

535:530.181

НЕЛИНЕЙНАЯ ОПТИКА И ПРЕОБРАЗОВАНИЕ СВЕТА В ГАЗАХ

В. Г. Архипкин, А. К. Попов

СОДЕРЖАНИЕ

1. Введение	423
2. Физические основы нелинейной оптики газообразных сред	424
2.1. Нелинейная поляризация — источник излучения на новых частотах.	
2.2. Особенности нелинейной оптики газов. 2.3. Резонансная нелинейная восприимчивость. 2.4. Волновой синхронизм. 2.5. Высшие нелинейности, прямые и каскадные процессы. 2.6. Автоионизационные резонансы. 2.7. Индуцированные автоионизационно-подобные резонансы. 2.8. Нелинейности четных порядков. 2.9. Вынужденное комбинационное рассеяние.	
3. Техника эксперимента	436
4. Генерация и применение узкополосного перестраиваемого ВУФ излучения	441
4.1. Характеристики нелинейно-оптических преобразователей. 4.2. Сопоставление характеристик нелинейно-оптических и нелазерных источников ВУФ излучения. 4.3. Применение нелинейно-оптических источников ВУФ излучения.	
5. Преобразование частоты излучения эксимерных лазеров в сине-зеленую область спектра	451
6. Источники узкополосного перестраиваемого ИК излучения	451
6.1. ВЭКР в пара́х металлов. 6.2. ВКР в молекулярных газах. 6.3. ГТГ на колебательных нелинейностях молекул.	
7. Апконверсия и усовершенствование методов регистрации ИК излучения	453
8. Обращение волнового фронта	457
5. Заключение	458
Приложение. Взаимодействие интенсивного лазерного излучения с резонансными средами. Лимитирующие процессы	
а) Однофотонное поглощение и преломление. б) Нелинейное поглощение и преломление. в) Движение населенностей и динамический штарк-эффект. г) Многофотонная ионизация и пробой. д) Параметрическое просветление.	
Список литературы	462

1. ВВЕДЕНИЕ

Развитие методов аффективного преобразования частот лазерного излучения — одна из важнейших задач лазерной физики. Она имеет большое научное и прикладное значение для освоения новых диапазонов частот когерентного излучения, усовершенствования методов детектирования излучений, селективного воздействия лазерного излучения на вещество, контроля состава и состояния веществ, в частности, окружающей атмосферы. Особый интерес представляет расширение спектральных диапазонов узкополосного плавного перестраиваемого по частоте излучения в рентгеновский, вакуумно-ультрафиолетовый и ИК диапазоны, развитие методов преобразования частоты непрерывного излучения, повышение чувствительности приемников ИК диапазона, усовершенствование методов коррекции волнового фронта излучения. В последние годы в нелинейной оптике все шире стали применяться газообразные нелинейные среды (ГНС) — газы, пары металлов и химических соединений. В дальнейшем под словом «газы» будут пониматься газообразные среды вообще. Их перспективность определяется прозрачностью в широком диапазоне спектра, высокой радиационной стойкостью и са-

мовосстановлением после пробоя, возможностью плавного изменения состава, концентрации, длины и апертуры, и, что очень важно, они позволяют ставить задачи, решение которых затруднено или совсем невозможно на основе нелинейных кристаллов.

Газы обладают более низкой (на 5–7 порядков) концентрацией активных центров и более высоким порядком нелинейности по сравнению с кристаллами. Так как мощность генерируемого излучения определяется квадратами соответствующих величин, то, на первый взгляд, ГНС малоприменимы для практических применений. Однако в ходе целенаправленных исследований нелинейных оптических процессов в газах найдены условия, при которых они могут быть использованы для решения научных и прикладных задач, и получены такие интересные результаты, как генерация третьей гармоники (ГТГ) в парах металлов с коэффициентом преобразования (КП) порядка 10 %¹; генерация инфракрасного (ИК) излучения в диапазоне 1–20 мкм на основе вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) в парах металлов с квантовым КП, достигающим 50 %²; преобразование слабых ИК излучений в ближний ультрафиолетовый (УФ) диапазон с квантовым КП порядка 60 %^{3, 4}; преобразование ИК изображений^{5, 6} и одно-временное преобразование широких участков ИК спектра в видимый диапазон⁷; эффективное обращение волнового фронта (ОВФ) излучения CO₂-лазеров^{8, 9}; генерация когерентного вакуумно-ультрафиолетового (ВУФ) и мягкого рентгеновского (МР) излучений вплоть до $\lambda = 35,5$ нм^{10–15}; прямое преобразование ИК излучения в ВУФ диапазон¹⁶ на основе высших оптических нелинейностей атомов; сложение частот в непрерывном режиме^{12, 17}. Устройства на основе ГНС начинают применяться в ИК^{2, 7} и ВУФ^{18–24} спектроскопии атомных, молекулярных сред, плазмы и продуктов химических реакций, голографии²⁵, в качестве задающих генераторов для получения с помощью эксимерных усилителей мощного ВУФ излучения с хорошими пространственными и спектральными характеристиками¹³ и для других приложений.

Важную роль в развитии нелинейной оптики газообразных сред сыграли первые эксперименты по изучению резонансных нелинейных оптических процессов в парах металлов²⁶. Они стимулировали работы, направленные на выяснение возможности использования ГНС в преобразователях частоты лазерного излучения (см., например,²⁷).

Нелинейная оптика газов и паров металлов имеет свои особенности. Нелинейные восприимчивости атомов и молекул возрастают на несколько порядков при приближении частот накачки к одно- и многофотонным резонансам, но при этом возникает ряд сопутствующих конкурирующих резонансных нелинейных процессов. При использовании атомов металлов в качестве нелинейной среды для получения однородных паров или их смесей с газами нужны специальные устройства. Коэффициенты преломления газов не обладают анизотропией, поэтому приходится применять специфические методы достижения в них волнового синхронизма. Таким образом, оптимальные условия эффективного преобразования излучений в газах зависят от конкретной совокупности указанных параметров.

Данный обзор посвящен физическим основам, экспериментальной технике, достижениям и применениям нелинейной оптики газообразных сред.

2. ФИЗИЧЕСКИЕ ОСНОВЫ НЕЛИНЕЙНОЙ ОПТИКИ ГАЗООБРАЗНЫХ СРЕД

2.1. Нелинейная поляризация — источник излучения на новых частотах

Источником оптического излучения является поляризация, т. е. дипольный момент единицы объема вещества на соответствующей частоте. При определенных условиях (например, в среде без дисперсии) поляризация единицы объема среды \mathcal{P} может быть представлена в виде разложения по сте-

пеням напряженности электрической компоненты электромагнитного поля

$$\mathcal{P} = \kappa^{(1)}E + \kappa^{(2)}E^2 + \kappa^{(3)}E^3 + \kappa^{(4)}E^4 + \dots = \mathcal{P}^{(1)} + \mathcal{P}^{(2)} + \mathcal{P}^{(3)} + \mathcal{P}^{(4)} + \dots, \quad (1)$$

где $\mathcal{P}^{(1)} = \kappa^{(1)}E$ — линейная, а $\mathcal{P}^{(2)} + \mathcal{P}^{(3)} + \mathcal{P}^{(4)} + \dots = \mathcal{P}_{\text{нл}}$ — нелинейная поляризованности среды; $\mathcal{P}^{(n)}$ — нелинейная поляризация n -го порядка; коэффициент $\kappa^{(1)}$ характеризует линейные свойства вещества, $\kappa^{(n)}$ ($n = 2, 3, 4, \dots$) — нелинейные.

Представим поле излучения в виде совокупности монохроматических волн

$$E = \frac{1}{2} \sum_j \{A_j \exp[-i(\omega_j t - k_j z)] + A_j^* \exp[i(\omega_j t - k_j z)]\}; \quad (2)$$

здесь A_j , ω_j , k_j — соответственно комплексная амплитуда, частота и модуль волнового вектора взаимодействующих волн; «*» означает комплексное сопряжение. Подставляя (2) в (1), нетрудно видеть, что слагаемые в (1), начиная со второго, т. е. нелинейные компоненты поляризации могут служить источниками излучения на суммарных и разностных частотах, а также на частотах гармоник падающего на среду излучения. Величина каждой компоненты нелинейной поляризации определяется напряженностью поля и величинами $\kappa^{(n)}$. Так, например, за счет кубической нелинейности $\kappa^{(3)}$ могут возникать бегущие волны поляризации на следующих новых частотах: третьих гармониках $3\omega_j$, суммарных $\omega_i + \omega_p + \omega_k$, $2\omega_i + \omega_k$ ($i \neq k$) и разностных $\omega_i \pm \omega_k - \omega_p$, $2\omega_i - \omega_k$ и т. п. частотах.

Аналогичным образом за счет поляризации девятого порядка можно получать колебания на частотах $8\omega_i + \omega_k$. Если частоты ω_j соответствуют длинам волн в ультрафиолетовой области, где еще не поглощает воздух ($\lambda \gtrsim 2000 \text{ \AA}$), то генерируемое за счет нелинейности девятого порядка излучение будет лежать в диапазоне $\lambda = 2000 \text{ \AA}/9 \approx 220 \text{ \AA}$, т. е. в мягкой рентгеновской области. Плавно перестраивая частоту ω_k , можно перестраивать длину волны этого излучения. Отсюда вытекает возможность использования нелинейных оптических явлений в газах для продвижения коротковолновой границы лазерного излучения в мягкий рентгеновский диапазон. Такие возможности открывают широкие перспективы как для фундаментальной науки, так и для многих приложений, таких как диагностика термоядерной плазмы, создание микросхем для компьютеров и другие микротехнологии, направленное изменение физических и химических свойств вещества и т. д.

Другое важное приложение нелинейной оптики паров металлов связано с генерацией, а также визуализацией и детектированием ИК излучений. Пусть частота ω_2 соответствует ИК излучению. Тогда, складывая ее с частотой излучения лазера ω_1 , с помощью нелинейных процессов третьего порядка исходное ИК излучение можно визуализировать. Поскольку при этом вместо кванта $\hbar\omega_2$ появляется квант большей энергии $\hbar(2\omega_1 + \omega_2)$, то наряду с визуализацией слабых ИК излучений можно получить еще и усиление результирующего сигнала в $(2\omega_1 + \omega_2)/\omega_2$ раз. Для далекого ИК излучения эта величина может достигать нескольких десятков единиц. При этом существенным преимуществом сред с кубической нелинейностью является значительное различие частот слабого преобразованного излучения и сильной накачки.

Подобным же образом, базируясь на эффективных лазерах видимого и УФ диапазона, можно получать мощное перестраиваемое по частоте ИК излучение на разностной частоте или на частоте вынужденного комбинационного рассеяния для резонансного воздействия на поглощающие молекулы, например, с целью управления химическими реакциями, либо, наоборот, ИК излучение, для которого прозрачна атмосфера и оптические материалы. Создание источников перестраиваемого ИК излучения открывает широкие перспективы не только в физике, но и в химии, биологии, медицине, астрофизике, для дистанционного зондирования окружающей среды и т. д.

2.2. Особенности нелинейной оптики газов

В отличие от кристаллов, где для преобразования частоты излучения, как правило, используется лишь поляризация, пропорциональная E^2 , в газах главную роль играют нелинейные эффекты более высоких порядков.

Интенсивность излучения I_s , генерируемого за счет нелинейности n -го порядка, пропорциональна фактору

$$I_s \sim |\chi^{(n)} A^n|^2 = |\chi^{(n)}|^2 I^n$$

и, следовательно, сильно зависит от напряженности (или интенсивности I) исходного излучения, величины нелинейной восприимчивости $\chi^{(n)}$ и порядка нелинейности процесса. Анализ показывает, что в нерезонансном случае $\chi^{(n)} \sim N/E_{ат}^n$, где N — концентрация атомов, $E_{ат}$ — величина порядка характерной внутриатомной напряженности. Обычно она на два и более порядков превышает напряженности излучения даже в сфокусированных пучках лазеров средней мощности. Принимая во внимание, что в газах концентрация атомов N на 5—7 порядков меньше, чем в кристаллах, а порядок нелинейности (n) как минимум на единицу больше, получаем, что при прочих равных условиях ожидаемая мощность генерации в газе будет на 14—18 порядков меньше. Вот почему в первые годы развития нелинейной оптики практическое применение газов в нелинейной оптике считалось нереальным. Это ограничение, поначалу казавшееся принципиальным, удалось преодолеть за счет использования резонансных и квазирезонансных нелинейных процессов, выяснения оптимальных условий преобразования с учетом многообразия физических процессов в поле интенсивного лазерного излучения.

2.3. Резонансная нелинейная восприимчивость

Можно показать, что в среде с дисперсией для монохроматических волн (2) связь между спектральной компонентой наведенной поляризации на суммарной частоте $\omega_s = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \dots + \omega_n$ и внешними полями имеет вид

$$\mathcal{P}^{(n)}(\omega_s) = \frac{1}{2} P^{(n)}(\omega_s) \exp \{ -i [\omega_s t - (k_1 + k_2 + \dots + k_n) z] \} + \text{к.с.},$$

где комплексная поляризация n -го порядка $P^{(n)}(\omega_s)$ определяется как

$$P^{(n)}(\omega_s) = \frac{1}{2^{n-1}} \chi^{(n)}(-\omega_s, \omega_1, \omega_2, \dots, \omega_n) A_1 A_2 \dots A_n, \quad (3)$$

$\chi^{(n)}(-\omega_s, \omega_1, \omega_2, \dots, \omega_n) \equiv \chi^{(n)}(\omega_s)$ — комплексная нелинейная макроскопическая восприимчивость n -го порядка. В процессах с вычитанием частот в (3) необходимо изменить знак у соответствующих частот, а их амплитуды — на комплексно-сопряженные.

Для свободных атомно-молекулярных систем, в том числе газов, макроскопическая восприимчивость $\chi^{(n)}$ связана с микроскопической (атомной и молекулярной) $\chi^{(n)}$ и концентрацией частиц N простым соотношением $\chi^{(n)}(\omega_s) = N \chi^{(n)}(\omega_s)$.

В изотропных средах низшим порядком нелинейности является $n = 3$. В газах нерезонансная восприимчивость $\chi^{(3)}$ обычно значительно меньше таковой для твердых тел и жидкостей. Для газов нелинейная восприимчивость может быть вычислена из первых принципов. Существующие различные подходы к расчету $\chi^{(n)}$ можно найти, например, в ^{2, 28–33}.

Рассмотрим, как резонанс проявляется в нелинейной восприимчивости. Примеры резонансных нелинейных процессов приведены на рис. 1. Доминирующее слагаемое в выражении для $\chi^{(3)}(-\omega_s; \omega_1, \omega_2, \omega_3)$ (см. рис. 1, а) пропорционально фактору (см., например, ^{2, 28})

$$\chi^{(3)}(\omega_s) \sim \frac{d_g m d_{mn} d_n d_{lg}}{\hbar^3 (\omega_1 - \omega_{mg}) (\omega_1 + \omega_2 - \omega_{ng}) (\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 - \omega_{lg})}, \quad (4)$$

где ω_{ig} — собственные частоты атома, $\omega_s = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$, d_{ik} — проекции электрических дипольных моментов переходов на направление напряженностей электрических полей накачки. В нерезонансном случае разности

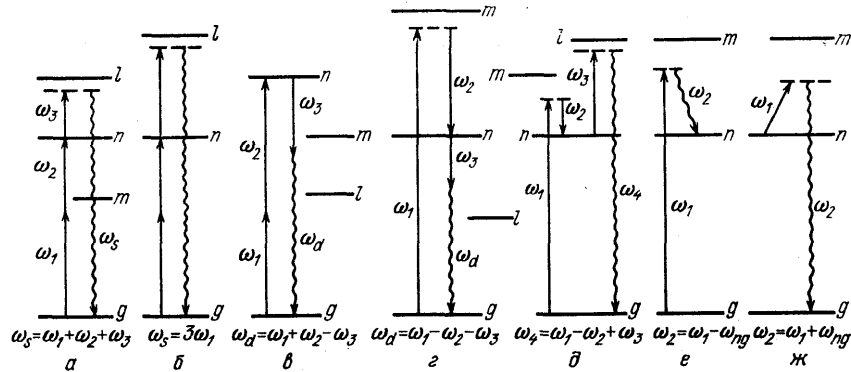


Рис. 1. Преобразование частоты излучения на кубической нелинейности в условиях двухфотонного резонанса.

а — Сложение частот. б — Генерация третьей гармоники. в — Генерация разностной частоты. г — Генерация разностной частоты при ВКР. д — Схема вынужденного когерентного антистоксова рассеяния. е — Стоксово ВКР. ж — Антистоксово ВКР

частот, стоящие в знаменателе, оказываются порядка собственных частот. Помножив их на \hbar , получаем энергии переходов, а поделив на d_{ik} , — величины порядка внутриатомных напряженностей. Это как раз та самая зависимость нелинейной восприимчивости от внутриатомных полей, о которой уже говорилось выше. Устремим теперь частоты полей и их комбинации к частотам переходов. При этом знаменатели устремятся к нулю.

В пределе указанные разности следует заменить на полуширины атомных переходов Γ_{ig} (см., например, ^{2, 28}). Наименьшим поглощением обычно сопровождается двухфотонный резонанс. Целесообразность его использования при генерации гармоник, по-видимому, впервые была отмечена в работе ³⁴. Таким образом, если имеется один резонанс, то получаем выигрыш в ω_{ig}/Γ_{ig} раз. Для неподвижных атомов с узкими резонансами эта величина составляет $10^{15}/10^8 = 10^7$ раз. Для движущихся атомов необходимо ввести в знаменатель доплеровские сдвиги и усреднить по скоростям движущихся атомов. В этом случае выигрыш составляет приблизительно 10^5 раз. Если одновременно имеет место несколько резонансов, например двухфотонный и трехфотонный, возрастание увеличивается на соответствующие аналогичные факторы (для неподвижного атома). Таким образом, использование резонансов позволяет скомпенсировать малость концентрации атомов и молекул в газах и смягчить требование на высокие интенсивности возбуждающего излучения.

Выражение для нерезонансной восприимчивости $\chi^{(3)}(\omega_s)$ содержит целый ряд слагаемых типа (4) ²⁸⁻³¹.

Наиболее просто выражение для $\chi^{(3)}$ в различных частных случаях можно получить, используя диаграммную технику (см., например, ^{2, 31}).

В табл. I для примера приведены атомные нелинейные восприимчивости $\chi^{(3)}$ для некоторых металлов в условиях двухфотонного резонанса. Сравне-

Таблица I
Резонансные нелинейные восприимчивости $\chi^{(3)}(3\omega)$ (двухфотонный резонанс) ¹¹

Среда	Резонансные уровни и состояния	$ \chi^{(3)}(3\omega) \times 10^{-30}$, ед. CGSE
Cs	6s9d ($^2D_{3/2}$)	3,0
Mg	3d (1D_2)	0,0897
Sr	5s5d (1D_2)	0,51
Zn	4s5s (1S_0)	0,31

ние этих значений с характерными нерезонансными восприимчивостями щелочных металлов ($\chi^{(3)} \sim 10^{-34} - 10^{-32}$ ед. CGSE³⁵) и благородных газов ($\chi^{(3)} \sim 10^{-39} - 10^{-36}$ ед. ССЗЕ³⁶)

иллюстрирует резонансный выигрыш (рис. 2).

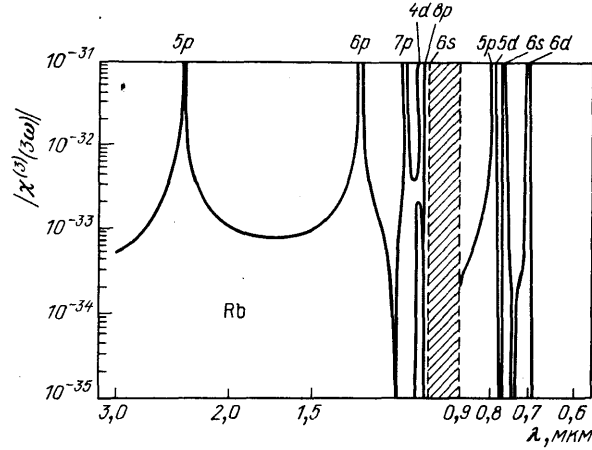


Рис. 2. Зависимость $|\chi^{(3)}(3\omega)|$ от длины волны излучения накачки для атомов Rb³⁵ (в ед. CGSE). В заштрихованной области используется приближение недействительно

Генерация излучения с энергией кванта, большей энергии ионизации, неизбежно связана с вовлечением в процесс взаимодействия состояний непрерывного спектра — ионизационного континуума. Последний может определять как основные характеристики преобразования, так и вклад сопутствующих процессов, которые могут приводить к ограничению эффективности преобразования. К ним относятся одно- и многофотонная ионизация с основного или (и) возбужденных состояний.

С учетом континуума формула (4) для нелинейной восприимчивости должна включать интегрирование по состояниям непрерывного спектра, т. е. слагаемые типа

$$\chi^{(3)}(\omega_s) \approx \frac{d_{gm}d_{mn}}{\hbar^2(\omega_1 - \omega_{mg})(\omega_1 + \omega_2 - \omega_{ng})} \int_{\varepsilon_1}^{\infty} \frac{d_n \varepsilon d_{eg}}{\varepsilon - \hbar\omega_s} d\varepsilon, \quad (5)$$

ε_i — энергия ионизации; $\omega_s = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$; в (5) интеграл берется в смысле главного значения.

