
146. Nighan N. L.— Phys. Rev. Ser. A, 1970, v. A2, p. 1989.
147. Boot H. A. H., Clunie D. M., Thorn R. S. A.— Nature, 1963, v. 198, p. 773.
148. Справочник по лазерам.— М.: Сов. радио, 1978. Т.1, с. 133.
149. Faust W. L., McFarlane R. A., Patel C. J. N., Garrett C. G. B.— Phys. Rev. Ser. A, 1964, v. 133, p. 1476.
150. Пейтел Ч. К. Н., Фауст В. А., Мак-Фарлан Р. А., Гаррет Ч. Г. В.— ТИИЭР, 1964, т. 52, с. 756.
151. Цит. в ¹⁴⁸ справочник.— С.11.
152. Mathias L. E. S., Crocker A., Wills M. S.— IEEE J., Quantum Electron, 1967, v. QE-3, p. 170.
153. Levine J. S., Javan A.— Appl. Phys. Lett., 1969, v. 14, p. 348.
154. Turner R., Murphy R. A.— Infrared Phys., 1976, v. 16, p. 197.
155. Петров Ю. Н., Прохоров А. М.— Письма ЖЭТФ, 1965, т. 1, с. 39.
156. Цит. в ¹⁴⁸ Справочник.— С. 108.
157. Mathias L. E. S., Parker J. T.— Appl. Phys. Lett., 1963, v. 3, p. 16.
158. Gebbie H. A., Stone N. W. B., Finlay F. D.— Nature, 1964, v. 202, p. 685.
159. Mathias L. E. S., Crocker A., Wills M. S.— Electronics Lett., 1965, v. 1, p. 45.
160. Mathias L. E. S., Crocker A., Wills M. S.— IEEE J., Quantum Electron, 1968, v. QE-4, p. 205.
161. Steffen H., Kneubühl F. K.— Ibid., p. 992.
162. Turner R., Poehler T. O.— J. Appl. Phys., 1968, v. 39, p. 5726.
163. Grams F., Allen C., Wang M., Button K., Rubin L.— Proc. IEEE, 1967, v. 55, p. 420.
164. Sharp L. E., Wetherell A. T.— Appl. Opt., 1972, v. 11, p. 1737.
165. Flesher G. T., Mueller W. M.— Proc. IEEE, 1966, v. 54, p. 543.
166. Hocker L. O., Javan A.— Phys. Lett., Ser. A, 1967, v. 25, p. 489.
167. Hocker L. O., Javan A.— Appl. Phys. Lett., 1968, v. 12, p. 124.
168. Lide D. R. Jr., Maki A. G.— Ibid., 1967, v. 11, p. 62.
169. Maki A. G.— Ibid., 1968, v. 12, p. 122.
170. Jones R. G., Bradley C. C., Chamberlain J., Gebbie H. A., Stone N. W. B., Sixsmith H.— Appl. Opt., 1969, v. 8, p. 701.
171. Crocker A., Gebbie H. A., Kimmitt M. F., Mathias L. E. S.— Nature, 1964, v. 201, p. 250.
172. Mathias L. E. S., Crocker A.— Phys. Lett., 1964, v. 13, p. 35.
173. Akitt D. P., Jeffers W. Q., Coleman P. D.— Proc. IEEE, 1966, v. 54, p. 547.
174. Jeffers W. Q., Coleman P. D.— Appl. Phys. Lett., 1967, v. 10, p. 7.
175. Джефферс У. К., Колмен П. Д.— ТИИЭР, 1967, т. 55, с. 168.
176. Jeffers W. Q.— Appl. Phys. Lett., 1967, v. 11, p. 178.
177. Кауа Т., Минох А., Shimoda K.— J. Phys. Soc. Japan, 1968, v. 25, p. 1201.
178. Kido G., Miura N.— Appl. Phys. Lett., 1978, v. 33, p. 321.

179. Muller W. M., Flesher G. T.—Ibid., 1966, v. 8, p. 217.
180. Pollack M. A., Bridges T. J., Tomlinson W. J.—Ibid., 1967, v. 10, p. 253.
181. Benedict W. S., Pollack M. A., Tomlinson W. J.—IEEE J., Quantum Electron, 1969, v. QE-5, p. 108.
182. Coleman P. D., Jeffers W. Q., Johnson C., Wittig C., IEEE Trans., 1968, v. ED-15, p. 413.
183. McFarlane R. A., Fretz L. H.—Appl. Phys. Lett., 1969, v. 14, p. 385.
184. Wood O. R., Burkhard E. G., Pollack M. A., Bridges T. J. Ibid., 1971, v. 18, p. 261.
185. Coleman P. D.—IEEE J., Quantum Electron, 1973, v. QE-9, p. 130.
186. Adam B., Kneubühl F.—J. Appl. Phys., 1975, v. 8, p. 281.
187. Sturzenegger C., Vetsch H., Kneubühl F.—Infrared Phys., 1979, v. 19, p. 277.
188. Mathias L. E. S., Crocker A., Wills M. S.—Phys. Lett., 1965, v. 14, p. 33.
189. Akitt D. P., Wittig C. F.—J. Appl. Phys., 1969, v. 40, p. 902.
190. Lide D. R. Jr., Phys. Lett., Ser. A, 1967, v. 24, p. 599.
191. Дюбко С. Ф., Свич В. А., Валитов Р. К.—Письма ЖЭТФ, 1968, т. 7, с. 408.