Выше изложены лишь основные черты нелинейных оптических поляризаций в квазирезонансных средах. Фактически необходимо учитывать вырождение энергетических уровней и правила отбора для полей с различными поляризациями (см., например,²). Выражение для $\chi^{(3)}$ значительно усложняется в результате процессов насыщения, появления заселенностей промежуточных уровней, штарк-эффекта, немонохроматичности и др. (см., например,^{2, 29} и приложение).

2.4. Волновой синхронизм

Для когерентных нелинейных процессов типа генерации суммарных и разностных частот большие амплитуды нелинейных поляризаций являются необходимым, но не достаточным условием эффективного преобразования излучения. Генерируемое излучение будет нарастать при распространении в нелинейной среде лишь при условии фазового согласования бегущей волны нелинейной поляризации и генерируемого ею излучения. Только в этом случае интерференция волн не приведет к обратному преобразованию энергии излучения в накачку и периодическому тушению генерируемого излучения вдоль среды. Например, для плоских волн и процесса $\omega_s = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$ условие синхронизма (одинаковости фаз нелинейной поляризации и излучения вдоль всей среды) имеет вид $\Delta k = \mathbf{k}_s - (\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_3) = 0$, где \mathbf{k}_j — волновые векторы излучений в нелинейной среде. Если $\Delta \mathbf{k} \neq 0$, то нарастание генерируемой волны происходит лишь на длине синхронизма $L_c = |\pi/\Delta k|$.

Во многих случаях для достижения высоких интенсивностей накачки ее приходится фокусировать в нелинейную среду. При этом амплитуды накачки велики лишь в области фокуса, где в основном и происходит преобразование. При фокусировке фазовое согласование должно осуществляться между пространственными конфигурациями нелинейной поляризации и генерируемого излучения. В свою очередь при заданных конфигурациях накачки пространственные характеристики нелинейной поляризации различны для процессов сложения и вычитания. Различными оказываются и условия синхронизма³⁷. Амплитуду излучения с фокусом при $z = f$ удобно представить в виде гауссовой моды TEM_{00}

$$A_j = A_0 (1 + i\xi)^{-1} \exp[-k_j r^2 b^{-1} (1 + i\xi)^{-1}], \quad (6)$$

где $r^2 = x^2 + y^2$, $\xi = 2(z - f)/b$, b — конфокальный параметр фокусировки гауссова пучка. При $r = w = [b(1 + \xi^2/k_j)]^{1/2}$ напряженность поля уменьшается в e раз по сравнению со значением в центре пучка. Величину w иногда называют радиусом пучка. На расстоянии $z = f \pm (b/2)$ от фокуса площадь светового пятна увеличивается вдвое по сравнению с его площадью в фокусе. Полная мощность излучения в пучке определяется выражением

$$W_j = \frac{c}{8\pi} \int_{-\infty}^{\infty} |A_j|^2 dx dy = \frac{cA_0^2 S}{8\pi}, \quad S = \frac{b\lambda}{4}, \quad (7)$$

c — скорость света.

Величину S можно рассматривать как эффективную площадь гауссова пучка в фокусе. Пренебрегая истощением накачки, КП по мощности в поле гауссова пучка для процессов третьего порядка может быть представлен в виде^{37, 38}

$$\eta_p = \frac{W_4}{W_3} = v_1 v_2 v_3 v_4 \left| \frac{16\pi^2}{c} \chi^{(3)} N \right|^2 F_j \left(\Delta k b; \frac{k''}{k'}, \frac{b}{L}, \frac{f}{L} \right) W_1 W_2 = \\ = v_3 v_4 \left| \frac{4\pi^3}{c} \chi^{(3)} N b \right|^2 F_j \left(\Delta k b; \frac{k''}{k'}, \frac{b}{L}, \frac{f}{L} \right) \frac{W_1}{S_1} \frac{W_2}{S_2}, \quad (8)$$

где $v_{1,2,3,4}$ — волновые числа ($v = \omega/2\pi c$); $k'' = k_1 + k_2 + k_3$; $k' = k_1 + k_2 \pm k_3$ соответственно для процессов сложения ($j = 1$) и вычитания ($j = 2$); $k' = k_1 - k_2 - k_3$ для $v_4 = v_1 - v_2 - v_3$ ($j = 3$); $\Delta k = k_4 - k'$, $k_{1,2,3,4}$ — модули волновых векторов излучения. Функцию F_j называют интегралом фазового рассогласования (или фокусировки). Ее исследование можно найти в³⁷. В общем случае для нелинейной среды длиной L эта функция зависит от положения точки фокуса относительно центра среды (f/L), величины фазового рассогласования на длине b , а также от типа нелинейного процесса j .

Анализ выражения (8) показывает, что в случае жесткой фокусировки ($b \ll L$) в центр нелинейной среды функция F_j полностью определяется величиной параметра $\Delta k b$. Однако оптимальные значения этого параметра, вообще говоря, различны при варьировании плотности среды, волновой расстройке при фиксированной плотности среды (например, за счет синхронизирующей примеси) или при варьировании конфокального параметра. В частности, если $k''/k' \approx 1$, а Δk изменяется без изменения концентрации атомов, то максимальное преобразование в гауссовых пучках достигается при следующих значениях $b\Delta k$:

$$\begin{aligned} (b\Delta k)_{\text{опт}} &= -2, \quad v_4 = v_1 + v_2 + v_3, \\ &= 0, \quad v_4 = v_1 + v_2 - v_3, \\ &= 2, \quad v_4 = v_1 - v_2 - v_3. \end{aligned} \quad (9)$$

Если же среда однокомпонентная и фазовое согласование достигается за счет изменения ее концентрации, то максимум генерации достигается при нескольких отличных от (9) значениях $b\Delta k$. В приближении $k''/k' \approx 1$ оптималь-

ные значения равны:

$$\begin{aligned}(b\Delta k) &= -4, \quad v_4 = v_1 + v_2 + v_3, \\ &= \mp 2, \quad v_4 = v_1 + v_2 - v_3, \\ &= 4, \quad v_4 = v_1 - v_2 - v_3.\end{aligned}\quad (10)$$

Таким образом, из (10) следует, что процесс с $j = 2$, в отличие от $j = 1, 3$, может быть эффективным как в отрицательно дисперсионной среде, так и в среде с положительной дисперсией. При $k''/k' \neq 1$ оптимальные значения $(b\Delta k)_{\text{опт}}$ зависят от этого параметра, причем эффективность преобразования с ростом k''/k' уменьшается³⁹.

В слабо сфокусированных гауссовых пучках ($b \gg L$), в отличие от плосковолнового приближения, фазовый синхронизм реализуется при волновой расстройке

$$\begin{aligned}(\Delta k)_{\text{опт}} &= 2m_j b^{-1}, \quad m_j \approx -2, \quad j = 1, \\ &\approx k''(k')^{-1} - 1, \quad j = 2, \\ &\approx k''(k')^{-1} + 1, \quad j = 3,\end{aligned}\quad (11)$$

которая необходима для компенсации дополнительной расстройки, обусловленной расходимостью излучения. При $b \rightarrow \infty$ оптимальная расстройка обращается в нуль, как и должно быть для плоской волны.

2.5. Высшие нелинейности, прямые и каскадные процессы

Как уже отмечалось, в изотропной нелинейной среде может происходить сложение и вычитание частот нечетного числа фотонов, более чем трех. Такие процессы могут быть обусловлены как нелинейностями высших порядков типа $P^{(n)} = 2^{1-n} \chi^{(n)} N A^n$ ($n = 5, 7, 9 \dots$), так и последовательным преобразованием на нелинейностях низших порядков. Например, генерация пятой гармоники может осуществляться как за счет нелинейности пятого порядка, так и за счет нелинейности третьего порядка. В последнем случае сначала генерируется третья гармоника, затем снова на нелинейности третьего порядка происходит сложение фотона третьей гармоники с двумя фотонами накачки $P^{(3)}(5\omega) = \chi^{(3)} N A(3\omega) A(\omega) A(\omega)/4$. Чем выше порядок прямого нелинейного процесса, тем большая совокупность каскадных процессов низшего порядка может приводить к генерации излучения на той же частоте. Поэтому в общем случае можно говорить лишь о результирующем преобразовании, которое определяется интерференцией прямого и каскадного взаимодействий⁴⁰. В конкретных условиях, в зависимости от наличия промежуточных q -фотонных резонансов, величины n , концентрации среды N и характера фокусировки, вклады прямых и различных каскадных процессов могут дискриминироваться. Это обусловлено тем, что напряженности полей, генерируемых в каждом из элементарных процессах, входящих в каскад, зависят от указанных параметров. Условия волнового синхронизма в общем случае также зависят от типа, порядка процесса и степени фокусировки⁴¹⁻⁴³.

Для прямых процессов n -го порядка выражение (8) обобщается и может быть представлено в виде⁴²

$$W_s = \frac{\pi^{42(n+1)}}{c^{n-1} b^{n-3}} |N \chi^{(n)}|^2 v_s \prod_{p=1}^n v_p W_p F_j^{(n)} \left(\Delta k b; \frac{b}{L}, \frac{f}{L}, \frac{k''}{k'} \right). \quad (12)$$

Наиболее простой вид $F_j^{(n)}$ (индекс j описывает тип процесса) имеет в случае генерации^{40, 43} гармоник. В общем случае выражение для $F_j^{(n)}$ исследовано в работе⁴²⁶ (для $n = 5$ см. ^{42a}). Оптимальные значения величины $(b\Delta k)_{\text{опт}}$, как и для процессов третьего порядка, зависят от того, какие параметры варьируются, и, например, для процессов сложения при жесткой фоку-

сировке имеют вид:

$$\begin{aligned}(b\Delta k)_{\text{опт}} &= -2(2n-2), & \text{изменение } N, \\ &= -2(2n-4), & \text{изменение } \Delta k, N \text{ фиксирована,} \\ &= -(n-1), & \text{изменение } b.\end{aligned}\quad (13)$$

При учете каскадных процессов амплитуда генерируемого излучения представляется в виде суммы слагаемых, обусловленных прямыми, каскадными процессами и их интерференцией. Выражение для мощности генерируемого излучения становится более сложным. Однако в ряде случаев оно по-прежнему может быть представлено в виде (12)⁴². Например, в случае

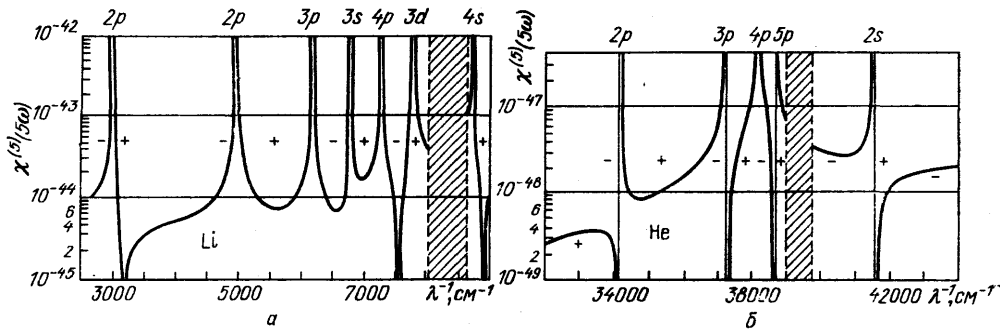


Рис. 3. Зависимость $\chi^{(5)}(5\omega)$ от длины волны излучения накачки⁴².
а — Li. б — He. Знаки «+», «—» означают знаки нелинейной восприимчивости в соответствующей области

слабой фокусировки генерация излучения за счет прямых и каскадных процессов определяется одной и той же волновой расстройкой. При этом в (12) следует $\chi^{(n)}$ заменить на $\chi_{\text{эфф}}^{(n)}$, содержащую сумму восприимчивости для прямого процесса и произведений восприимчивостей для каскадных процессов, более низкого порядка с коэффициентами, зависящими от N .

В случае фокусированных пучков выражение для $F^{(n)}$ в некоторых ситуациях также может быть приведено к виду (12). В частности, для генерации пятой гармоники в (12) следует положить $n = 5$, а функцию $F^{(5)}$ заменить на $|\mathcal{F}_1^{(5)} + \beta \mathcal{F}_1'|^2$, где $|\mathcal{F}_1^{(5)}|^2 = F_1^{(5)}$ и $|\mathcal{F}_1'|^2 = F_1$ — интегралы фазового согласования для прямого и ступенчатого процессов соответственно, β — отношение их вкладов:

$$\beta = i6\pi\nu_1 b N \chi^{(3)} \chi^{(3)*} (\chi^{(5)})^{-1};$$

$\chi^{(5)}$ — атомная восприимчивость прямого процесса пятого порядка, $\chi^{(3)}$ — для третьей гармоники, $\chi^{(3)*}$ — для процесса сложения $\nu_3 + \nu_1 + \nu_1$.

Квазирезонансная нелинейная атомная восприимчивость n -го порядка для процесса сложения частот $\omega_s = \omega_1 + \omega_2 + \dots + \omega_n$ имеет вид (см., например,⁴⁰)

$$\chi^{(n)}(\omega_s) = \hbar^{-n} d_{gm} d_{mn} \dots d_{kg} [(\omega_1 - \omega_{mg})(\omega_1 + \omega_2 - \omega_{ng}) \dots (\omega_s - \omega_{kg})]^{-1};$$

здесь предполагается, что заселено только основное состояние g . Эксперименты и оценки показывают, что даже при концентрациях $N \approx 10^{16} - 10^{17}$ макроскопическая восприимчивость $\chi^{(n)} = N\chi^{(n)}$ может быть того же порядка или больше, чем нерезонансные восприимчивости кристаллов. Эффективность преобразования излучения в газах также может быть значительно выше. Это связано еще и с тем, что газы имеют гораздо более высокий порог оптического пробоя (это позволяет существенно поднять интенсивность излучения накачки) и в них легче достичь фазового согласования. На рис. 3 для примера показана зависимость $\chi^{(5)}$ от длины волны для атомов Li и He.

В процессах на высших нелинейностях возможности резонансного увеличения нелинейных эффектов еще значительнее при одновременном использовании нескольких многофотонных резонансов.

Для увеличения нелинейных восприимчивостей высших порядков может также оказаться целесообразным использование радиационных столкновений² с передачей поляризации в двухкомпонентной смеси⁴⁴.

2.6. Автоионизационные резонансы

На нелинейные оптические свойства атомов и простых молекул в ВУФ области спектра значительное влияние оказывают автоионизационные (АИ) состояния, которые приводят к появлению резонансов в определенных участках непрерывных спектров поглощения многоэлектронных атомов⁴⁵. АИ резонансы фотопоглощения имеют характерный асимметричный профиль,

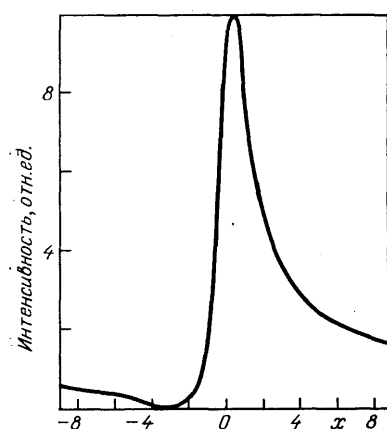


Рис. 4. Характерная форма автоионизационного резонанса в фотопоглощении как функция относительной расстройки x ⁴⁷

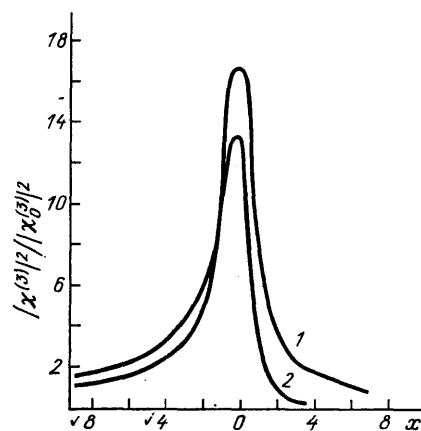


Рис. 5. Характерная форма автоионизационного резонанса в нелинейной восприимчивости⁴⁷.
1: $a = 4$, $q = -1$; 2: $a = 2$, $q = -3$

на одном крыле которого находится минимум, являющийся следствием интерференции между переходами в АИ состоянии, а затем в континуум и прямой его ионизации (рис. 4). Наличие АИ-состояний изменяет не только сечения однофотонного поглощения, но и нелинейные восприимчивости, ответственные, например, за процессы четырехволнового смешения частот^{46, 47}, а также сечения многофотонной ионизации.

С учетом АИ-состояний формула (5) видоизменяется и может быть представлена в виде⁴⁷

$$|\chi^{(3)}|^2 = |\chi_0^{(3)}|^2 [a^2 + (x + q)^2] (1 + x^2)^{-1}, \quad (14)$$

где $\chi_0^{(3)}$ — нелинейная восприимчивость в отсутствие АИ-резонанса; x — относительная расстройка от АИ уровня. Форма контура линии генерации определяется только двумя параметрами a и q , зависящими от характеристик атома. В общем случае эта зависимость представляет собой асимметричную кривую (рис. 5), имеющую максимум и минимум, и при $a = 0$ переходит в кривую Фано для контура АИ резонанса в фотопоглощении. Четырехволновое смешение частот в условиях АИ резонанса изучалось также в⁴⁸.

Исследования⁴⁹ показали, что резонансный выигрыш за счет АИ состояния обычно реализуется для оптически тонких сред, когда можно пренебречь поглощением генерируемого излучения. Однако возможны ситуации, когда контуры линий генерации и прямого фотопоглощения из основного состояния могут существенно различаться, т. е. малость фотопоглощения на ча-

стоте генерируемого поля может сочетаться с относительно высоким значением $|\chi^{(3)}|^2$.

В достаточно сильных полях контур линии АИ резонанса может значительно изменяться^{47,50}. Впервые этот эффект был предсказан в работе⁵¹ на примере сужения АИ резонанса в нелинейной восприимчивости в сильном поле, где было показано, что положение и ширина упомянутых резонансов могут зависеть от интенсивности одного из полей накачки. В частности, при определенных условиях возможно их сужение вплоть до радиационной ширины АИ уровней, которая обычно скрыта уширением за счет конфигурационного взаимодействия. Эти эффекты открывают возможность нелинейной спектроскопии внутри контура линии, уширенного автоионизацией, и должны учитываться при исследовании АИ резонансов методами генерационной спектроскопии. С другой стороны, они могут быть использованы для увеличения нелинейной восприимчивости при генерации ВУФ-излучения в условиях резонанса с АИ уровнем. Аналогичные эффекты предсказаны в фотопоглощении и многофотонной ионизации⁴⁷. В последнее время в связи с развитием техники генерации ВУФ-излучения интерес к изучению АИ резонансов в сильном лазерном поле возрастает. Подобные эффекты обсуждаются и применительно к преддиссоциации⁵² в интенсивном электромагнитном поле.

2.7. Индуцированные автоионизационно-подобные резонансы

Выше уже отмечалась целесообразность использования АИ-резонансов для увеличения нелинейных восприимчивостей. Однако зачастую в интересующих участках спектральных континуумов АИ-резонансы отсутствуют. В связи с этим была исследована возможность индуцирования в произвольных участках континуума так называемых автоионизационно-подобных резонансов дополнительным лазерным полем E_0 , взаимодействующим с переходом между возбужденным ненаселенным дискретным уровнем и состояниями континуума⁴⁷

(рис. 6). Это явление можно наблюдать как в процессах ионизации и фотопоглощения, так и в нелинейной восприимчивости $\chi^{(3)}$ (рис. 7).

В слабых индуцирующих полях возникновение указанного индуцированного резонанса можно интерпретировать за счет резонансных нелинейных процессов более высокого порядка. Последние могут идти через промежуточные состояния как дискретного, так и сплошного спектра. Интерференция указанных процессов приводит к возникновению на фоне сплошного спектра резонанса, по своим свойствам аналогичного автоионизационному. В общем случае сильных индуцирующих полей, когда нужно учитывать много порядков теории возмущений, нелинейные резонансы на фоне континуума удобнее интерпретировать как результат смещения сильным электромагнитным полем состояний в дискретном и сплошном спектрах. При этом на фоне континуума появляется дискретный квазиуровень.

Структура выражений для нелинейной восприимчивости, показателей поглощения и преломления, а также сечения ионизации имеет такой же вид, как и в случае реальных АИ состояний⁴⁷. При этом, изменяя частоту и интен-

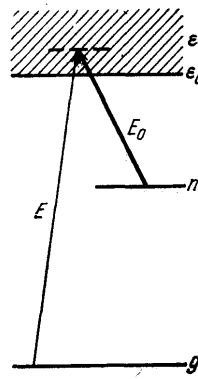


Рис. 6. Схема индуцирования автоионизационно-подобного резонанса в фотопоглощении и ионизации

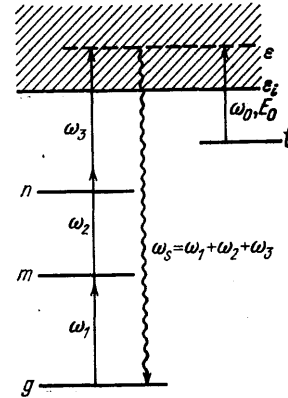


Рис. 7. Схема индуцирования автоионизационно-подобного резонанса в нелинейной восприимчивости

сивность индуцирующего поля, можно варьировать характеристики автоионизационно-подобного резонанса. При индуцировании АИ подобных резонансов в зависимости от конкретных условий увеличение восприимчивости для смещения частот может сопровождаться уменьшением поглощения генерируемого излучения, возникает оптическая активность, возможно управление угловыми и поляризационными характеристиками фотоэлектронов, (см. ^{47, 53–56} и ссылки в них).

2.8. Нелинейности четных порядков

Нелинейные восприимчивости четных порядков содержат произведение нечетного числа матричных элементов в числителе и четного числа расстройек в знаменателе. Например, для процесса $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ квазирезонансная восприимчивость имеет вид

$$\chi^{(2)}(\omega_3) = \frac{d_{gm}d_{mn}d_{ng}}{\hbar^2(\omega_1 - \omega_{mg} - i\Gamma_{mg})(\omega_1 + \omega_2 - \omega_{ng} - i\Gamma_{ng})}, \quad (15)$$

В средах с центральной симметрией, например в газе, в отсутствие внешних постоянных полей электродипольные переходы разрешены (т. е. d_{ik} отличны от нуля) лишь между уровнями разной четности. Отсюда следует, что в электродипольном приближении в невозмущенной сильными внешними воздействиями ГНС отличны от нуля лишь нелинейные восприимчивости нечетных порядков — третьего, пятого, седьмого и т. д. Таким образом, в изотропных средах квадратичная нелинейность в электродипольном приближении отсутствует, поэтому принято считать, что соответствующие процессы малоэффективны и возможны лишь при некоторых ограниченных специальных условиях. К ним относятся внешние постоянные поля, нарушающие центральную симметрию (см., например, ²⁹), либо использование высших мультипольных моментов переходов — магнитодипольного и квадрупольного ^{57, 58}.

Генерация второй гармоники 2ω , суммарной или разностной частот ($\omega_3 = \omega_1 \pm \omega_2$) в газах, основанная на применении внешнего статического электрического поля, обусловлена $\chi^{(3)}(-\omega_3; \omega_1, \pm\omega_2, 0)$. Эффективность преобразования в этих условиях обычно невелика. В ⁵⁹ показано, что пары металлов в электрическом поле могут обладать большой нелинейностью при настройке в резонанс на частоте ридберговских переходов атомов. При этом требуемая напряженность внешнего электрического поля оказывается относительно малой (1000 В/см).

Нелинейные восприимчивости четного порядка могут появиться за счет магнитодипольных и квадрупольных моментов переходов при специальном выборе направлений распространения и поляризаций взаимодействующих полей ⁵⁸ или использовании внешнего магнитного поля ⁶⁰. В общем случае мультипольные моменты переходов малы по сравнению с дипольными. Однако если какой-либо из энергетических знаменателей, соответствующих, например, одно- или двухфотонному квадрупольному (магнитодипольному) переходу, в выражении для нелинейной восприимчивости оказывается резонансно малым, то это может привести к значительному увеличению нелинейной поляризации. Таким образом, эффект сводится к компенсации малого числителя (произведение матричных элементов переходов) малым знаменателем (малая расстройка). В некоторых случаях нелинейная восприимчивость оказывается такой высокой, что становится возможным преобразование частоты излучения лазеров, работающих в непрерывном режиме ⁶¹.

В ряде экспериментов в сильных полях накачки резонансная генерация излучения на нелинейностях четных порядков наблюдалась и без внешнего электрического поля даже на переходах, где отсутствуют не только электродипольный, но и квадрупольный, и магнитодипольный моменты ^{62–64}. Напри-

мер, в ^{63, 64} в парах Ga и Mg наблюдалась не только генерация второй гармоники (с КП $\sim 10^{-1} \div 10^{-2} \%$), но и четвертой (с КП $\sim 10^{-6} \div 10^{-8} \%$), а в ⁶⁵ наблюдалась даже резонансная генерация восьмой гармоники в парах Hg. При этом КП, достигнутый на квадратичных нелинейностях, соответствует эффективности четырехволнового смешения в нерезонансных условиях. Возможные механизмы, например, макроскопические токи и разделение электронов и ионов в процессе многофотонной ионизации, генерация постоянного магнитного и электрического полей в неоднородном поле накачки и другие, приводящие к нарушению центральной симметрии, обсуждаются в ⁶⁶.

2.9. Вынужденное комбинационное рассеяние

Нелинейная оптическая поляризация на суммарных и разностных частотах определяется произведением комплексных амплитуд. Следовательно, их фаза зависит от всех действующих полей. Такие процессы называют когерентными или параметрическими. Существуют процессы, в которых нелинейная поляризация пропорциональна квадратам модулей амплитуд поля. Например, нелинейный процесс, описываемый кубичной поляризацией

$$P^{(3)}(\omega_2) = \frac{1}{4} \chi_R^{(3)}(-\omega_2; \omega_1, -\omega_1, \omega_2) N |A_1|^2 A_2, \quad (16)$$

соответствует вынужденному комбинационному рассеянию на переходе $n - g$. При этом для отдельных атомов и молекул

$$\chi_R^{(3)}(\omega_2) = \frac{|d_{gm}|^2 |d_{mn}|^2}{\hbar^3 [(\omega_1 - \omega_{mg})^2 + \Gamma_{mg}^2] (\omega_1 - \omega_2 - \omega_{ng} + i\Gamma_{ng})}, \quad (17)$$

$P^{(3)}(\omega_2)$ не зависит от фазы поля A_1 и возникает на частоте и с фазой индуцирующего излучения A_2 . Такие процессы называют некогерентными. В когерентных процессах начальное и конечное состояния атомов совпадают, изменения возникают лишь в системе фотонов. В некогерентных процессах переходы происходят как в системе фотонов, так и в системе атомов. Например, в процессе (16) атом переходит с уровня g на n , фотон $\hbar\omega_1$ исчезает, а фотонов $\hbar\omega_2$ становится на один больше (см. рис. 1, *е*).

Если в результате комбинационного рассеяния атом или молекула переходят в вышележащие энергетические состояния, то возникает стоксово рассеяние на частоте, меньшей частоты накачки. В обратном случае возникает антистоксово рассеяние на большей частоте (см. рис. 1, *ж*). Для возникновения усиления на антистоксовой частоте необходимо, чтобы на верхнем энергетическом уровне было больше частиц, чем на нижнем.

Наращение интенсивности слабой монохроматической стоксовой волны I_c в поле с интенсивностью I_1 описывается фактором (см., например, ²)

$$I_c \sim \exp(Gz), \quad G = gI_1 = -\frac{4\pi\omega_2 N}{c} \operatorname{Im}(\chi_R^{(3)} |A_1|^2). \quad (18)$$

Для ВКР на колебательно-вращательных переходах показатель усиления g удобно выражать через дифференциальное сечение спонтанного КР ^{2, 67}, которое может быть найдено из экспериментов. Мощность ВКР на выходе из среды определяется распределением по среде спонтанных усиливаемых затравок, процессами насыщения и др. ² (см. также ссылки в ней). Пороговую интенсивность накачки, при которой спонтанное рассеяние переходит в ВКР, обычно оценивают из условия $GL \geq 30$ (L — длина среды), когда интенсивность рассеянного излучения становится по порядку величины сравнимой с накачкой. В принципе, все фотоны накачки могут быть преобразованы в стоксовы, однако конкурирующие процессы ограничивают реальные КП.

В нелинейной оптике газов широкое применение находят процессы ВКР на электронных переходах (ВЭКР) атомов металлов. Обсуждение оптималь-

ных условий для ВЭКР можно найти, например, в ². Порог и спектр ВКР обычно зависят от спектра накачки (см., например, ⁶⁸). С увеличением спектральной ширины накачки порог обычно растет, однако в нерезонансных условиях ($\omega_1 - \omega_{mg} \gg \Gamma_{mg}$) возможны ситуации, когда усиление не зависит от спектра накачки и описывается формулой (18). Проблема резонансного ВЭКР при немонохроматической накачке изучена слабо.

Фокусировка накачки приводит к увеличению потерь генерируемого излучения за счет дифракции при $\omega_2/\omega_1 \ll 1$ (для щелочных металлов $\omega_2/\omega_1 \sim 10^{-1} \div 10^{-3}$) ⁶⁹, увеличивая порог и уменьшая области частот генерируемого излучения. Дополнительное возбуждение $n - g$ -перехода бигармонической или двухфотонной накачкой снижает порог рассеяния ²⁹, однако в этом случае рассеяние не является чисто комбинационным.

ВКР в газах может происходить и на переходах, сопровождающихся исчезновением нескольких фотонов накачки (см., например, ⁶⁷). Такое рассеяние описывается нелинейными восприимчивостями более высокого порядка и называется гиперкомбинационным (ГКР). Появление излучения на частоте $\omega_2 > \omega_{ng}$ может приводить к ВКР более высокого порядка ($\omega_3 = \omega_2 - \omega_{ng} = \omega_1 - 2\omega_{ng}$; $\omega_4 = \omega_3 - \omega_{ng} = \omega_1 - 3\omega_{ng}$ и т. д.) и к генерации аналогичных антистоксовых компонент ⁷⁰. Рассеянное излучение может вступать в параметрическое взаимодействие, приводя к антистоксову когерентному рассеянию на частотах $\omega_3 = 2\omega_1 \mp \omega_2$ и $\omega_3 = \omega_1 - 2\omega_2$ ^{29, 71}. Указанные вынужденные четырехфотонные параметрические процессы являются пороговыми. При приближении к резонансам на некоторых переходах возможно возникновение инверсии заселенностей и суперлюминесцентное излучение, которое может играть роль запускающего поля ^{2, 71}.

Следует отметить, что при отсутствии инверсии населенностей в определенных условиях интенсивность спонтанного антистоксова КР (АСКР) может существенно превышать яркость тепловых источников ⁷². При перестройке частоты накачки частота такого рассеяния также перестраивается. Опубликована серия работ, в которых обсуждаются и исследуются различные варианты заселения метастабильных уровней атомов, молекул и ионов, включая метастабильные автоионизационные уровни, с целью получения спонтанного, а в ряде случаев и вынужденного АСКР в ВУФ и МР диапазонах ^{72, 73}.

Некогерентные нелинейные процессы в газах типа многофотонного поглощения начинают использоваться также для создания инверсии и обычного усиления на разрешенных переходах в ВУФ-диапазоне ⁷⁴.

В разделе 2 была дана упрощенная картина нелинейных процессов в резонансных газообразных средах. В реальных условиях не во все резонансы можно входить точно из-за сильного поглощения излучений. В газах резонансы уширяются за счет их доплеровских разбросов при движении атомов, да и само излучение, как правило, имеет некоторую спектральную ширину. Это снижает резонансный выигрыш. Как уже отмечалось, в сильном лазерном поле в резонансных условиях возрастает роль других сопутствующих нелинейных процессов. В том числе нарушается пространственная однородность оптических характеристик среды, что влечет за собой дополнительные ограничения. Указанные вопросы обсуждаются, например, в ^{2, 29, 33, 75-80, 219} (и ссылки в них) и должны приниматься во внимание при оптимизации условий преобразования в каждом конкретном случае.

3. ТЕХНИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Как уже отмечалось, необходимым условием эффективного преобразования излучения в когерентных процессах является достижение определенного значения фазовой расстройки ΔkL или Δkb , зависящего от конкретного типа нелинейного процесса. При фиксированном значении концентрации N величиной и знаком коэффициентов преломления на различных частотах,

а, следовательно, величиной и знаком Δk , можно управлять, перестраивая частоты накачек или генерируемого излучения вблизи частот однофотонных переходов из заселенных состояний⁸¹. В частности, для плосковолновой накачки оптимальное значение $\Delta k = 0$ выполняется при соответствующем подборе частот накачки так, чтобы $\omega_4 \operatorname{Re} \chi^{(1)}(\omega_4) = \sum_q \omega_q \operatorname{Re} \chi^{(1)}(\omega_q)$. При этом Δk перестает зависеть от концентрации и пространственных неоднородностей в распределении нелинейных атомов. Однако указанная методика требует перестраиваемых по частоте лазеров накачек и применима лишь для генерации вполне определенных частот излучения.

Другой метод фазовой синхронизации состоит в добавлении к основной нелинейной компоненте дополнительной газообразной компоненты⁸², которая вносит вклад нужного знака главным образом в коэффициент преломления либо на частотах накачки, либо на частоте генерируемого излучения. Меняя соотношение концентраций нелинейной и синхронизирующей компоненты, можно получать нужное значение фазовой расстройки. Так, например, условие $\Delta k = 0$ достигается при следующем соотношении концентраций компонент⁷⁶

$$\frac{N_c}{N} = \frac{\omega_4 \operatorname{Re} \chi^{(1)}(\omega_4) - \sum_q \omega_q \operatorname{Re} \chi^{(1)}(\omega_q)}{\sum_q \omega_q \operatorname{Re} \chi_c^{(1)}(\omega_q) - \omega_4 \operatorname{Re} \chi_c^{(1)}(\omega_4)}, \quad (19)$$

где N_c и $\chi_c^{(1)}$ — соответственно концентрация и атомные линейные восприимчивости синхронизирующего газа на соответствующих частотах. Поэтому характерным элементом экспериментальной техники нелинейной оптики газообразных сред являются устройства для получения смесей газообразных сред.

Для частот накачек, лежащих в ближнем и видимом диапазонах, подходящими двухфотонными резонансами обладают атомы металлов. Ввиду их химической активности и высокой температуры плавления нагреваемые кюветы из стекла и кварца оказываются неэффективными. Поэтому для получения паров металлов нужной концентрации, а также смесей этих паров с синхронизирующими буферными газами, широко используются одноконтурные и двухконтурные кюветы, работающие в режиме тепловой трубы⁸³.

Особенности конструкции одноконтурных кювет изображены на рис. 8. Внутри трубки из нержавеющей стали помещается фитиль в виде прилегающей к стенкам мелкоячеистой сетки. На сетку помещается подлежащий испарению металл. Центральная зона трубы нагревается снаружи нагревателем, а концы, закрытые прозрачными окнами, охлаждаются проточной водой. Труба заполняется буферным газом с давлением, близким к желаемому давлению паров. Когда давление насыщенных паров металла приближается к давлению газа, в нагреваемой зоне в основном находятся относительно однородные пары металла, а вне этой зоны — холодный газ. Пары металла, поступая в холодную зону, конденсируются и вследствие капиллярного эффекта по фитилю вновь поступают в нагреваемую зону. В таком режиме обеспечивается весьма быстрый теплообмен и большой градиент температуры на границе нагреваемой зоны.

Для осуществления фазового синхронизма необходима однородность температуры в нагреваемой зоне и возможность плавного изменения соотношения концентраций паров и синхронизирующей компоненты в нагреваемой зоне. С этой целью используют двухконтурные кюветы (рис. 9).

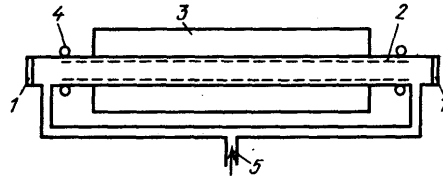


Рис. 8. Схема нагреваемой одноконтурной кюветы⁸³.

1 — окна, 2 — сетка (фитиль); 3 — нагреватель; 4 — холодильник; 5 — напуск газа

Двухконтурная кювета состоит из двух концентрических трубок. Меняя давление газа во внешней трубке, можно менять и стабилизировать давление насыщенных паров, а, следовательно, температуру зоны нагрева внутренней трубы. Причем зона нагрева имеет резкий профиль на концах и однородна внутри. Этой температурой определяется давление паров металла во внутренней трубке. Внутренняя трубка служит для получения необходимой смеси. Давление синхронизирующего газа в ней можно менять независимо в относительно широких пределах. С помощью кюветы такой конструкции в¹ получен КП вплоть до 10% при ГТГ $\lambda = 354,7$ нм в смеси Rb и Xe. Характеристики двухконтурных кювет-атомизаторов исследовались также в⁸⁴.

Иногда в качестве синхронизирующей компоненты необходимо использовать пары другого металла. С этой целью можно использовать кювету,

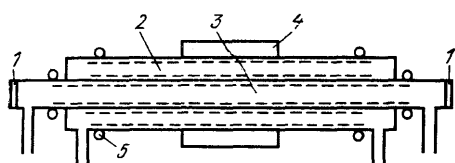


Рис. 9. Нагреваемая двухконтурная кювета для получения смеси паров металлов и инертных газов⁸⁵.

1 — окна; 2 — зона паров металла; 3 — зона смеси паров металла и синхронизирующего газа; 4 — нагреватель; 5 — холодильник

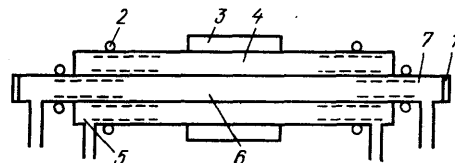


Рис. 10. Нагреваемая двухконтурная кювета для получения смеси двух различных паров металлов⁸⁵.

1 — окно; 2 — холодильник; 3 — нагреватель; 4 — зона паров металла; 5 — зона с буферным газом; 6 — рабочая зона — смесь паров металла; 7 — зона с буферным газом

описанную в⁸⁵ и использованную в⁸⁶ (рис. 10). Ее особенность состоит в том, что в центре нагреваемой зоны фитиль отсутствует. Аналогично описанному выше, температура нагрева внутреннего контура (в центральную бесфитильную зону которого помещается наиболее тугоплавкий синхронизирующий металл) определяется давлением газа во внешнем контуре. Таким образом, меняя давление во внешнем контуре, можно менять давление паров синхронизирующей компоненты (в⁸⁶ Mg). Давление паров нелинейной компоненты (в⁸⁶ Na) определяется как разность давлений буферного газа во внутреннем контуре (которое можно независимо менять) и синхронизирующей компоненты. Недостаток этой конструкции состоит в том, что с течением времени синхронизирующая компонента имеет тенденцию конденсироваться и отвердевать на фитиле вследствие ее более высокого давления и температуры плавления.

Достоинством тепловых труб является то, что окна остаются холодными, не загрязняются металлом и могут быть сменными за счет обычных вакуумных контактов. Модификация тепловой трубы с улучшенным распределением плотности атомов вдоль оси кюветы разработана в⁸⁷ (рис. 11). Для менее тугоплавких и химически агрессивных металлов (например, ртути) может быть использована кювета, разработанная в⁸⁸ (рис. 12). Она позволяет получить высокую однородность паров и имеет малое поглощение излучения вне зоны нелинейного преобразования (зоны фокуса).

Потери генерируемого излучения обычно наиболее значительны для ВУФ диапазона и связаны с его поглощением вне зоны нелинейного преобразования. При двухфотонном резонансе монохроматической накачки мощность генерируемого излучения обратно пропорциональна квадрату ширины этого резонанса. В монокинетическом бесстолкновительном потоке газа эта ширина может быть на 2—3 порядка уже, чем при доплеровском уширении. В связи с этим развивается техника импульсной сверхзвуковой газовой струи, рас-

пространяющейся ортогонально лазерному пучку^{14,89}. При этом сечение струи соизмеримо с длиной фокуса, а импульсы струи синхронизованы по времени с лазерными импульсами. В период между двумя соседними импульсами струи насоса успевают откачивать газ из вакуумной зоны. Благодаря импульсному поступлению газа, снижается его расход, что важно при использовании дорогостоящих газов. Метод сверхзвуковой импульсной струи позволяет получать в пучке плотность атомов порядка 10^{17} см^{-3} и в то же время поддерживать в камере вакуумного монохроматора давление порядка 10^{-5} торр¹⁴. Для получения струи используются сопла с размерами около миллиметра и меньше. Струя имеет сечение такого же порядка. При использовании молекулярных газов вследствие их охлаждения при расширении

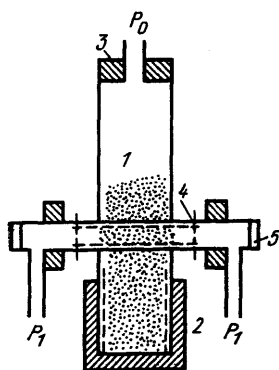


Рис. 11. Нагреваемая кювета с улучшенным распределением паров металла вдоль кюветы.
1 — пары металлов; 2 — нагреватель; 3 — охлаждение; 4 — диафрагма; 5 — окно

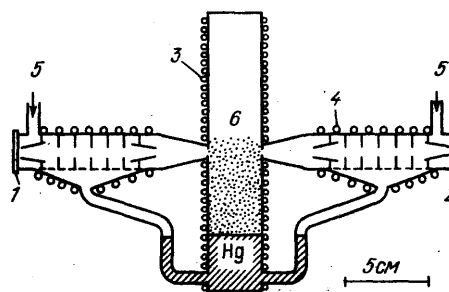


Рис. 12. Нагреваемая кювета для получения паров ртути.
1 — кварцевое окно; 2 — LiF-окно; 3 — нагреватель; 4 — холодильник; 5 — напуск газа; 6 — зона паров Hg

заселенности отдельных вращательных уровней в струе становятся соизмеримыми с плотностью молекул. Это расширяет возможности использования молекулярных газов в нелинейной оптике.

Энергии фотонов ВУФ и МР излучений достаточно для диссоциации большинства молекул и ионизации атомов. Поэтому такое излучение хорошо поглощается различными средами. При генерации излучения этого диапазона возникает проблема выбора нелинейной среды с малым поглощением и соответствующих окон для кюветы. В диапазоне 100—200 нм наиболее подходящим материалом для окон является LiF, который имеет коротковолновую границу полосы пропускания около 105 нм, а в качестве нелинейных материалов наибольшее распространение получили пары металлов щелочноземельной группы (Sr, Mg, Ba, Hg, Zn, Ga, Be), инертные газы (Ar, Kr, Xe, He, Ne) и некоторые молекулярные газы с высоколежащими электронными переходами⁹⁰, например, NO, N₂, CO, H₂ и др. Привлекают интерес и ионы ряда элементов, имеющие высоколежащие дискретные состояния^{91,92}.