192. Hard T. M.—Appl. Phys. Lett., 1969, v. 14, p. 130.
193. Hassler J. C., Coleman P. D.—Ibid., p. 135.
194. Hubner G., Hassler J. C., Coleman P. D.—Ibid., 1971, v. 18, p. 511.
195. Akitt D. P., Yardley J. J.—IEEE J., Quantum Electron, 1970, v. QE-6, p. 113.
196. Мильников Г. Д., Соболенко Д. Н., Щеблыкин Ю. В.—ДАН СССР, 1978, т. 240, с. 1336.
197. Техника спектроскопии в дальней ИК, субмиллиметровой и миллиметровой областях спектра /Под ред. Т. М. Лифшица.—М.: Мир, 1970.
198. Техника субмиллиметровых волн/ Под ред. Р. А. Валитова.—М.: Сов. радио, 1969.
199. Длинноволновая инфракрасная спектроскопия /Под ред. В. Н. Мурзина.—М.: Мир, 1966.
200. Lussier F. M.,—Laser Focus, October 1976, p. 66.
201. Бахтин В. Д., Половников Г. Г.—ПТЭ, 1973, № 5, 167.
202. Kimmit M. F.—Infrared Physic., 1978, v. 18, p. 675.
203. Кременчугский Л. С., Ройцина О. В., ПТЭ, 1976, т. 3, с. 7.
204. Handi A.—Infrared Phys., 1978, v. 18.
205. Putley E. H.—Ibid., p. 371.
206. Fetterman H. R., Clifton B. J., Tannewald P. E., Parker C. D.—Appl. Phys. Lett., 1974, v. 24, p. 70.
207. Drozdowicz Z., Woskoboynikov P. et al.—IEEE J. Quantum Electron. 1977, v. QE-13, p. 413.
208. Woskoboynikov P. et al.—Appl. Phys. Lett., 1978, v. 32, p. 527.
209. Drozdowicz Z., Lax B., Temkin R. J.—Ibid., 1978, v. 33, p. 154.
210. Woskoboynikov P., Praddaude H. C., Mulligan W. J., Cohn D. R., Lax B.—J. Appl. Phys., 1979, v. 50, p. 1125.
211. Fetterman H. R., Tannenwald P. E., Parker C. D., Melngailis J., Williamson R. C., Woskoboynikov P., Praddaude H. C., Mulligan W. J.—Appl. Phys. Lett., 1979, v. 34, p. 123.
212. Bridges T. J., Nguyen V. T.—Ibid., 1973, v. 23, p. 107.
213. Brignall N., Wood R. A., Pidgeon C. R., Wherrett B. S.—Opt. Comm., 1974, v. 12, p. 17.
214. Nguyen V. T., Bridges T. J.—Цит. в ³⁶ сб.—Р. 139.
215. Клышко Д. Н. Фотоны и нелинейная оптика.—М.: Наука, 1980.
216. Park H.—Bull. Am. Phys. Soc., 1980, v. 25, p. 891.
217. Laser Focus, 1980, v. 17, p. 18.
218. Ibid., p. 88.
219. Летохов В. С.—УФН, 1978, т. 125, с. 57.
220. Амбарцумян Р. В., Горохов Ю. А., Летохов В. С., Макаров Г. Н.—Письма ЖЭТФ, 1975, т. 21, с. 35.
221. Амбарцумян Р. В., Горохов Ю. А., Летохов В. С., Макаров Г. Н. Ibid., 1975, т. 22, с. 96.
222. Аверин В. Г., Бабичев А. Н., Баронов Г. С., Карчевский А. И., Красников Н. С., Куликов С. Ю., Мерзляков А. В., Морозов М. Г., Писанко А. И., Скворцова Е. П.—Квант. электрон., 1979, т. 6, с. 2637.

- 223. Васильев Б. И., Дядькин А. П., Суханов А. Н.— Письма ЖТФ, 1980, т. 6, с. 211.
- 224. Rabinowitz P., Stein A., Brickman R., Kaldor A.— Appl. Phys. Lett., 1979, v. 35, p. 739.
- 225. Бломберген Н.— УФН, 1966, т. 97, с. 307.
- 226. Sorokin P. P., Lankard J. R.— IEEE J., Quantum Electron, 1973, v. QE-9, p. 227.
- 227. De Martini F.— J. Appl., Phys., 1966, v. 37, p. 4503.
- 228. Аканаев Б. А., Ахманов С. А., Хронопуло Ю. Г.— ЖЭТФ, 1968, т. 55, с. 1253.
- 229. Mayer M. G.— C. R. Ac. Sci. Ser., B, 1968, t. 266, p. 123.
- 230. Бутылкин В. С., Козярский Д. Ю., Плюснина Э. Н., Фишер П. С., Хронопуло Ю. Г.— Квант. электрон., 1975, т. 2, с. 2282.
- 231. Gross R. W. F.— Opt. Eng., 1974, v. 13, p. 506.
- 232. Бутылкин В. С., Капляя А. Е., Хронопуло Ю. Г., Якубович Е. И. Резонансные взаимодействия света с веществом.— М.: Наука, 1977.
- 233. Patel C. K. N., Shaw E. D.— Phys. Rev. Ser. B, 1971, v. 3, p. 1279.
- 234. Бычков Ю. И., Карлова Е. К., Карлов Н. В.— Письма ЖТФ, 1976, т. 2, с. 281.