В области $\lambda < 100$ нм из-за отсутствия прозрачных материалов для окон используют кюветы без выходного окна и различные системы дифференциальной откачки газа от выхода из кюветы¹⁸, а также уже упомянутая техника импульсной сверхзвуковой струи.

Привлекают внимание перспективы использования паров сложных органических молекул⁹³, а также полых газонаполненных волноводов⁹⁴.

Из источников накачки наибольшее распространение получили лазеры на красителях и гармоники их излучения в совокупности с гармониками излучений возбуждающих лазеров (рис. 13).

Привлекательны перспективы применения перестраиваемых лазеров на александриите. Для генерации излучения в области $\lambda < 100$ нм целесообразно использовать более коротковолновые лазеры. В этом отношении перспективны эксимерные лазеры, которые генерируют с высоким к. п. д.

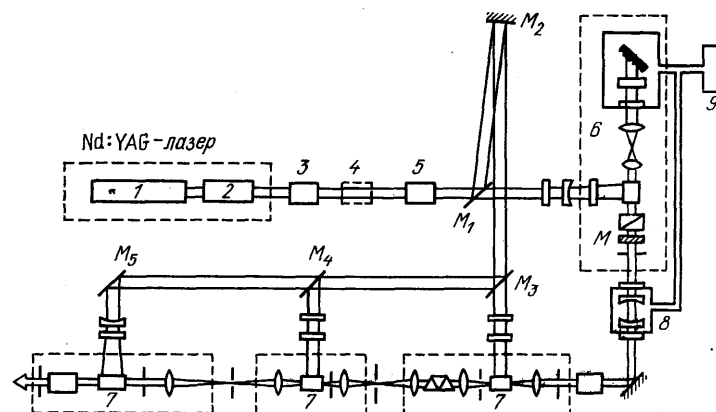


Рис. 13. Лазерная система на основе АИГ-лазера и лазеров на красителях для генерации мощного перестраиваемого УФ излучения¹².

1 — АИГ-лазер; 2 — усилитель; 3 — удвоитель частоты; 4 — утроитель частоты; 5 — призмный резонатор; 6 — лазер на красителе; 7 — усилитель на красителе; 8 — конфокальный резонатор; 9 — вакуумный пост

мощное излучение в УФ и ВУФ диапазоне. Непосредственному использованию излучения этих лазеров в качестве одной из волн накачки препятствуют пространственная неоднородность и большая расходимость. Существует

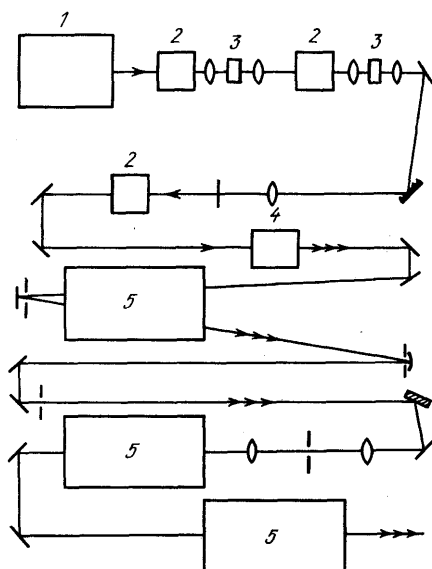


Рис. 14. Лазерная система на основе ГТГ в парах стронция и эксимерного усилителя на ArF^* для генерации мощного узкополосного ВУФ излучения ($\lambda = 193$ нм) с высоким качеством пучка²¹⁶.

1 — лазер на красителе ($\tau_{\text{имп}} = 10$ пс); 2 — усилитель (на красителе); 3 — насыщающий поглотитель; 4 — кювета с парами стронция; 5 — усилитель на ArF^*

несколько различных способов улучшения и контроля качества излучения эксимерных лазеров (см., например,⁹⁵). Одним из наиболее перспективных является метод инжекции излучения с заданными параметрами в активную

среду эксимерного лазера и его последующее усиление. Эксимерные активные среды имеют высокий показатель усиления в достаточно широкой спектральной полосе, что позволяет усиливать не только наносекундные, но пико- и субпикосекундные импульсы до гигаваттных мощностей. В этом направлении уже достигнуты значительные успехи^{13, 24, 113, 214, 215}. На рис. 14 приведена схема лазерной установки для генерации мощного ($P = 4$ ГВт) пикосекундного излучения ($\tau_{\text{имп}} = 10$ пс) на длине волны 193 нм²¹⁶. В качестве задающего генератора использовался лазер на красителе с активной синхронизацией мод, настроенный на длину волны 580 нм. Излучение с $\lambda = 193$ нм получали путем утроения частоты в парах стронция. Более короткие импульсы ($\tau_{\text{имп}} \approx 350$ фс) на длине волны 308 нм получены авторами²¹⁵.

4. ГЕНЕРАЦИЯ И ПРИМЕНЕНИЕ УЗКОПОЛОСНОГО ПЕРЕСТРАИВАЕМОГО ВУФ ИЗЛУЧЕНИЯ

4.1. Характеристики нелинейно-оптических преобразователей

Существуют два экспериментальных подхода к преобразованию излучения в ГНС: 1) преобразование в резонансных и квазирезонансных условиях, когда используются невысокие плотности полей накачки и малые концентрации атомов (для уменьшения лимитирующих факторов); 2) преобразование в нерезонансных условиях, где требуются большие плотности мощности, и большие концентрации атомов. Выбор каждого из подходов определяется в конечном итоге постановкой задачи и конкретными условиями эксперимента.

Результаты экспериментальных исследований и разработки методов генерации когерентного перестраиваемого по частоте ВУФ излучения в ГНС можно суммировать следующим образом (см., например,^{11, 96} и ссылки в них).

При нерезонансном преобразовании в поле импульсов с длительностью порядка 10 нс и мощностью несколько мегаватт КП на кубических нелинейностях обычно составляет величину порядка 10^{-4} — 10^{-5} , а генерируемые мощности — десятки или сотни ватт. В поле импульсов с длительностью порядка 10 пс и мощностью около 1 ГВт КП составляют 10^{-3} — 10^{-5} , а генерируемые мощности — десятки или сотни киловатт.

В условиях двухфотонного резонанса в поле наносекундных мегаваттных импульсов КП на кубических нелинейностях возрастает до долей процента, а генерируемые мощности до 1—10 кВт. В непрерывном режиме удастся получить потоки ВУФ излучения порядка 10^0 фотонов/с при ширине линии менее 1 МГц. При квазирезонансном преобразовании на $\chi^{(5)}$ в поле пикосекундных гигаваттных импульсов КП может составлять величину порядка $10^{-5} \div 10^{-6}$ (см., например,⁹⁷), а на нелинейностях $\chi^{(7)}$ — порядка $10^{-7} \div 10^{-8}$. В ряде случаев, как, например, в Hg, КП оказываются на 1—2 порядка выше¹⁶. В резонансных условиях КП даже на $\chi^{(9)}$ может возрастать до величины порядка 10^{-5} ¹⁶. Генерируемые на высших нелинейностях мощности ВУФ излучения лежат в интервале сотен ватт—единиц киловатт.

При антистоксовом рассеянии в молекуле H_2 излучения ArF*-лазера получена генерация на линиях вплоть до шестого порядка $\lambda = 179$ нм, 168 нм, 156 нм, 146 нм, 138 нм и 130 нм мощностью 270—0,8 кВт¹⁵ и длительностью несколько наносекунд. В последние годы реализовано несколько схем лазеров на антистоксовом комбинационном рассеянии на возбужденных атомах и молекулах, находящихся в метастабильных состояниях, с $\lambda < 200$ нм (см., например, обзор⁹⁵).

Таблица II

Генерация ВУФ и МР излучений при нерезонансном смешении частот в газах

Длина волны, нм (ширина спектра генера- ции)	Мощность генерации или КП	Нелиней- ная/син- хронизи- рующая компо- ненты	Нелинейный процесс	Лазеры накачки	Лите- рату- ра
206—160 ($\leq 3 \cdot 10^{-4}$ Å)	2—60 Вт	Хе	$2\omega_{\text{УФ}} - \omega_k$	АИГ/красители (10 нс, ω_k : 4—5 МВт; $\omega_{\text{УФ}} = 2\omega_k$: 1—1,7 МВт)	148
195—163, 147—118	1 Вт (10^7 фот/имп)	Хе	$2\omega_{\text{УФ}} \pm \omega_s; \omega_i$	АИГ ($\omega_{\text{УФ}} = 4\omega$; 30 пс, 20 МВт) + ПГС (ω_s, ω_i : 1 МВт)	149
147—140	30 Вт ($8,7 \cdot 10^{10}$ фот/имп)	Хе/Кг	$3\omega_k$	АИГ/краситель (10 нс, до 2,6 МВт)	150
130—110 ($3 \cdot 10^{-4}$ Å)	1—20 Вт	Кг, Хе	$2\omega_{\text{УФ}} + \omega_k$	АИГ/красители (10 нс, ω_k : 3—5 МВт, $\omega_{\text{УФ}} = 2\omega_k$: 1—1,7 МВт)	148
123,6—120,3 ($4 \cdot 10^{-3}$ Å)	До 5 Вт	Кг	$3\omega_k$	N ₂ /краситель (5 нс, 1 МВт)	151
123,5—120,3	До 16 Вт	Хе/Кг	$3\omega_{\text{УФ}}$	АИГ/краситель (10 нс, ω_k : до 5 МВт; $\omega_{\text{УФ}} = 2\omega_k$: 1,5 МВт)	150
121,6 ($7 \cdot 10^{-7}$ Å)	2,2 Вт ($5,4 \cdot 10^9$ фот/имп)	Кг	$3\omega_{\text{УФ}}$	АИГ/краситель (5 нс, $\omega_{\text{УФ}} =$ $= 2\omega_k$: 1,8 МВт)	152
121,6	$\eta = 1,4 \cdot 10^{-4}$	Кг/Аг	$3\omega_{\text{УФ}}$	Рубин/краситель (10 нс, $\omega_{\text{УФ}} = 2\omega_k$: 39 мДж)	153
121,6 (0,47 Å)	60 Вт ($3,6 \cdot 10^{11}$ фот/имп)	Кг	$3\omega_{\text{УФ}}$	АИГ/краситель (15 нс, $\omega_{\text{УФ}} = 2\omega_k$: 10 МВт)	154
121,6	$\eta \sim 5 \cdot 10^{-5}$	Кг, Аг, Хе	$3\omega_{\text{УФ}}$	То же	155
121,6	35 Вт	Кг, Аг	$3\omega_{\text{УФ}}$	Рубин/краситель (20 нс, 2—5 МВт)	156
121,6	100 Вт	Кг	$3\omega_{\text{УФ}}$	ХеСl*/краси- тель (10 нс, 2 МВт)	23a
118,2	$\eta \sim 3 \cdot 10^{-3}$	Хе/Аг	$3\omega_{\text{УФ}}$	АИГ ($\omega_{\text{УФ}} = 3\omega$: 35 пс, 400 МВт)	157
118,2	260 Вт ($4,7 \cdot 10^{11}$ фот/имп)	Кг, Хе (струя)	$3\omega_{\text{УФ}}$	АИГ ($\omega_{\text{УФ}} = 3\omega$: 3 нс, 18 МВт)	89
112,4 (0,3 Å)	0,8 Вт	Кг (4—5 атм)	3ω	N ₂ (3 нс, 1 МВт)	158
106,8—106,1 ($\sim 0,3$ Å)	0,8 Вт	Хе	$3\omega_k$	КгF*/краситель (2 нс, 2,4 мДж)	159
102,85—102,57	(1—10) мВт	Аг	3ω	ХеСl* (30 нс, 0,5 МВт)	160
102,7	$\eta \sim 10^{-9}$	Аг	3ω	ХеСl* (10 нс, 12 мДж)	161
104,8—93,4 87—86,8 86,7—85,7	(1—8) Вт	Аг	$3\omega_{\text{УФ}}$	АИГ/краситель ($\omega_{\text{УФ}} =$ $= 2\omega_k$: 10 нс, 1—2 МВт)	162
102,3—97,3 (1,9 см ⁻¹)	$7 \cdot 10^9$ фот/имп	Аг (струя)	$3\omega_k$	АИГ/краситель 4 нс, 3— 14 мДж)	163

Таблица II (продолжение)

Длина волны, нм (ширина спектра генерации)	Мощность генерации или КП	Нелинейная/синхронизирующая компоненты	Нелинейный процесс	Лазеры накачки	Литература
88,7	200 мВт 0,1—0,4 Вт	Ar	$3\omega_{\text{УФ}}$	АИГ ($\omega_{\text{УФ}} = 4\omega$, 30 пс)	164
82,8		He, Xe (струи)	3ω	KrF* (15 пс, 20 мДж)	14
79 ($\sim 1 \text{ см}^{-1}$)		H ₂	$2\omega + \omega_k$	ArF* (10 пс, 10 мДж) + краситель (ω_k : 10 пс, 5 мДж)	105
73,58—72,05		Ne	$3\omega_{\text{УФ}}$	АИГ/краситель ($\omega_{\text{УФ}} = 2\omega_k + \omega_k$: 0,3 МВт)	165, 12
64		H ₂	3ω	ArF* (10 пс, 10 мДж)	24
64	до 30 Вт	H ₂ , Ne, Ar, D ₂ , CO	3ω	ArF* (7 пс, 300 мДж)	166
64	2—20 × 10 ⁴ Вт	He, Ne, H ₂ , Ar, N ₂ , CO	3ω	ArF* (10 пс, 4 ГВт)	113

Таблица III

Генерация ВУФ и МР излучений при резонансном смещении частот в газах и парах металлов (ДФР, ТФР, АИР)

Длина волны, нм (ширина спектра генерации)	Мощность генерации или КП	Нелинейная/синхронизирующая компоненты	Нелинейный процесс	Лазеры накачки	Литература
220—155	0,5—1 кВт	Xe	$2\omega_{\text{УФ}} - \omega_k$	АИГ/красители (10 пс, $\omega_{\text{УФ}} = 2\omega_k$: 0,3 МВт; ω_k : 1,3 МВт)	167
220—152	0,2—0,5 кВт	Xe	$2\omega_1 - \omega_2$	АИГ/красители (10 пс, ω_1 : 80 кВт; ω_2 : 100 кВт)	168
200	100 кВт	Ca	$3\omega_k$	Краситель (3 пс, 250 МВт)	169
200	$\eta \sim 10^{-6}$	Na	$3\omega_k$	Краситель (2—4 пс, 2—3 ГВт)	170
200—190	$\eta \sim 10^{-5}$	Sr/Xe	$2\omega_1 + \omega_2$	Nd: стекло/красители (50 пс, 500 кВт)	171
196—109	0,5—3 кВт	Hg	$2\omega_1 + \omega_2$	АИГ/красители (10 пс, 1—2 МВт)	12 88
196—178	$4 \cdot 10^9$ фот/имп	Sr	$2\omega_1 + \omega_2$	N ₂ /красители (3 пс, ω_1 : 15 кВт; ω_2 : 100 кВт)	172
192	10^{10} фот/с	Sr	$3\omega_k$	Ar ⁺ + непрерывный краситель (0,7—0,8 Вт)	12
181	$\eta \sim 2 \cdot 10^{-5}$ До 0,2 кВт	Sr	$2\omega_k + \omega_{\text{Ar}^+}$	Краситель (500 пс, 40 кВт)	173
191		Sr	$3\omega_k$	АИГ/краситель (4 пс, 20 мДж) или (7 пс, 100 мДж)	174
185—125 (дискретно)		Hg	$2\omega_{\text{УФ}} = \omega_{\text{ВУФ}} + \omega_{\text{ИК}}$ (распад)		

Таблица III (продолжение)

Длина волн, нм (ширина спектра генерации)	Мощность генерации или КП	Нелинейная/синхронизирующая компоненты	Нелинейный процесс	Лазеры накачки	Литература
173	0,2 кВт	Mg/Xe	$\omega_{\text{УФ}} + \omega + \omega$	Рубин (ω) ($\omega_{\text{УФ}} = 2\omega$, ω : 50 МВт, 10 пс)	175
170 (6 ГГц)	10^7 фот/с	Sr	$\omega_1 + \omega_2 + \omega_3$	Ag ⁺ + непрерывный краситель (ω_1 : 0,85 Вт; ω_2 : 0,42 Вт; ω_3 : 0,66 Вт)	176
176,5	$4 \cdot 10^8$ фот/имп	Ca	$2\omega_1 + \omega_2$	N ₂ /красители (3 нс, ~ 30 кВт)	177
172—167	$1,5 \cdot 10^{-4}$ Вт ($\lambda = 169,7$ нм) 3,2 Вт ($\lambda = 171,2$ нм)	Sr	$2\omega_1 + \omega_2$ $\omega_1 + \omega_2 + \omega_3$	АИГ/красители (5 нс, ω_1 : 320 Вт; ω_2 : 114 Вт); АИГ/красители ω_1 : 39 кВт; ω_2 : 800 Вт; ω_3 : 3,6 кВт)	178
167	10^{12} фот/имп	Ba ⁺ (инвертированный)	$2\omega_{\text{УФ}} + \omega_1$	АИГ/краситель (10 мДж, 5 нс, $\omega_{\text{УФ}}$: 1 мкДж)	91
160—140 (0,1 см ⁻¹)	60 Вт	Mg	$2\omega_1 + \omega_2$	N ₂ /красители (3 нс, 30 кВт)	179
155	100 Вт	Xe	$2\omega - \omega_k$	KrF* (10 нс, 25 кВт) + + XeCl*/краситель (10 нс, 30 кВт)	180
159	10 мВт	Cd	$2\omega_{\text{УФ}} + \omega_{\text{ИК}}$	XeCl*/краситель ($\omega_{\text{УФ}}$: ~ 6 нс, 4 мДж; $\omega_{\text{ИК}}$: 100 Вт)	181
152—130	10^7 фот/имп	NO	$3\omega_k$	N ₂ /краситель (3 нс, 20 кВт)	182
153,6	1 кВт	Hg	$2\omega_{\text{УФ}} - \omega$	Nd / стекло ($\omega_{\text{УФ}} = 4\omega$: 0,4 нс; 0,1—1 МВт; ω : 10—100 МВт)	65
143,6	$\eta \sim 10^{-4}$	Mg/Kr	$3\omega_k$	N ₂ /краситель (3 нс, 30 кВт)	183
143 (0,44 см ⁻¹)	$1,2 \cdot 10^5$ фот/с	Mg/Kr	$3\omega_k$	Ag ⁺ /непрерывный краситель (0,2 Вт)	12 184
140—146 (0,3 см ⁻¹)	10 Вт	Xe	$\omega_1 + 2\omega_2$	АИГ/красители (ω_1 : 8 нс, 3—5 мДж; ω_2 : 30 мДж)	185
140—106	до 10^7 фот/имп	Zn	$2\omega_1 + \omega_2$	KrF*/красители (12 нс, 10 кВт)	186
129—121	10^8 фот/имп ($\lambda = 121,6$ нм)	Mg	$2\omega_1 + \omega_2$	KrF*/красители (10 нс, 10 кВт)	187
135,3—128,7	$8 \cdot 10^6$ фот/имп	Cd/Ar	$2\omega_{\text{УФ}} + \omega_k$	АИГ/краситель ($\omega_{\text{УФ}} = 2\omega_k$, $\omega_{\text{УФ}}$: 10 кВт, 5 нс; ω_k : 10 кВт, 4 нс)	188
127 (0,6 см ⁻¹) 115 (0,3 см ⁻¹)	$\eta = 10^{-3} - 10^{-4}$	Mg Mg/Xe	$2\omega_k + \omega$	Краситель (7 нс, 1 мДж) + + XeCl* (15 нс, 6 мДж); краситель + KrF* (15 нс, 80 мДж)	189
125—122 (0,04 см ⁻¹)	10 кВт	Hg	$2\omega_1 + \omega_2$	АИГ/красители (10 нс, ω_1 : 30 мДж, ω_2 : 1—5 мДж)	190
125,9—74,8 (дискретно)	(71,5—3) Вт	Xe	$3\omega_1$ $2\omega_1 \pm \omega_2$	АИГ/красители	191
123,6	$\eta \sim 10^{-6}$	Mg ⁺	$2\omega_{\text{УФ}} + \omega$	АИГ/красители ($\omega_{\text{УФ}} = 2\omega_k$: 10 нс, 0,05 мДж) + АИГ (15 нс, 2,5 мДж)	92

Таблица III (продолжение)

Длина волны, нм (ширина спектра генерации)	Мощность генерации или КП	Нелинейная/синхронизирующая компоненты	Нелинейный процесс	Лазеры накачки	Литература
123—124	$\eta = 3 \cdot 10^{-7}$	Be	$2\omega_{\text{УФ}} + \omega_k$	АИГ/красители (5 нс, $\omega_{\text{УФ}} = 2\omega_k$: 0,5 мДж; ω_k : 0,1 мДж)	192
122—117	$2 \cdot 10^9 - 2 \cdot 10^{11}$ фот/имп	Hg	$2\omega_1 + \omega_2$	АИГ/красители (10 нс, ω_1 : 0,8 мДж, ω_2 : 0,2 мДж)	193
120,3 (16 Å)	300 Вт	Hg	$2\omega_k + \omega_{\text{УФ}}$	Краситель (6 ГВт/см ²) + 4ω АИГ (650 МВт/см ²)	194
117	~ 1 мДж	He	3ω	ХеF* (20 нс, $7 \cdot 10^{12}$ Вт/см ²)	195
115	До 20 Вт	CO/He	$2\omega_{\text{УФ}} + \omega_k$	АИГ/красители ($\omega_{\text{УФ}} = 2\omega_k$: 8 нс, 5 мДж; ω_k : 30 мДж)	196
97,2	$\eta \sim 10^{-9}$	H ₂	$3\omega_{\text{УФ}}$	N ₂ /краситель ($\omega_{\text{УФ}} = 2\omega_k$: 5 нс, 50 кВт)	197
96,7—93,5	$5 \cdot 10^9$ фот/имп	N ₂ , CO	$3\omega_{\text{УФ}}$	АИГ/краситель ($\omega_{\text{УФ}} = 2\omega_k$, ω_k : 2—3 мДж, 10 нс)	90
93	До 0,05 мкДж	Hg	$3\omega_k$	Красители (5 нс, до 20 мДж)	198
83			$2\omega_1 + \omega_2$		
89,6	$\eta \sim 10^{-8} \div 10^{-9}$	Hg	$3\omega_{\text{УФ}}$	Nd:стекло ($\omega_{\text{УФ}} = 4\omega$: 50 нс, 1 МВт)	199
82,8—83,3 (0,01 см ⁻¹)	До 40 мВт	He	3ω	KrF* (10 нс, 60 мДж)	200
57 (0,8 Å)		Ar	3ω	He ₂ (10 нс, 1 МВт)	201

Таблица IV

Генерация УФ, ВУФ и МР излучений за счет смешения частот на высших нелинейностях

Длина волны, нм	Мощность генерации или КП	Нелинейная/синхронизирующая компоненты	Нелинейный процесс	Лазеры накачки	Литература
215,4	2 кВт	Cs	$\chi^{(5)}$, 5ω	Nd-стекло (50 пс, 0,1 ГВт)	97
212	4 кВт	Na/He	$\chi^{(5)}$, 5ω	Nd-стекло (10 пс, 63 мДж)	202
153,7—151	0,1 кВт (10 ¹³ фот/имп)	Hg	$\chi^{(9)}$, 8ω—ω, 8ФР	Nd-стекло (0,4 нс, 10—100 МВт)	16
151	$\eta \sim 10^{-11}$	Na	$\chi^{(7)}$, 7ω	Nd-стекло (10 пс, 63 мДж)	203
139,3—137,5	10 Вт	He	$\chi^{(5)}$, $\omega_1 + 3\omega_2 - \omega_2$	АИГ/красители (8 нс, 3—30 мДж)	185
117,7	$\eta \sim 10^{-16}$	Na/Ar	$\chi^{(9)}$, 9ω	Nd-стекло (10 пс, 63 мДж)	203, 204
76; 71; 62,6; 59,1		He, Ne	$\chi^{(5)}$, $4\omega_{\text{УФ}} \pm \omega_2$	АИГ ($\omega_{\text{УФ}} = 4\omega$; $\omega_2 = \omega$, 2ω)	205
61,6	$\eta \sim 10^{-10}$	Ar, Kr	$\chi^{(5)}$, 5ω	ХеСl* (3—10 нс, до 40 МВт)	206
53,2	$\eta \sim 10^{-5} - 10^{-6}$	Ne, He	$\chi^{(5)}$, 5ω _{УФ}	АИГ ($\omega_{\text{УФ}} = 4\omega$: 30 пс, 330 МВт)	205

Таблица IV (продолжение).

Длина волны, нм	Мощность генерации или КП	Нелинейная/синхронизирующая компоненты	Нелинейный процесс	Лазеры накачки	Литература
49,7	До 200 Вт	He, Ne	$\chi^{(5)}$, 5ω	KrF* (15 пс, до 20 мДж)	14
38,6		H ₂ , He, Ar, N ₂ , CO	$\chi^{(7)}$, 5ω	ArF* (10 пс, 4 ГВт)	113
38	$\eta = 10^{-7} - 10^{-8}$	He	$\chi^{(7)}$, $7\omega_{УФ}$	АИГ ($\omega_{УФ} = 4\omega$: 30 пс, 330 МВт)	207
35,5	$\eta \sim 3 \cdot 10^{11}$	He	$\chi^{(7)}$, 7ω	KrF* (15 пс, до 20 мДж)	14

В настоящее время методы нелинейной оптики газообразных сред позволили полностью перекрыть диапазон 200—100 нм и частично в области 100—

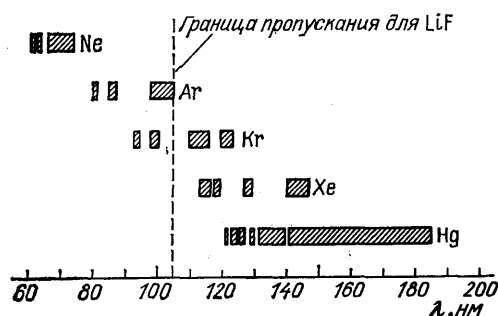


Рис. 15. Области длин волн третьей гармоники, для которых дисперсия $\Delta k = k_3 - 3k_1$ в Ne, Ar, Xe и Hg отрицательная ¹²

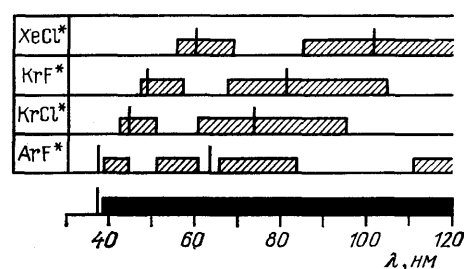


Рис. 16. Длины волн ВУФ и МР излучений, которые можно получить при смешении частот на нелинейностях $\chi^{(3)}$ и $\chi^{(5)}$, используя эксимерные лазеры (λ) и лазеры на красителях (λ_K) ($217 \text{ нм} \leq \lambda_K \leq 750 \text{ нм}$) ¹³. Выделены $\lambda/5$ и $\lambda/3$

35 нм с мощностями, достаточными для многих применений. Результаты по генерации ВУФ и МР излучений на основе ГНС сведены в табл. II—IV (см. также рис. 15, 16).

4.2. Сопоставление характеристик нелинейно-оптических и нелазерных источников ВУФ излучения

Перестраиваемое когерентное ВУФ излучение существенно расширяет возможности изучения характеристик сплошных спектров поглощения и фотоионизации, а также ридберговских и автоионизационных состояний. Наиболее широкие применения для указанных целей имеет ВУФ излучение в диапазоне 200—100 нм. Поскольку методы получения перестраиваемого узкополосного ВУФ излучения, доступные для широкого круга физических лабораторий, стали развиваться сравнительно недавно, исследования по линейной и нелинейной спектроскопии высокого и сверхвысокого разрешений в этом диапазоне проводились гораздо менее широко, чем соответствующие исследования в видимом и ближнем УФ диапазонах.

Традиционная техника ВУФ спектроскопии включает газоразрядные (благородный газ или водород) лампы и вакуумные монохроматоры. Более

интенсивные синхротронные источники для достижения высокого разрешения также требуют вакуумных монохроматоров. Разрешение, достигаемое с помощью такой техники, определяется используемым спектральным прибором. Рекордная разрешающая сила $R = \lambda/\Delta\lambda$ получена с использованием 10,7-метрового ВУФ спектрографа с дифракционной решеткой⁹⁸ (дисперсия 0,4Å/мм, $\Delta\lambda = 0,2-0,3 \text{ см}^{-1}$ на $\lambda = 100 \text{ нм}$, $R = (3-5) \cdot 10^5$).

Одномодовый лазер имеет спектральную ширину, значительно меньшую, чем обеспечиваемая лучшими дифракционными решетками или интерферометрами Фабри — Перо. В связи

с этим понятна привлекательность лазерных источников ВУФ излучения, обладающих целым рядом уникальных свойств: высокой интенсивностью, очень узкой спектральной шириной линии, временной и пространственной когерентностью и, если необходимо, короткой длительностью импульсов. В диапазоне $\lambda < 200 \text{ нм}$ работают лишь несколько типов лазеров в некоторых дискретных спектральных интервалах. Прогресс в генерации излучения, перестраиваемого в широком диапазоне короче 200 нм, связан исключительно с использованием нелинейно-оптических явлений в газах. Типичная разрешающая сила таких источников уже сейчас составляет $(1-5) \cdot 10^5$, а максимально достигнутая 10^7 ¹⁹. Мощности излучения достаточны не только для линейной спектроскопии, но и для многофотонного возбуждения атомов и молекул. С помощью источников ВУФ излучения на ГНС за последние несколько лет достигнут значительный прогресс и получен ряд важных результатов в спектроскопии и фотофизике. Открывающиеся возможности обсуждаются на регулярных международных конференциях по применению ВУФ и МР излучений.

Прежде чем перейти к рассмотрению конкретных примеров, коротко остановимся на сравнении спектральной яркости различных ВУФ источников света. На рис. 17 представлены графики спектральной яркости в разных диапазонах спектров различных источников: ВУФ ламп, синхротронов DORIS и DESY и излучения третьей гармоники КгF*-лазера²⁴. Из сопоставления этих результатов следует, что спектральная яркость третьей гармоники ($\lambda \approx 83 \text{ нм}$), по крайней мере, на порядок превышает таковую для других источников. На длине волны $\lambda = 143,6 \text{ нм}$ достигнута спектральная яркость $3 \cdot 10^{31} \text{ фот/с} \cdot \text{см}^2 \cdot \text{Å} \cdot \text{ср}^{10}$. При генерации суммарных частот во всей области 100—200 нм спектральная яркость может достигать такого же порядка. На длине волны $\lambda = 53 \text{ нм}$ яркость составляет $6 \cdot 10^{30} \text{ фот/с} \cdot \text{см}^2 \cdot \text{Å} \cdot \text{ср}^{10}$. Общее число фотонов, излучаемых дуговыми лампами, имеет такой же порядок, как и у лазерных источников, но их спектральная яркость значительно меньше за счет большой расходимости и ширины спектра излучения.

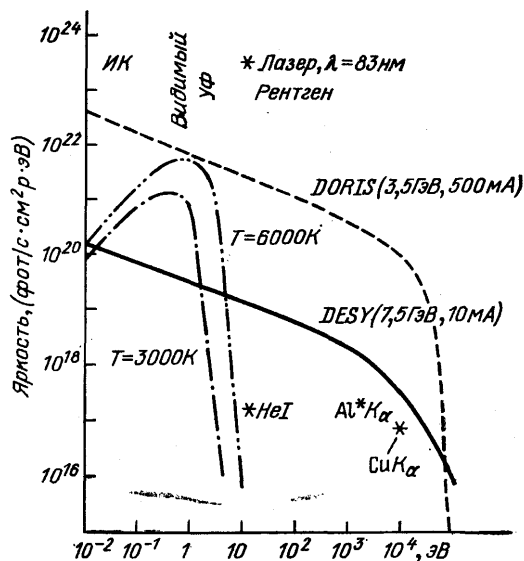


Рис. 17. Сравнение спектральной яркости синхронного и лампового некогерентных источников излучения с лазерным²⁴. Штрихпунктиром показана яркость излучения черного тела

4.3. Применение нелинейно-оптических источников ВУФ излучения

Весьма важны применения ВУФ излучения для исследования молекулярных спектров. Первые эксперименты по линейной спектроскопии были выполнены сразу же после получения ВУФ излучения при смешении частот

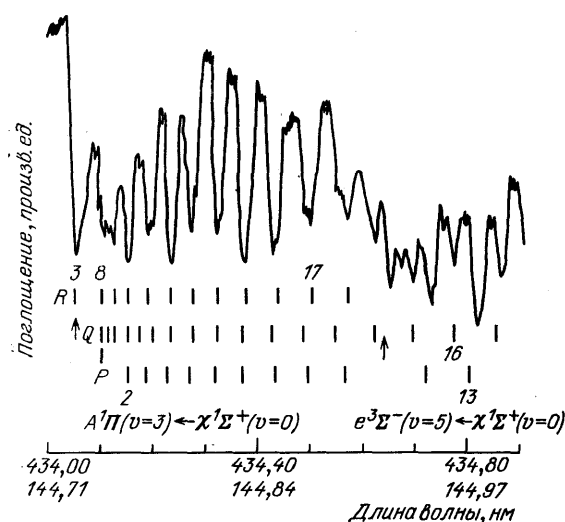


Рис. 18. Спектр поглощения СО в области $\lambda = 144$ нм, полученный с помощью излучения третьей гармоники, генерируемый в Хе²¹.

Верхняя шкала — длина волны лазерного излучения в воздухе, нижняя — длина волны ВУФ излучения с учетом поправки на показатель преломления воздуха

в парах Sr и Mg. В работе⁹⁹ был получен спектр поглощения молекулы O₂, в молекулы СО (рис. 18, а также^{100, 101}). Детальное исследование ВУФ спектров NO и СО выполнено в работах¹⁰². Экспериментальные установки во многих случаях относительно просты и позволяют регистрировать вращательные спектры с довольно высоким разрешением. Спектры поглощения атомов Н и D на лаймановских линиях с доплеровским разрешением получены в¹⁰³. В работе²⁰ были получены спектры высокого разрешения ($\Delta\lambda \approx 0,2$ см⁻¹, $R = 6 \cdot 10^5$) для молекул Н₂, D₂ и HD в области 83 нм (рис. 19). Упомянутые молекулы, в частности Н₂, с одной стороны, являются наиболее простыми, а с другой — их изучение имеет фундаментальное значение как для

развития теоретической физики и химии, так и для различных практических нужд. В этих экспериментах, по-видимому, впервые продемонстрирована возможность спектроскопии столь высокого разрешения в области

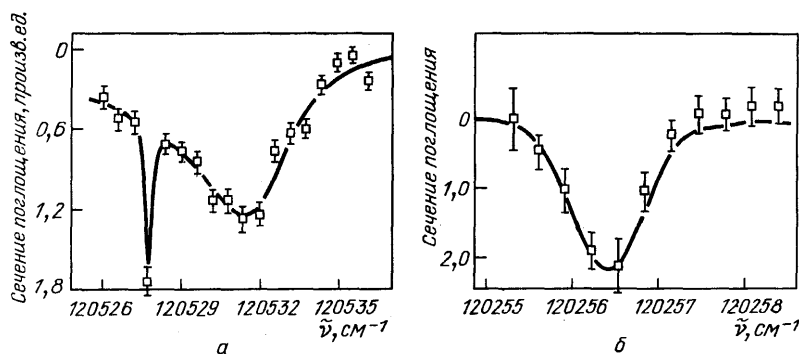


Рис. 19. Пример высокоразрешенных спектров поглощения в D₂ (а) и H₂ (б) в области $\lambda \approx 83$ нм (третья гармоника излучения KrF-лазера в Хе)²⁰.

а — широкий несимметричный переход D ← X(5,0) R(2) в D₂. Сплошная линия — свертка контуров линий доплеровского и Фано. б — Узкий симметричный переход D'' ← X(0,0) R(1) в H₂. Сплошная линия — гауссов контур линии с доплеровской шириной

далекого ВУФ. Спектр поглощения Н₂ в области 97,3—102,3 нм изучался в¹⁰⁴. В еще более коротковолновом диапазоне спектральные исследования выполнены в¹⁰⁵, где зарегистрированы спектры АИ резонансов в области 79 нм в D₂ и Ag (рис. 20). Спектры поглощения К в области 54 нм с разрешением 1,9 нм ($R \approx 10^5$) получены в²¹.

Одним из применений перестраиваемого ВУФ излучения в области $\text{Ly-}\alpha$ и $\text{Ly-}\beta$ линий является зондирование водородной плазмы¹⁰⁶, используемой для термоядерного синтеза. Для определения плотности плазмы в диапазоне 10^7 – 10^8 см^{-3} необходимо излучение с мощностью порядка 10–100 кВт и спектральной шириной менее 1 \AA ¹⁰⁷. В работе^{23a} выполнен первый эксперимент по определению атомарной концентрации Н и D и распределения по скоростям в водородной плазме токамака. При мощности в импульсе 100 Вт на $\lambda = 121,6 \text{ нм}$ достигнута чувствительность по концентрации $N \approx 10^9 \text{ см}^{-3}$. Лаймановские линии в Н и D в исследуемых условиях оказались уширенными до величины $\sim 1 \text{ см}^{-1}$.

Потенциальные возможности применения ВУФ-излучения, получаемого на основе нелинейного смешения, в химической физике продемонстрированы

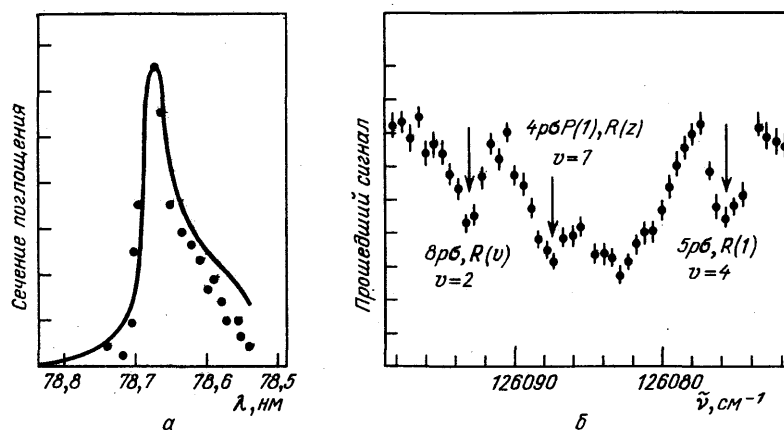


Рис. 20. Спектры поглощения на переходах в автоионизационные состояния в области $\lambda \approx 79 \text{ нм}$ ¹⁰⁸.

ВУФ излучение получено при смешении в H_2 частот излучения ArF-лазера и перестраиваемого лазера на красителе ($\lambda_K \approx 436 \text{ нм}$), $\omega_{\text{ВУФ}} = 2\omega_{\text{ArF}} + \omega_K$. а — Ar-поглощение при переходе на уровень $2P_{1/2}9d$. б — D.

на примерах измерения радиационных времен жизни вращательных уровней колебательного состояния $v = 0$ первого возбужденного электронного уровня CO и прямого измерения поперечного сечения реакции рассеяния $\text{H} + \text{Br}$ как функции кинетической энергии атома Н¹⁸.

Серия работ по фотоионизационной спектроскопии с использованием ВУФ излучения выполнена авторами¹⁰⁸. В частности, была изучена однофотонная ионизация NO в области 123 нм и селективная двуступенчатая ионизация CO (потенциал ионизации 14,0139 эВ). В последнем случае ВУФ излучение (третья гармоника излучения лазера с $\lambda = 368 \text{ нм}$) использовалось для предварительного возбуждения молекулы CO в состояние $A^1\Pi, v' = 13$ с последующей ионизацией излучением четвертой гармоники АИГ лазера. Разрешение в ионном спектре составило $0,55 \text{ см}^{-1}$. Подобные эксперименты выполнены также с молекулами NO²². Аналогичным методом осуществлялась фотоионизация атомов Н и D, используя ВУФ излучение, возбуждающее атомы в состояние 2^2P . Исследована сверхтонкая структура основного состояния атома Н (1^2S). Рассмотрены возможности получения поляризованных протонов посредством двухфотонной ионизации. Осуществлено двуступенчатое возбуждение ридберговских состояний атомов водорода¹⁰⁸: $\text{H}(1^2S) + \hbar\omega_{\text{ВУФ}} \rightarrow \text{H}(2^2P) + \hbar\omega_{\text{УФ}} \rightarrow \text{H}(n^2S, n^2D) \rightarrow \text{H}_n^+ + e$. Исследовалась резонансная двухфотонная ионизация H_2 с помощью ВУФ излучения $\lambda \approx 111 \text{ нм}$, используя энергетический уровень $B^1\Sigma^+(v=0)$ как промежуточное резонансное состояние. Изучалась динамика ИК многофотонного возбуждения и последующая фотоионизация и диссоциация молекулы

$(\text{CH}_3\text{CO})_2\text{O}$ с помощью ВУФ-излучения $\lambda \approx 118,4$ нм. Такая методика позволяет исследовать кинетику и динамику диссоциации в возбужденных электронных состояниях сложных молекул, информация о которых для большинства молекул отсутствует.

Двухфотонное ВУФ возбуждение атомов Ag в области $\lambda < 100$ нм исследовалось в работе¹². Этот эксперимент демонстрирует возможность использования ВУФ-излучения, получаемого с помощью ГНС, для нелинейного возбуждения атомов и молекул. Так как резонансное преобразование обеспечивает генерацию достаточно интенсивного ВУФ излучения в спектральном диапазоне 200—100 нм, нелинейное оптическое возбуждение может быть

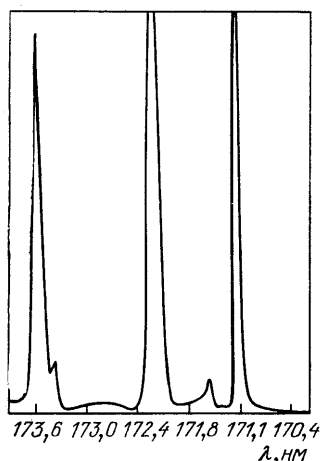


Рис. 21. Характерная спектральная зависимость мощности ВУФ излучения при четырехволновом смещении в парах Sr^{46}

использовано для спектроскопических исследований в области 100—50 нм. В настоящее время имеются все предпосылки для переноса методов нелинейной лазерной спектроскопии, развитых в ИК и видимой областях спектра, в ВУФ и МР диапазоны.

В работе¹⁰⁹ продемонстрированы возможности генерационной ВУФ спектроскопии молекул с использованием нелинейной восприимчивости третьего порядка, а в¹¹⁰ — на нелинейностях высшего порядка. Этот метод может быть использован и для спектроскопических исследований АИ-резонансов в атомах^{46, 47, 111} (рис. 21) и преддиссоциационных состояний в молекулах. Уникальность метода состоит в том, что он позволяет извлекать информацию, которая не может быть получена другими способами. В частности, применительно к молекулам появляется возможность изучения деталей структуры нефлуоресцирующих электронно-вращательных состояний¹⁰⁹.

Помимо спектроскопии обсуждаются перспективы применения ВУФ излучения в голографии²⁵ и микролитографии¹¹². Создание источников когерентного ВУФ-излучения с $\lambda < 100$ нм с высокой спектральной яркостью на основе KGF^* и AgF^* усилительных систем, работающих в режиме пикосекундных импульсов, открывает дополнительные возможности для многих физических исследований и применений, требующих использования интенсивного излучения в указанных диапазонах. Некоторые из таких применений обсуждаются в работах^{24, 113}. В²⁴ предлагается использовать излучение с $\lambda = 83$ нм для технологических целей, например, для лазерной обработки полупроводников с целью получения различных компонент для микроэлектроники. Обсуждается возможность изучения поверхностных явлений в конденсированных средах с высоким временным и пространственным разрешением, например, для диагностики процесса рекристаллизации при лазерном отжиге полупроводников. Предсказывается, что использование импульсов длительностью 10 пс и мощностью до 100 кВт позволит наблюдать образование одиночных атомных слоев. Из других важных применений следует указать на возможность диагностики инерциальной термоядерной плазмы¹¹³. Оценки показывают, что использование узкополосного и пространственно когерентного ВУФ-излучения с $\lambda < 100$ нм позволит значительно снизить мощности, требуемые для импульсной фотографии этих объектов по сравнению с использованием рентгеновского излучения.

Приведенный перечень не исчерпывает всех возможных областей применения перестраиваемого когерентного ВУФ- и МР-излучений. Тем не менее, уже из цитированных работ следует актуальность дальнейшей разработки и оптимизации нелинейно-оптических методов генерации ВУФ- и МР-излучений в газообразных средах.

5. ПРЕОБРАЗОВАНИЕ ЧАСТОТЫ ИЗЛУЧЕНИЯ ЭКСИМЕРНЫХ ЛАЗЕРОВ В СИНЕ-ЗЕЛЕНУЮ ОБЛАСТЬ СПЕКТРА

В последние годы значительно вырос интерес к генерации мощного излучения в сине-зеленой области спектра $\lambda = 450\text{--}530$ нм на основе ВКР-излучения эксимерных лазеров в парах щелочноземельных металлов и молекулярных газах¹¹⁴. Это обусловлено рядом важных приложений. Например, в указанном диапазоне относительно прозрачна морская вода, лежат полосы поглощения многих биологических объектов, возможна эффективная накачка лазеров на красителях и ряд других применений. Квантовая эффективность ВКР-излучения эксимерных лазеров в парах металлов может достигать 80 %¹¹⁵, а энергетический выход в стоксову компоненту — 1 Дж¹¹⁶. С использованием этой техники возможно создание высокомошных лазерных систем видимого диапазона с общей эффективностью более 1 % (см., например,¹¹⁶). В молекулярных газах из-за малого стоксова сдвига необходимо использовать рассеяние более высоких порядков. При этом наблюдается достаточно эффективное преобразование вплоть до компонентов шестого порядка¹¹⁷. В схеме с усилителем была получена эффективность преобразования во вторую стоксову компоненту ($\lambda = 500$ нм) до 47 %¹¹⁸. Использование ВКР в ГНС может представлять интерес и для компрессии импульсов¹¹⁹.

6. ИСТОЧНИКИ УЗКОПОЛОСНОГО ПЕРЕСТРАИВАЕМОГО ИК ИЗЛУЧЕНИЯ

6.1. ВЭКР в парах металлов

Наибольшее распространение для генерации ИК излучения получило использование ВЭКР. При этом среди атомарных сред удобны пары щелочных металлов. Проведенные исследования показали, что для эффективного преобразования длина волны накачки должна выбираться вблизи какого-либо разрешенного однофотонного резонанса, а из КР-переходов наиболее выгодными являются $S \rightarrow S$ -переходы. В этом случае коэффициент усиления оказывается максимальным, если в качестве промежуточного уровня выбрать Р-состояние с таким же главным квантовым числом, что и у возбужденного уровня. В некоторых экспериментах при мощностях накачки в несколько десятков киловатт область перестройки ИК излучения составила несколько сотен см^{-1} с квантовой эффективностью в максимуме до 50 %. Например, при ВЭКР на переходе $6S \rightarrow 7S$ атома Cs¹²⁰ накачка перестраивалась вблизи перехода $6S \rightarrow 7S_{1/2, 3/2}$ (рис. 22). В этом эксперименте зарегистрировано перестраиваемое ИК излучение в диапазоне 2,67—3,47 мкм с максимальной мощностью до 1 кВт.

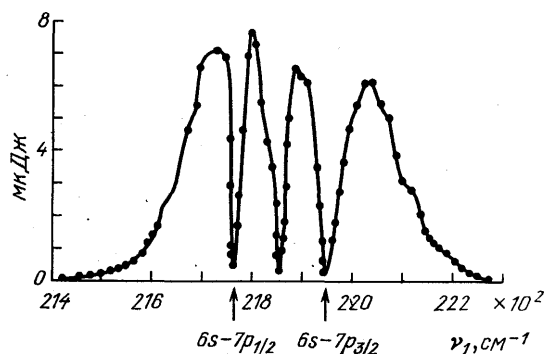


Рис. 22. Зависимость энергии импульсов ИК излучения от частоты накачки при ВЭКР в парах Cs на переходе $6s \rightarrow 7s$ ¹²⁰

Полученное излучение использовалось для исследования спектра поглощения в CH_4 и аммонии с разрешением не хуже $0,4 \text{ см}^{-1}$. В работе¹²¹ с более мощными источниками накачки область перестройки составила 2,5—4,7 мкм с максимальной мощностью до 25 кВт, а при использовании переходов $6S \rightarrow 8S$ и $6S \rightarrow 9S$ получено ИК излучение в диапазонах 5,67—8,65 мкм и 11,7—15 мкм с мощностями до 7 и 2 кВт соответственно. При типичной

ширине спектра лазера накачки $\Delta\nu_1 < 0,1 \text{ см}^{-1}$ ширина линии ВЭКР составляет $0,3\text{--}1 \text{ см}^{-1}$ при доплеровской ширине перехода, значительно меньшей ширины спектра накачки.

В связи с созданием мощных УФ лазеров, в частности эксимерных, стала возможной генерация ИК излучения путем ВЭКР в диапазоне 20 мкм и более длинноволновой области, в том числе на переходах в ридберговские состояния. Это открывает возможности генерации перестраиваемого далекого ИК излучения. Однако эффективность преобразования в этом случае невелика, так как мал фактор $\omega_{\text{ИК}}/\omega_1$. Поэтому альтернативным путем генерации далекого ИК излучения является использование ВЭКР между возбужденными состояниями (например, между ридберговскими). При этом целесообразно использовать переходы из первого возбужденного P -состояния, которое можно заселять различными путями. Эффективное время жизни таких состояний в парах щелочных металлов достаточно велико (порядка микросекунд) за счет пленения излучения. Этим методом в парах К получено ИК излучение в области 8,5 и 16 мкм с использованием уровня 4Р, который заселялся дополнительным лазерным излучением¹²². Для заселения 4Р-состояния в К использовался также тлеющий разряд¹²³. При этом было замечено, что число генерируемых за импульс фотонов в области 16 мкм более, чем на порядок превышает населенность 4Р-уровня. Это связано с тем, что один и тот же атом за время импульса несколько раз взаимодействует с излучением (за счет быстрого распада в 4Р-состояние), приводя тем самым к существенному увеличению КП.

Актуальным является получение мощного ИК излучения пикосекундной длительности с помощью ВЭКР. Впервые такая возможность была продемонстрирована в работе¹²⁴ при ВЭКР в парах Cs. В работе¹²⁵ получено пикосекундное ИК излучение ($\tau \approx 30 \text{ пс}$, $\lambda = 2,38 \text{ мкм}$) с квантовым КП $\sim 20 \%$. Кроме ВЭКР, для генерации перестраиваемого ИК излучения используют резонансные четырехволновые процессы в ГНС. Наибольшее распространение получили схемы с комбинационным резонансом $\omega_{\text{ИК}} = |\omega_4 - \omega_2 - \omega_3| = |\omega_{ng} - \omega_1|$ (рис. 1, д). При использовании в качестве перехода $n - g$ атомного электронного перехода мощность генерации невелика. При этом плавная перестройка может быть получена в широкой области длин волн от единиц до десятков микрон. При киловаттной накачке мощность генерации составляет от долей ватта в области единиц микронов до долей милливатта в области десятков микрон¹²⁶.

6.2. ВКР в молекулярных газах

ВКР в молекулярных газах, в отличие от ВЭКР в атомах, является менее резонансным процессом. За счет этого возможна более широкая перестройка ИК излучения. Порог генерации длинноволнового излучения ($\lambda > 2 \text{ мкм}$) может быть значительно снижен, используя многоходовую или волноводные кюветы¹²⁷ (и ссылки в них). С использованием молекулярных газов (H_2 , N_2 и др.) получена генерация излучения в ближнем (1–10 мкм), среднем (10–18 мкм) и дальнем (40–250 мкм) ИК диапазонах¹²⁸. В частности, в ближней ИК области достигнута мощность 1–200 МВт, а в области 16 мкм — до 1,7 мДж в импульсе.

На колебательных переходах молекул удобно использовать метод бигармонической накачки $\omega_{\text{ИК}} = \omega_1 - \omega_{ng} = \omega_1 - (\omega_4 - \omega_3)$. Удобство состоит в том, что перестраиваемое излучение может быть слабым, а порог генерации понижается за счет дополнительного возбуждения колебаний молекулы мощным излучением с фиксированной частотой ω_4 . Например, в работе¹²⁹, используя параметрический генератор света (ω_1) и мощное излучение АИГ-лазера ($\lambda_4 = 1,06 \text{ мкм}$), получено перестраиваемое ИК излучение в H_2 , с помощью которого исследованы спектры поглощения полистерена в области $769\text{--}2400 \text{ см}^{-1}$.

6.3. ГТГ на колебательных нелинейностях молекул

Одним из способов получения мощного излучения, перестраиваемого в области 2,7–3,5 мкм, где сосредоточены частоты С–Н, О–Н и N–Н связей, является генерация гармоник излучения высокоэффективных перестраиваемых CO₂- и СО-лазеров с использованием колебательных нелинейностей таких молекул, как Н₂, НСl, SF₆, DCl, CD₄, С₂Н₄, NH₃, OCS и др. Хотя оценки и показывают возможность достижения КП порядка 10 %¹³⁰, наибольший КП пока составил 4 % и был достигнут в криогенной смеси жидкостей СО–О₂ с добавлением для фазового согласования SF₆¹³¹. Для газообразных молекулярных сред наилучшие результаты получены в ¹³² и ²¹⁷, причем рекордный КП (по энергии) ~ 0,1 % получен на колебательных нелинейностях молекулярного озона при преобразовании частоты излучения СО₂-лазера в область 3 мкм. Преимущества жидкой фазы состоят в сочетании большой плотности активных частиц и уникально узких линий двухфотонного поглощения за счет эффекта motional-narrowing¹³³. Краткий обзор по нелинейной оптике криогенных жидкостей дан в ¹³⁴.

Резонансная генерация гармоник и смешение частот на колебательных нелинейностях молекулярных газов и жидкостей используется для генерационной нелинейной спектроскопии и позволяет получить информацию, не доступную методам линейной спектроскопии¹³⁵.

7. АПКОНВЕРСИЯ И УСОВЕРШЕНСТВОВАНИЕ МЕТОДОВ РЕГИСТРАЦИИ ИК ИЗЛУЧЕНИЯ

Интерес к преобразованию (апконверсии) частоты слабого ИК излучения в видимую и ближнюю УФ области спектра обусловлен различными факторами. Для видимого диапазона имеются эффективные маломощные фотоприемники с высоким временным разрешением, тогда как чувствительность ИК детекторов на 7–8 порядков хуже, а их временное разрешение значительно ниже. Кроме того, приемники видимого диапазона обычно работают при комнатных температурах, ИК приемники требуют глубокого охлаждения. Поэтому детектирование и анализ ИК сигналов на основе их предварительного преобразования в видимую и УФ области спектра позволяют использовать все преимущества приемников оптического излучения: быстродействие, широкополосность, высокую чувствительность и точность измерения длин волн. Преобразованный сигнал сохраняет в основном информацию, заложенную в пространственной и временной структуре, а также в спектре исходного ИК излучения. Таким образом, использование методов апконверсии ИК излучения в видимый диапазон приводит к значительному прогрессу в области оптической локации и связи, ИК спектроскопии и астрономии, метрологии и ИК голографии. Даже преобразование с относительно слабой эффективностью открывает пути к созданию ИК детекторов пико- и фемтосекундных импульсов для изучения быстрых процессов, например, в биологии и химии.

Методы апконверсии используют физические процессы, в которых ИК фотон в комбинации с одним или двумя лазерными фотонами накачки приводит к появлению фотона в видимом и ближнем УФ диапазоне. Мы будем рассматривать здесь лишь когерентное (параметрическое) взаимодействие ИК излучения и лазерной накачки в парах металлов, приводящее к генерации на суммарной частоте.

До недавнего времени обычно использовались процессы параметрического смешения в кристаллах с типичной эффективностью преобразования 10⁻⁴ – 10⁻⁶ для непрерывного излучения и несколько десятков процентов — в импульсном режиме (режим модулированной добротности) (см., например, ¹³⁶).

Использование ГНС для целей апконверсии ИК излучения обладает рядом преимуществ по сравнению с кристаллами и позволяет решать некоторые задачи, которые плохо решаются или совсем не решаются с помощью кристаллов. Во-первых, газообразные атомные среды, за исключением отдельных узких линий, прозрачны во всем диапазоне ИК спектра. Во-вторых, как уже отмечалось, частоты преобразованного излучения и накачки достаточно далеко разнесены друг от друга, что приводит к значительному упрощению фильтрации слабого излучения от мощной накачки. В-третьих, нет ограничений на апертуру нелинейной среды, а технология получения паров относительно проста и дешева. В-четвертых, высокая лучевая стойкость ГНС допускает использование мощных импульсов накачки большей длительности по сравнению с кристаллами.

Для преобразования в видимый и ближний УФ диапазоны спектра целесообразно использовать атомы щелочных металлов, поскольку они имеют наиболее низколежащие возбужденные уровни с достаточно большими силами осцилляторов переходов. Имеется несколько возможностей повышения частоты ИК излучения путем нелинейного резонансного смещения в ГНС. Все варианты резонансных преобразователей можно разделить на два типа. В первом двухфотонный резонанс осуществляется на частотах излучения накачки ^{3,4} (см. рис. 1,а) (можно использовать и комбинационный резонанс, где в качестве второй накачки может служить ВЭКР) (см. рис. 1,б), а во втором — в двухфотонный резонанс настраивается сумма частот одной из накачек и ИК излучения — так называемая схема с дополнением частоты ИК излучения до двухфотонного резонанса ^{6,137}.

Проведенные исследования показали, что для эффективного смещения в схеме с двухфотонной накачкой необходимо одновременно удовлетворять нескольким условиям, наиболее важными из которых являются: одновременное наличие двухфотонного резонанса на частоте накачки и квазирезонанса на суммарной частоте. При этом фазовое согласование должно выполняться в области концентраций $N \sim 10^{16} - 10^{17}$ ат·см⁻³. Указанная совокупность условий может быть легко выполнена, если на выбор частоты ИК излучения не накладывается никаких ограничений. Частоты ИК излучения, которые могут быть эффективно преобразованы в данной ГНС при данной накачке, оказываются фиксированными и определяются структурой энергетического спектра ГНС. Так, используя близость частоты излучения линии Р (40) ($\lambda = 10,8$ мкм) практически важной 10-микронной полосы генерации СО₂-лазера к частоте перехода $6S - 6P_{3/2}$ атома Na (отстройка от резонанса составляет $\Delta\nu = -0,14$ см⁻¹), в ⁴ получен квантовый КП относительно мощности ИК излучения, проходящей через сечение пучка накачки, 65% (а КП по мощности 2640%). Длина волны излучения на суммарной частоте составила $\lambda = 268$ нм, а мощности накачки — несколько киловатт.

Схема с дополнением частоты ИК излучения до двухфотонного резонанса снимает ограничения на частоты преобразуемых ИК излучений и открывает большие возможности для визуализации ИК сигналов из широкого спектрального диапазона, включая и частоты существующих ИК лазеров. Это обусловлено тем, что перестраивая частоту второй накачки около трехфотонного резонанса, можно управлять условиями фазового согласования и достигать максимума излучения на суммарной частоте. Данный метод позволяет преобразовывать любые ИК излучения, используя всего лишь одну нелинейную среду, и может быть положен в основу нелинейного ИК спектрометра. Как показывает теоретический анализ, предельный квантовый КП в этой схеме, по-видимому, не превышает 25 % из-за эффекта параметрического просветления среды. Однако КП по мощности может превышать 100 %. В первом эксперименте ⁶ по данной схеме КП составил величину 10^{-4} %. В работе ¹³⁸, хотя и не удалось полностью реализовать оптимальные условия, квантовый выход уже составил величину порядка 12 %. В этой работе слабое излучение $\lambda = 1,06$ мкм было преобразовано в область 322,9 нм в парах Rb

при накачке излучением двух лазеров на красителях с мощностью несколько киловатт.

Большой интерес представляет сложение частот излучения в непрерывном режиме. Такой эксперимент был выполнен в ¹⁷, где в парах Na частота излучения CO₂-лазера ($\lambda = 10,8$ мкм) преобразована в область 268 нм с КП по мощности относительно мощности ИК излучения, проходящего через сечение пучка накачки, 9 %. Использовалась схема с двухфотонным возбуждением в поле излучения аргонового лазера и лазера на красителе. Показано, что для относительно слабых полей накачки целесообразно приближение к промежуточному однофотонному резонансу по накачке, несмотря на возрастание конкурирующих процессов.

Таким образом, при выполнении оптимальных условий необходимые мощности накачки ГНС оказываются на несколько порядков меньше по сравнению с нелинейными кристаллами.

Нелинейное смешение частот в ГНС открывает новые возможности визуализации ИК изображений и регистрации тепловых излучений. В настоящее время выполнено лишь несколько экспериментов по визуализации ИК изображений. Так, в работе ⁶ в парах Cs при апконверсии излучения с $\lambda = 2,94$ мкм в область 0,4 мкм достигнуто разрешение $1,6 \cdot 10^4$ элементов при энергетическом КП 32 %. Преобразователь ИК изображений на парах Cs, описанный в ⁵, имеет такие же характеристики, что и лучшие кристаллические, однако, используемая в нем интенсивность накачки на два порядка меньше ($\approx 10^5$ Вт/см²). Прибор позволяет визуализировать изображение с площади диаметром 40 м, находящейся на расстоянии 3 км.

Результаты проведенных исследований позволяют сопоставить возможности различных методов регистрации ИК излучения ¹⁹. Апконверсия ИК излучений и изображений в активном варианте (при облучении объектов ИК лазерами) имеет преимущества перед всеми остальными способами. Однако в пассивном варианте, т. е. при преобразовании тепловых изображений, квантовые счетчики и ИК детекторы обладают лучшими характеристиками по сравнению с апконверторами. Это объясняется тем, что в настоящее время большинство нелинейных детекторов используют для накачки импульсные лазеры с относительно низкой частотой повторения импульсов, что обуславливает низкую производительность преобразования непрерывного ИК излучения. В активном методе детектируемое излучение также является импульсным и синхронным с накачкой, что приводит к резкому увеличению производительности процесса. Для регистрации тепловых изображений прямые методы детектирования являются более предпочтительными перед всеми остальными. Квантовые счетчики имеют большую чувствительность по отношению к тепловым излучениям, но значительно меньшую разрешающую способность по сравнению с преобразователями частоты. Пары металлов являются более предпочтительными в сравнении с кристаллами как в пассивном, так и в активном методах апконверсии. Использование техники внешнего резонатора бегущей волны, в котором устанавливают ячейку с нелинейной средой, позволяет увеличить эффективность сложения частот в непрерывном режиме, что особенно важно для преобразования тепловых излучений.

Как уже отмечалось, методы повышения частот ИК излучения находят все возрастающие применения. Интересные возможности фототографии ИК спектров с разрешением во времени путем преобразования их в видимый диапазон продемонстрированы в работах ⁷. Метод основан на получении широкополосного ИК излучения при ВЭКР в парах металлов, последующем поглощении его в молекулярных средах, содержащих продукты химических реакций, и затем преобразование этой широкой (порядка нескольких сотен см⁻¹) полосы, содержащей линии поглощения, в соответствующую полосу спектра видимого излучения в парах металлов. Квантовый КП ИК спектров в видимый диапазон составил 23 %. Важно отметить, что спектры получают в реальном времени и всего лишь за один импульс накачки. Данная схема

Таблица V

Преобразование ИК излучения в видимый и УФ-диапазоны спектра
в парах металлов

$\lambda_{\text{ИК}}, \text{ мкм}$	$\lambda_s, \text{ мкм}$	КП квантовый η_q , по мощности η_p	Нели- ней- ная среда	Процесс, резонансность	Лазеры	Лите- рату- ра
9—11	0,3	$\max \eta_q = 0,58$ $\max \eta_p = 16,2$ на $\lambda =$ $= 9,26 \text{ мкм}$	Na	$2\omega_1 + \omega_{\text{ИК}}$ (ДФР, ТФР)	АИГ/ПГС (20 нс, 3 кВт) + СО (непре- рывный, 5 мВт)	3
10,8	0,268	$\eta_q = 0,65$, $\eta_p = 26,4$	Na	$\omega_k + \omega_2 + \omega_{\text{ИК}}$ (ДФР, ТФР)	АИГ/краситель ($\omega_k : 5,5 \text{ кВт}$) + АИГ ($\omega_2 = 2\omega : 20 \text{ кВт}$) + + СО ₂ (непрерыв- ный, 7,5 мВт)	4
10,8	0,268	$\eta_p = 0,09$	Na	$\omega_k + \omega_2 + \omega_{\text{ИК}}$ (ДФР, ТФР)	Непрерывный режим Ag ⁺ /краситель ($\omega_k :$ 0,3 Вт) + Ag ⁺ ($\omega_2 :$ 0,33 Вт) + + СО ₂ (0,3 мВт)	17
10,6	0,33	$\eta_p = 0,23$	Na	$2\omega_k + \omega_{\text{ИК}}$ (ДФР, ТФР)	АИГ/краситель + + СО ₂ (200 мВт)	208
9,13—10,91	0,3	$\eta_p = 10^{-6} - 10^{-2}$	K	$2\omega_k + \omega_{\text{ИК}}$ (ДФР)	Краситель (650 МВт/см ²) + + СО ₂ ($\omega_{\text{ИК}}$)	209
5,2—5,9	0,3	$\eta_p = 10^{-6} - 10^{-4}$	K	$2\omega_k + \omega_{\text{ИК}}$ (ДФР)	Краситель (200 МВт/см ²) + + СО ₂ ($\omega_{\text{ИК}}$)	209
3,39	0,33	$\eta_p = 10^{-4}$	Na	$2\omega_k - \omega_{\text{ИК}}$ (ДФР)	АИГ/краситель (5 кВт) + He — Ne (1 мВт)	210
3,06—3,19	0,46	$\eta_p = 10^{-5}$ (изо- бражение, разрешение 5—100)	Cs	$\omega_1 + \omega_{\text{ИК}} + \omega_2$ (схема с до- полнением) (ДФР, ТФР)	АИГ/краситель ($\omega_1 :$ 2—5·10 ⁵ Вт/см ²) + + ПГС ($\omega_{\text{ИК}}$) + + ПГС (ω_2)	6
3	0,45	$\eta_p = 10^{-1}$	Cs	$2\omega + \omega_{\text{ИК}}$ (ТФР)	АИГ ($\omega :$ 800 МВт/см ²) + + ПГС ($\omega_{\text{ИК}}$)	211
2,94	0,456	$\eta_p = 0,2$ (изо- бражение, раз- решение 10 ³)	Cs	$2\omega + \omega_{\text{ИК}}$ (ДФР, ТФР)	Nd:La ₂ Be ₂ O ₅ ($\omega :$ 100 нс, 8 кВт) + + ПГС ($\omega_{\text{ИК}}$)	5
2,94	0,456	$\eta_p = 0,32$ (изо- бражение, разрешение 1,6·10 ⁴)	Cs	$2\omega + \omega_{\text{ИК}}$ (ДФР, ТФР)	Nd:La ₂ Be ₂ O ₅ ($\omega : 40 \text{ нс}$, 300 кВт, 275 кВт/см ²) + + ПГС (20 нс)	6
2,55—2,85	0,4	$\eta_q = 0,23$, $\eta_p \sim 1,5$	K	$\omega_1 - \omega_c + \omega_{\text{ИК}}$ КР	АИГ/краситель (5 нс, 2 мДж)	7
2,2	0,3	$\eta_q = 0,4$, $\eta_p = 1,2$	Na	$\omega_1 + \omega + \omega_{\text{ИК}}$ (ДФР, ТФР)	Краситель ($\omega_1 :$ 230 Вт) + АГИ ($\omega :$ 60 Вт) + ПГС ($\omega_{\text{ИК}} : 10 \text{ Вт}$)	212
1,15	0,378	$\eta_p = 2 \cdot 10^{-3}$	Tl	$2\omega_k - \omega_{\text{ИК}}$ (ДФР)	АИГ/краситель (20 кВт) + (10 мВт)	224
1,06	0,418	$\eta_p = 2 \cdot 10^{-2}$	Ca	$2\omega_k - \omega_{\text{ИК}}$ (ДФР)	АИГ/краситель (15 нс, 10 кВт) + АИГ (непрерывный) 0,1 Вт)	213

Таблица V (продолжение)

$\lambda_{ИК}$, мкм	λ_s , мкм	КП квантовый η_q , по мощности η_p	Нелинейная среда	Процесс, резонансность	Лазеры	Литература
1,064, 1,061	0,61	$\eta_p = 0,01$	Na	$\omega_1 + \omega_{ИК} + \omega_2$ (ДФР, ТФР) схема с до- полнением	АИГ/краситель (ω_1 : 100 Вт) + АИГ ($\omega_{ИК}$) + ПГС (ω_2 : 50 Вт)	137a
1,06	0,323	$\eta_q = 0,12$, $\eta_p = 0,4$	Rb	$\omega_1 + \omega_{ИК} + \omega_2$ схема с до- полнением	Рубин/краситель (ω_1 : 20 нс, 22 кВт) + + АИГ (120 мВт) + + краситель (ω_2 : 3 кВт)	138
1,06	0,61	$\eta_p = 0,3$	Na	$\omega_{ИК} + \omega_k - \omega_{ИК}$ (ДФР)	АИГ ($\omega_{ИК}$) + краси- тель (ω_k)	141

может представлять интерес и для решения задачи, связанной с регистрацией пико- и фемтосекундных импульсов. Применение метода смещения частот для апконверсии изображений и спектроскопии астрономических ИК источников обсуждаются в работе ¹⁴⁰. Обращение волнового фронта с конверсией частоты ИК излучения в видимую область в парах Na выполнено в ¹⁴¹. КП по мощности составил 30 % с разрешением 13 линий/мм. Основные результаты по преобразованию слабого ИК излучения в парах металлов сведены в табл. V.

Таким образом, использование резонансных и квазирезонансных нелинейных процессов в парах металлов позволяет осуществлять повышение некоторых частот ИК излучений с эффективностью, превышающей таковую в нелинейных кристаллах (достигнутый максимальный квантовый КП в кристаллах для внрезонаторного преобразования 10-микронного излучения в частотном режиме составляет 40 % ¹⁴²) при одновременном снижении требований на мощность накачки, облегчении фильтрации сигнального излучения и снижении стоимости устройства, осуществлять визуализацию ИК излучений путем апконверсии различных частот в видимое и УФ излучение с фиксированной частотой и преобразовывать широкий интервал спектров ИК сигналов в ту же полосу видимого или УФ спектра. Более полная реализация указанных преимуществ и перспектив требует дальнейших экспериментальных и теоретических исследований.

8. ОБРАЩЕНИЕ ВОЛНОВОГО ФРОНТА

Обращение волнового фронта излучений (ОВФ) находит чрезвычайно широкие применения для коррекции волновых фронтов и управления пространственными характеристиками лазерного излучения (см., например, ^{8,143}). Явление ОВФ состоит в генерации электромагнитной волны, фаза которой в каждой точке пространства является противоположной по знаку (комплексно-сопряженной) по отношению к возбуждающей (пробной) волне. При этом частота обращенной волны обычно равна или близка к частоте обращаемой волны, а направление распространения — обратное. Например, если пробная волна является сферической, расходящейся из некоторой точки с радиусом кривизны R , то обращенная волна будет также сферической, но сходящейся в ту же самую точку с радиусом кривизны — R . Формально ОВФ излучения сводится к операции комплексного сопряжения комплексной пространственной части амплитуды волны. Изменение знака фазы на противоположный при фазово-сопряженном отражении приводит к снятию фазовых искажений при обратном распространении сопряженной волны через искажающую среду.

В среде с кубической нелинейностью фазово-сопряженная волна (обращенная волна) возникает, например, за счет нелинейной поляризации:

$$P^{(3)} = \frac{N}{4} \chi^{(3)} A_1 A_2 A_3^*.$$

Если $\omega_1 = \omega_2 = \omega_3$, $\mathbf{k}_1 = -\mathbf{k}_2$, то волна поляризованности распространяется с волновым вектором $-\mathbf{k}_3$ и сопряженной относительно волны A_3 фазой. В этом случае генерируемая волна может быть представлена в виде $A_4 = R A_3^*$, где R — коэффициент нелинейного фазово-сопряженного отражения.

Изучению явления ОВФ и различным его приложениям посвящено большое число оригинальных публикаций¹⁴⁴, а также ряд обзоров (например,⁸), охватывающих различные аспекты этого явления. В частности, для ОВФ широко используются ГНС.

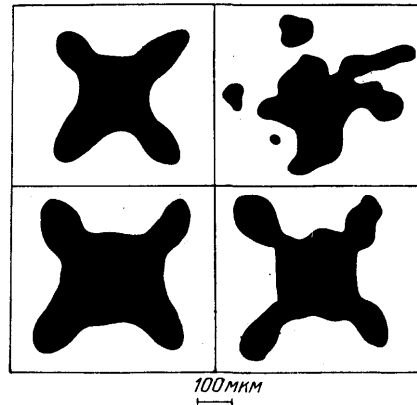


Рис. 23. Фотографии ИК изображения амплитудного транспаранта в сигнальном (падающем) (а, б) и обращенном (в, г) пучках¹⁴⁷.

а — Изображение транспаранта. б — Разрушенное с помощью фазовой пластинки изображение транспаранта. в — Изображение транспаранта в обращенной волне в отсутствие фазовой пластинки. г — Восстановленное изображение транспаранта в присутствии фазовой пластинки

При использовании атомарных молекулярных газообразных сред в резонансных и нерезонансных условиях экспериментально ОВФ получено в ИК ($\lambda = 10,6$ мкм), видимом и УФ диапазонах спектра в импульсном и непрерывном режимах. Характеристики и особенности ОВФ в газообразных средах достаточно подробно обсуждаются в одном из обзоров на эту тему⁸. Следует подчеркнуть, что газообразные среды позволяют получать ОВФ со значительным (более 1500 %) усилением¹⁴⁵. Использование однофотонных резонансов приводит к резкому увеличению нелинейной восприимчивости с одновременным снижением требований на интенсивность накачки. За счет этого в¹⁴⁶ осуществлено ОВФ излучения непрерывного лазера на красителе, возбуждаемого Ag^+ -лазером в парах Na с коэффициентом отражения (КО) 150 %. На этой основе было создано фазово-сопрягающее зеркало в резонаторе непрерывного лазера. В цитированной выше работе¹⁴¹ исследованы характеристики ОВФ ИК сигнала с преобразованием частоты в красную область спектра в парах Na.

Среди исследований по адаптивной оптике важное место занимают работы по ОВФ излучения CO_2 -лазера в ГНС. В⁹ при использовании молекулярного газа SF_6 для линии генерации импульсного CO_2 -лазера Р (12) ($\lambda = 10,51$ мкм) получен КП ≈ 220 %. Осуществлено восстановление ИК изображений на указанной длине волны, разрушенных в случайно неоднородной среде¹⁴⁷. Визуализация исходного, разрушенного и восстановленного пучков (см. рис. 23) была осуществлена с помощью метода термомагнитной записи изображений в аморфных магнитных пленках. Нелинейные оптиче-

ские процессы, лежащие в основе ОВФ, также получили применение в спектроскопических исследованиях (см., например, ⁸), в частности, в бездоплеровской спектроскопии, в том числе и при использовании монохроматических лазерных источников.

9. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Индивидуальные свойства атомов и молекул лучше всего проявляются в газообразных средах. В этих же условиях вещество наиболее ярко демонстрирует резонансный нелинейный оптический отклик. Изучение нелинейных оптических свойств атомов и молекул — один из интереснейших разделов физики, тесно связанный с физикой лазеров, нелинейной спектроскопией и нелинейной оптикой. Атомы и молекулы в поле сильного резонансного лазерного излучения представляют собой хорошую модель для изучения сильно нелинейных процессов — раздел физики, в котором за последние годы получен ряд принципиальных результатов.

С другой стороны, — нелинейный оптический отклик атомов и молекул в газовой фазе предоставляет уникальные возможности получать электромагнитное излучение с нужными свойствами, например, перестраиваемое по частоте когерентное излучение в ВУФ и МР областях, быстро управлять фазой световых колебаний в схемах коррекции волнового фронта, преобразовывать световые потоки с большой энергией, мощностью и апертурой, усовершенствовать методы получения и детектирования ИК излучений. Уровень понимания, объем знаний и техника эксперимента, достигнутые при изучении нелинейных оптических процессов в газах и парах химических элементов на микроскопическом и макроскопическом уровнях, позволили решить многие важные научные и прикладные задачи.

В соответствующих разделах обзора приведены примеры таких достижений. Так ВУФ спектрометры высокого разрешения на основе ГНС, доступные для обычной физической лаборатории и в ряде случаев заменяющие синхротроны, существенно обогатили и расширили возможности спектроскопии высоковозбужденных состояний вещества. Довольно простые нелинейно-оптические устройства на газах и парах металлов привели к усовершенствованию и созданию качественно новых методов ИК и адаптивной оптики. Эти успехи стимулируют дальнейшее развитие фундаментальных и прикладных исследований как в смежных разделах науки и техники: в физике высокотемпературной плазмы, химии, биологии, микротехнологии, так и внутри нелинейной оптики и нелинейной спектроскопии атомно-молекулярных сред.

ПРИЛОЖЕНИЕ

ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ ИНТЕНСИВНОГО ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ С РЕЗОНАНСНЫМИ СРЕДАМИ. ЛИМИТИРУЮЩИЕ ПРОЦЕССЫ

В разделе 2 описаны лишь основные оптические процессы, определяющие преобразование частоты излучения в ГНС. Как уже отмечалось, особенность резонансной нелинейной оптики состоит в том, что в поле интенсивного лазерного излучения обычно одновременно развивается совокупность линейных и нелинейных процессов, многие из которых оказывают существенное влияние на процесс преобразования излучения. Их учет необходим при выборе оптимальных условий преобразования. Рассмотрим некоторые из таких процессов.

а) Однофотонное поглощение и преломление

Невозмущенные линейные показатели поглощения $\alpha_l(\omega_j)$ и преломления $n_l(\omega_j)$ на частотах взаимодействующих волн, а также их изменение в сильных полях за счет нелинейных процессов, могут быть вычислены с

помощью следующих выражений:

$$\alpha_{\text{л}}(\omega_j) = 4\pi\omega_j N c^{-1} \text{Im } \chi^{(1)}(\omega_j) = N\sigma_{\text{л}}(\omega_j) = \\ = 4\pi N (c\hbar)^{-1} \sum_m \omega_{mg} |d_{gm}|^2 \Phi_{mg}(\omega_j) \Gamma_{mg}^{-1} = N \sum_m 2r_e f_{gm} \Gamma_{mg}^{-1} \Phi_{mg}(\omega_j), \quad (\text{П.1})$$

где $\sigma_{\text{л}}$ — сечение линейного поглощения, f_{gm} — сила осциллятора для перехода gm , $r_e = e^2/mc^2 = 2,818 \cdot 10^{-13}$ см, Φ_{mg} — формфактор перехода, который при лоренцевом уширении переходов или для расстроек, существенно превышающих доплеровские ширины, имеет вид

$$\Phi_{mg}(\omega_j) = (2\Gamma_{mg}\omega_j)^2 [(\omega_j^2 - \omega_{mg}^2)^{-2} + (2\Gamma_{mg}\omega_j)^2]^{-1}, \quad (\text{П.2})$$

$$n_{\text{л}}(\omega_j) = 1 - 2\pi N \text{Re } \chi^{(1)}(\omega_j) = 1 - 4\pi N \hbar^{-1} \sum_m \omega_{mg} |d_{gm}|^2 (\omega_j^2 - \omega_{mg}^2)^{-1} = \\ = 1 - 2\pi c^2 r_e N \sum_m f_{gm} (\omega_j^2 - \omega_{mg}^2)^{-1}. \quad (\text{П.3})$$

б) Нелинейное поглощение и преломление

Нелинейные добавки к показателям поглощения и преломления, например, на частоте ω_2 под воздействием сильного излучения на частоте ω_1 определяются, соответственно, слагаемыми:

$$\delta\alpha_{\text{нл}}(\omega_2) = (\pi\omega_2 c^{-1} N |A_1|^2 \text{Im } \chi^{(3)}(\omega_2 = \omega_1 + \omega_2 - \omega_1)), \quad (\text{П.4})$$

$$\delta n_{\text{нл}}(\omega_2) = -\frac{1}{2} \pi N |A_1|^2 \text{Re } \chi^{(3)}(\omega_2 = \omega_1 + \omega_2 - \omega_1), \quad (\text{П.5})$$

$$\chi^{(3)}(\omega_2) = \frac{1}{4\hbar^3} \left| \sum_{k=1,2}^{m,} d_{gm} d_{mn} (\omega_k - \omega_{mg})^{-2} \right|^2 (\omega_1 + \omega_2 - \omega_{ng} - i\Gamma_{ng})^{-1}. \quad (\text{П.6})$$

Если доплеровское уширение двухфотонного резонанса превышает ударное, выражение (П.6) необходимо усреднить по скоростям.

Поглощение излучения часто выступает главным эффектом, нарушающим применимость приближения заданного поля, а нелинейные добавки к коэффициенту преломления приводят к самофокусировке и самоискривлению пучков излучений и могут оказать существенное влияние на волновой синхронизм. В ряде случаев нелинейная рефракция может выступать главным ограничивающим фактором, требующим компенсации (см., например⁸⁰⁾.

в) Движение населенностей и динамический штарк-эффект

Формулы (П.4—П.6) позволяют оценить возмущение среды сильным полем в нижайшем порядке теории возмущений. Точный учет обычно затруднен неоднородностью полей во времени и в пространстве. Во многих случаях, когда область применимости этих приближений нарушается, действие сильного поля можно грубо учесть путем замены плотности частиц на насыщенную разность населенностей резонансного n -фотонного перехода. Если резонансных переходов несколько, то появление заселенностей возбужденных уровней способно привести к качественному изменению выражения для нелинейной восприимчивости (см. например,²²³ гл. 6).

Кроме того, в сильном поле необходимо учитывать изменение резонансных знаменателей в выражениях для эффективных восприимчивостей. Эти изменения можно оценить с помощью формулы для сдвига $\Delta\mathcal{E}_n$ энергетического уровня в сильном поле E с частотой ω

$$\Delta\mathcal{E}_n = \frac{1}{4} \sum_k \left(\frac{|d_{kn}E|^2}{\mathcal{E}_n - \mathcal{E}_k - \hbar\omega} + \frac{|d_{kn}E|^2}{\mathcal{E}_n - \mathcal{E}_k + \hbar\omega} \right). \quad (\text{П.7})$$

Здесь предполагается, что однофотонные расстройки относительно переходов существенно больше их ширины.

г) Многофотонная ионизация и пробой

Многофотонная ионизация приводит к обеднению зоны взаимодействия резонансными атомами, уширению и сдвигу уровней. Относительный вклад ионизации по сравнению с другими нелинейными процессами зависит от кратности процесса многофотонной ионизации^{218,219}. Для однофотонной ионизации плотность ионов описывается выражением

$$N_i = N_n \left[1 - \exp \left(-\frac{1}{2} \sigma_n \Phi \right) \right], \quad (\text{П.8})$$

где N_n — населенность уровня n , с которого стартует процесс однофотонной ионизации, σ_n — ее сечение, Φ — плотность энергии излучения.

Константы ионизационного уширения γ_{nn} и сдвига δ_{nn} уровня могут быть оценены по формуле^{47, 219}

$$\begin{aligned} \gamma_{nn}(\epsilon_0) &= \pi \hbar |V_{ne_0}|^2 |_{\epsilon_0 = \epsilon_n + \hbar \omega} \approx \sigma_n I (2\hbar \omega)^{-1}, \\ \delta_{nn} &= \pi^{-1} \int \gamma_{nn}(\epsilon) (\epsilon_0 - \epsilon)^{-1} d\epsilon, \end{aligned} \quad (\text{П.9})$$

где V_{ne_0} — матричный элемент гамильтониана взаимодействия на переходе с дискретного уровня n в резонансное состояние континуума e_0 , I — плотность потока излучения.

При напряженностях лазерного излучения выше критической E_k возникает оптический пробой²²⁰. Для слабой фокусировки излучения, оптических частот и наносекундных длительностях импульсов τ напряженность E_k оценивается по формуле

$$E_k \approx [10^{23} (N\tau)^{-1}]^{1/2}; \quad (\text{П.10})$$

здесь N — плотность атомов [см⁻³], T [с], E_k [В/см].

Наряду с обеднением резонансных атомов за счет появления электронной компоненты происходит изменение коэффициентов преломления. Вклад электронов в коэффициент преломления описывается выражением

$$\Delta n = -2\pi N_e e^2 (m_e \omega^2)^{-1}, \quad (\text{П. 11})$$

где N_e — концентрация, e — заряд, m_e — масса электронов.

Ионизация среды способна нарушить ее центральную симметрию и снять запрет на генерацию четных гармоник. Таким образом была получена резонансная генерация высших четных гармоник⁶⁴ вплоть до 8-й гармоники в ВУФ-диапазоне⁶⁵.

д) Параметрическое просветление

Одним из явлений, которое может оказывать существенное влияние на процесс нелинейного преобразования излучения, является параметрическое просветление, обусловленное интерференцией нелинейных процессов (см., например,^{29,138}). Его физическую природу можно пояснить на примере резонансного двухфотонного сложения частот типа $\omega_s = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$ ($\omega_1 + \omega_2 = \omega_s - \omega_3 \approx \omega_{ng}$). Уравнение для недиагонального элемента матрицы плотности ρ_{ng} , определяющего как процессы двухфотонного возбуждения, так и нелинейную восприимчивость для процесса сложения частот, в представлении взаимодействия можно записать в виде

$$\left[\frac{\partial}{\partial t} + (\gamma_2 - i\Omega) \right] \rho_{ng} = in [r_1 A_1 A_2 + r_2 A_3^* A_s \exp(-i\Delta k z)]; \quad (\text{П.12})$$

здесь Ω и γ_2 — расстройка и уширение двухфотонного резонанса на переходе ng с учетом полевого возмущения; n — разность заселенностей уровней n и g , r_1 — составной матричный элемент для перехода ng типа двухфотонного поглощения, а r_2 — типа комбинационного рассеяния, A_i — медленные амплитуды полей на частотах ω_i .

Из (П. 12) видно, что если, например, исходные поля A_1 и A_3 сильные, а A_2 — слабое, то по мере нарастания волны A_3 в некоторой точке среды выражение в прямых скобках (П. 12) обращается в нуль. Это означает, что поляризации среды, обусловленные двухфотонным поглощением и комбинационным рассеянием становятся равны по величине и противоположны по фазе. Если $\Delta k = 0$, то в дальнейшем прекращается как нелинейное поглощение, так и нелинейное преобразование излучения. В работе¹³⁸ при исследовании процессов преобразования ИК излучения в парах рубидия было показано, что за счет этого явления в плоских волнах даже при сколь угодно большой длине нелинейной среды лишь 50 % квантов $\hbar\omega_2$ поглотится за счет двухфотонных процессов, 25 % преобразуется в ω_s , а 25 % пройдет через среду, не проваимодействовав с ней.

Параметрическое просветление экспериментально исследовалось в²²¹, развитие теории этого явления содержится в^{29,222}.

В данном разделе приведены выражения, позволяющие оценить условия, при которых вклад каждого из рассмотренных сопутствующих процессов становится существенным. Для решения вопроса о предельной эффективности преобразования необходимо рассматривать взаимное влияние всей совокупности указанных процессов одновременно. Поскольку в общем виде эта задача аналитически не решается, каждый конкретный случай требует своего подхода. Примеры решения подобных задач можно найти в^{75,78,90,219}.

Институт физики им. Л. В. Киренского СО АН СССР,
Красноярск
Красноярский государственный университет

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Bloom D. M. et al.//Appl. Phys. Lett. 1975. V. 12. P. 687.
2. Hanna D. C., Yuratic M. A., Cotter D. Nonlinear Optics of Free Atoms and Molecules. — Berlin; Heidelberg; New York: Springer-Verlag, 1979.
3. Bloom D. M. et al.//Appl. Phys. Lett. 1974. V. 2. P. 427.
4. Макаров Н. П., Попов А. К., Тимофеев В. П.//Appl. Phys. Ser. B. 1983. V. 30. P. 53; КЭ. 1983. Т. 10. С. 664.
5. Stappaerts E. A., Harris S. E., Young J. F.//Appl. Phys. Lett. 1976. V. 29. P. 669.
6. Newton J. H., Young J. F.//IEEE J. Quantum Electron. 1980. V. QE-16. P. 268.
7. Bethune D. S. et al.//Opt. Lett. 1979. V. 4. P. 103; IBM J. Res. and Dev. 1979. V. 23. P. 556; J. Chem. Phys. 1981. V. 74. P. 2304; V. 75. P. 2231.
8. Pepper D.//Opt. Engng. 1982. V. 21. P. 155.
9. Bolotskikh L. T., Попов А. К.//Appl. Phys. Ser. B. 1983. V. 31. P. 191.
10. Reintjes J.//Appl. Opt. 1980. V. 19. P. 3889.
11. Jamros W., Stoicheff B. P.//Progress in Optics/Ed. E. Wolf. — Amsterdam: North-Holland, 1983. — V. 20. P. 325.
12. Wallenstein R.//Laser und Optoelektron. 1982. Bd 3. S. 29; Изв. АН СССР. Сер. физ. 1986. Т. 50. С. 614.
13. Egger H., Pummer H., Rhodes C. K.//Laser Focus 1982. V. 18. P. 64.
14. Bokor J., Bucksbaum P. H., Freeman R. R.//Opt. Lett. 1983. V. 8. P. 217.
15. Rowekamp M., Dobe H. F., Rühle B.//IEEE J. Quantum. Electron. 1984. V. QE-20. P. 1284.
16. Lukinykh V. F. et al.//Appl. Phys. Ser. B. 1984. V. 34. P. 171.
17. Архипкин В. Г., Высотин А. Л., Им Тхек-де и др.//КЭ. 1986. Т. 13. С. 135.
18. Wallace S. C.//Photoselective Chemistry/Eds J. Jortner, R. D. Levine, S. A. Rice. New York: Wiley, 1981. — Pt. 2. P. 135.
19. Stoicheff B. P. et al.//Laser Techniques for Extreme Ultraviolet Spectroscopy/Eds T. J. McIlrath, R. R. Freeman. — New York: Am. Inst. Phys., 1982. — P. 19.

20. Rotschild M. et al.//Phys. Rev. Ser. A. 1981. V. 23. P. 206.
21. Rothenberg J. E., Young J. F., Harris S. E.//Opt. Lett. 1981. V. 6. P. 363.
22. Miller J. C., Compton R. N., Cooper C. D.//J. Chem. Phys. 1982. V. 76. P. 3967.
23. a) Dreyfus R. W., Bogen P., Langer H.//¹⁹. — P. 445.
 б) Baldwin K. G. H., Marados J. P., Burgess D. D.//J. Phys. Ser. D. 1984. V. 17. P. 169.
24. Rhodes C. K.//Novel Materials and Technology in Condensed Matter/Eds G. W. Grabtree, P. Vashishta. — Elsevier Science, 1982. — P. 151.
25. Bjorklund G. C., Harris S. E., Young J. F.//Appl. Phys. Lett. 1974. V. 25. P. 451.
26. Мовсесян М. Е., Ирадян В. А., Бадалян И. Н.//Письма ЖЭТФ. 1967. Т. 6. С. 631.
 Sorokin P. P. et al.//Appl. Phys. Lett. 1967. V. 10. P. 44.
 Rokni J. M., Yatsiv S.//IEEE J. Quantum. 1967. V. QE-3. P. 329.
 Lumpkin O. J.//Ibidem. 1968. V. QE-4. P. 226.
 Арутюнян В. М. и др.//ЖЭТФ. 1970. Т. 58. С. 37.
 Кирич Ю. М., Раутиан С. Г.//Письма ЖЭТФ. 1970. Т. 11. С. 340.
 Бонч-Бруевич А. М. и др.//Ibidem. С. 431.
 Королев Ф. А., Бахрамов С. А., Одинцов В. И.//Ibidem. Т. 12. С. 131.
 Ахманов С. А. и др.//Ibidem. 1972. Т. 15. С. 186.
27. Попова Т. Я., Попов А. К.//ЖЭТФ. 1967. Т. 52. С. 1517.
 Будницкий А. Б., Попов А. К.//Опт. и спектр. 1970. Т. 29. С. 1032.
 Попов А. К., Баранцов В. И., Тартаковский Г. Х.//XII Уральская конференция по спектроскопии. — Свердловск: ИФМ УНЦ АН СССР, 1971. — Вып. 3. С. 49; Тезисы 17-го Всесоюзного съезда по спектроскопии. Вып. «Лазерная спектроскопия». — Минск: ИФ АН БССР, 1971. — С. 40.
28. Ахманов С. А., Хохлов Р. В. Проблемы нелинейной оптики. — М.: ВИНТИ, 1964.
 Шуберт М., Вильгельми Б. Введение в нелинейную оптику. — М.: Мир, ч. 1, 1973; ч. 2, 1979.
 Рапопорт Л. П., Зон Б. А., Манаков Н. Л. Теория многофотонных процессов в атомах. — М.: Атомиздат, 1978.
29. Резонансные взаимодействия света с веществом/В. С. Бутылкин, А. Е. Каплан, Ю. Г. Хропуло, Е. И. Якубович. — М.: Наука, 1977.
30. Orr B. J., Ward J. F.//Mol. Phys. 1971. V. 20. P. 513.
31. Yarov A.//IEEE J. Quantum Electron. 1977. V. QE-13. P. 943.
 Yee T. K., Gustafson T. K.//Phys. Rev. Ser. A. 1978. V. 18. P. 1597.
 Uemura J. P.//IEEE J. Quantum Electron. 1980. V. QE-16. P. 472.
 Prior Y.//Ibidem. 1984. V. QE-20. P. 37.
32. Puel H., Vidal C. R.//Phys. Rev. Ser. A. 1976. V. 14. P. 2225.
33. Grischkowski D., Loy M. M. T., Liao P. F.//Ibidem. 1975. V. 12. P. 2514.
34. Афанасьев А. М., Маныкин Э. А.//ЖЭТФ. 1965. Т. 48. С. 1931.
35. Eicher H.//IEEE J. Quantum Electron. 1975. V. QE-11. P. 121.
36. Ward J. F., New G. H.//Phys. Rev. 1969. V. 185. P. 57.
37. Bjorklund G. C.//IEEE J. Quantum Electron. 1975. V. QE-11. P. 287.
38. Роров А. К., Тимофеев В. Р.//Opt. Commun. 1977. V. 20. P. 94.
39. Архипкин В. Г., Попов А. К. О преобразовании ИК излучения в резонансных нелинейных средах: Препринт ИФСО-150Ф. — Красноярск 1980.
40. Ахманов С. А.//Нелинейная спектроскопия/Под ред. Н. Бломбергена. — М.: Мир, 1979. — С. 322.
41. Tomov I. V., Richardson M.//IEEE J. 1976. V. QE-12. P. 521.
42. Якубович А. Н.//а) Вестн. Моск. ун-та. Сер. «Физика, астрономия»; б) Высшие оптические нелинейности и многофотонные процессы в изотропных средах: Автореферат диссертации... канд. физ.-мат. наук. — М.: МГУ, 1981.
43. Reintjes J., She C.-Y., Eckardt R. C.//IEEE J. Quantum Electron. 1978. V. QE-14. P. 581.
44. New G. H. C.//Opt. Commun. 1981. V. 38. P. 189.
45. Фано У., Купер Дж. Спектральное распределение сил осцилляторов в атомах. — М.: Наука, 1972.
46. Армстронг Дж.//⁴⁰. — С. 192.
47. Геллер Ю. И., Попов А. К. Лазерное индуцирование нелинейных резонансов в сплошных спектрах. — Новосибирск: Наука, 1981.
48. Crance M., Armstrong L., Jr.//J. Phys. Ser. B. 1982. V. 15. P. 4637.
 Alber G., Zoller P.//Phys. Rev. A. 1983. V. 27. P. 1373.
 Agarwal G. S., Lakshmi P. A.//Ibidem. V. 28. P. 3430.
49. Royt T. R., Chi H., Lee//Appl. Phys. Lett. 1977. V. 30. P. 332.
50. Agarwal G. S., Haan S. L.//Phys. Rev. Ser. A. 1984. V. 29. P. 2552, 2565.

51. Heller Yu. I., Popov A. K. // *Phys. Lett. Ser. A*. 1976. V. 56. P. 453.
52. Lami A., Rahman N. K. // *Opt. Commun.* 1982. V. 43. P. 383; *Phys. Rev. Ser. A*. 1982. V. 26. P. 3360; *J. Mol. Struct.* 1983, V. 93, P. 295.
53. Геллер Ю. И., Попов А. К. // *ЖЭТФ*. 1980. Т. 78. С. 506.
54. Геллер Ю. И. и др. // *Письма ЖТФ*. 1980. Т. 6. С. 151; *Phys. Lett. Ser. A*. 1981. V. 82. P. 4.
55. Димов С. С. и др. // *КЭ*. 1983. Т. 10. С. 1635. *Appl. Phys. Ser. B*. 1983. V. 30. P. 35.
56. Coleman P. E., Knight P. L. // *Opt. Commun.* 1982. V. 42. P. 171; *J. Phys. Ser. B*. 1982. V. 15. P. L235.
Rzazewski K., Eberly J. H. // *Phys. Rev. Lett.*, 1981. V. 47. P. 408; *J. Phys. Ser. B*. 1982. V. 15. P. L661.
57. Hänsch T., Toschek P. // *Zs. Phys.* 1970. Bd 236. S. 373.
58. Bethune D. S., Smith R. W., Shen Y. R. // *Phys. Rev. Ser. A*. 1978. V. 17. P. 277.
59. Gauthier D. J., Krasinski J., Boyd R. W. // *Opt. Lett.* 1983. V. 8. P. 211.
60. Uchiki H., Nakatsuka H., Matsuoka M. // *Phys. Rev. Lett.* 1977. V. 38. P. 894, *Opt. Commun.* 1979. V. 30. P. 345.
61. Dunn M. H. // *Ibidem*. 1983. V. 45. P. 346.
62. Mossberg T., Flusberg A., Hartman S. R. // *Ibidem*. 1978. V. 25. P. 121.
Miyazaki K., Sato T., Kashiwagi H. // *Phys. Rev. Ser. A*. 1981. V. 23. P. 1358.
Okada J., Fukuda Y., Matsuoka M. // *J. Phys. Soc. Japan*. 1981. V. 50. P. 1301.
Bokor J. et al. // *Opt. Lett.* 1981. V. 6. P. 182.
Jamroz W., LaRoque P. E., Stoicheff B. P. // *Opt. Lett.* 1982. V. 7. P. 148.
63. Arkhipkin V. G. et al. // *Opt. and Quantum Electron.* 1981. V. 13. P. 436.
64. Kiyashko V. A. et al. // *Appl. Phys. Ser. B*. 1985. V. 35. P. 53.
65. Александровский А. С. и др. Исследование условий генерации когерентного вакуумно-ультрафиолетового излучения в нелинейных процессах высших порядков: Препринт ИФ СО 347 Ф. — Красноярск, 1985.
66. Bethune D. S. // *Phys. Rev. Ser. A*. 1981. V. 23. P. 3139; 1982. V. 25. P. 2345 (Erratum).
67. Бахрамов С. А., Тартаковский Г. Х., Хабидулаев П. К. Нелинейные резонансные процессы и преобразование частоты в газах. — Ташкент: Фан, 1981.
68. Ахманов С. А. // ⁴⁶ — С. 347.
69. Cotter D., Hanna D. C., Wyatt R. // *Appl. Phys.* 1975. V. 8. P. 333.
70. Шен И. Р. // *Рассеяние света в твердых телах* / Ред. М. Кардона. — М.: Мир, 1979. — С. 314.
71. Wynne J. J., Sorokin P. P. // *Nonlinear Infrared Generation* / Ed. Y. Shen. — Berlin, Heidelberg; New York: Springer-Verlag, 1977. — (Topics in Applied Physics. V. 159).
72. Harris S. E. // *Appl. Phys. Lett.* 1977. V. 31. P. 498; ¹⁹ — P. 137.
73. Rothenberg J. E., Harris S. E. // *IEEE J. Quantum Electron.* 1984. V. QE-17. P. 418.
Caro R. G. et al. // *Appl. Phys. Lett.* 1983. V. 42. P. 9; *Phys. Rev. Ser. A*. 1984. V. 30. P. 1419.
Helman J. S. et al. // *Ibidem*. 1983. V. 27. P. 562.
Мартиросян А. Е., Папанян О. В. // *КЭ*.
White J. C. // *IEEE J. Quantum Electron.* 1984. V. QE-20. P. 185.
Ludewigt K., Birkman K., Welleghansen B. // *Appl. Phys. Ser. B*. 1984. V. 33. P. 133.
74. Pummer H. et al. // *Phys. Rev. Ser. A*. 1983. V. 28. P. 795.
Boyer K. et al. // *J. Opt. Soc. Am. Ser. B*. 1984. V. 1. P. 3.
75. Ильинский Ю. А., Таранухин В. Д. // *КЭ*. 1975. Т. 2. С. 1497.
Аникин В. И. и др. // *КЭ*. 1976. Т. 3. С. 330.
Georges A. T. et al. // *Phys. Rev.* 1977. V. 15. P. 300.
Stappaerts E. A. // *IEEE J. Quantum Electron.* 1979. V. QE-15. P. 110.
Puel H. et al. // *Phys. Rev. Ser. A*. 1980. V. 22. P. 1165.
Scheingraber H. et al. // *Quantum Electron.* 1983. V. QE-19. P. 1747.
76. Vidal C. R. // *Appl. Opt.* 1980. V. 19. P. 3897.
77. Stappaerts E. A. et al. // *IEEE J. Quantum Electron.* 1976. V. QE-12. P. 330.
Аникин В. И., Ахманов С. А. и др. // *КЭ*. 1976. Т. 3. С. 2014.
Стеба А. М., Стрижевский В. Л. // *УФЖ*. 1980. Т. 25. С. 86.
78. Аникин В. И. и др. // *ЖЭТФ*. 1977. Т. 72. С. 1727.
Diels J.-C. et al. // *Phys. Rev. Ser. A*. 1979. V. 19. P. 1589.
Elgin J. N. // *J. Phys. Ser. B*. 1980. V. 13. P. 3043.

79. Ward J. F., Smith A. V.//Phys. Rev. Lett. 1975. V. 35. P. 653.
Wang C. C., Davis L. I.//Ibidem. P. 650.
80. Puell H., Vidal C. R.//Opt. Commun. 1978. V. 27. P. 165.
Mironov G. V., Попов А. К., Slabko V. V.//Opt. and Quantum Electron. 1985. V. 17. P. 435; КЭ. 1986. Т. 13. С. 1138.
81. Bjorklund G. C. et al.//Appl. Phys. Lett. 1976. V. 29. P. 729.
82. Miles R. B., Harris S. E.//IEEE J. Quantum Electron. 1973. V. QE-9. P. 470.
83. Vidal C. R., Cooper J. J.//J. Appl. Phys. 1969. V. 40. P. 3370.
Vidal C. R., Haller F. B.//Rev. Sci. Instr. 1971. V. 42. P. 1770.
84. Кодиров М. К. и др. Препринт ИФ СО АН СССР № 221 Ф. — Красноярск, 1982.
Александровский А. С. и др. Препринт ИФ СО АН СССР № 297 Ф. — Красноярск, 1984.
85. Vidal C. R., Hessel M. M.//J. Appl. Phys. 1972. V. 43. P. 2776.
86. Bloom D. M. et al.//Appl. Phys. Lett. 1975. V. 27. P. 390.
87. Scheingraber H., Vidal C. R.//Rev. Sci. Instr. 1981. V. 52. P. 1010.
88. Hilbig R., Wallenstein R.//IEEE J. Quantum Electron. 1983. QE-19. P. 1759.
89. Kung A. H.//Opt. Lett. 1983. V. 8. P. 24;
Rettner C. T. et al.//J. Phys. Chem. 1984. V. 88. P. 4459.
90. Hellner L., Lukasik J.//Opt. Commun. 1984. V. 51. P. 347.
91. Freeman R. R. et al.//Phys. Rev. Ser. A. 1982. V. 26. P. 3029.
92. Лебедев В. В., Плясуля В. М., Трошин Б. И. и др.//КЭ. 1985. Т. 12. С. 866.
93. Lukinykh V. F., Myslivets S. A., Попов А. К. et al.//Appl. Phys. Ser. B. 1985. V. 38. P. 143.
94. Архипкин В. Г., Геллер Ю. И., Попов А. К. и др.//КЭ. 1985. Т. 12. С. 1420.
Arkhipkin V. G., Heller Yu. I., Попов А. К. et al.//Appl. Phys. Ser. B. 1985. V. 38. P. 93.
95. Попов В. К.//УФН. 1985. Т. 147. С. 587.
96. Архипкин В. Г., Попов А. К. Препринты ИФ СО АН СССР № 300—302. — Красноярск, 1984.
97. Слабко В. В., Попов А. К., Лукиных В. Ф.//Письма ЖТФ. 1977. Т. 3. С. 1263.
98. McIlrath T. J.//¹⁹. — P. 9.
99. Armstrong J. A., Wynne J. J.//Phys. Rev. Lett. 1974. V. 39. P. 1483.
100. Provotorov A. S. et al.//J. Chem. Phys. 1977. V. 68. P. 5393.
101. Filsth S. V., Wallenstein R., Zacharias H.//Opt. Commun. 1977. V. 23. P. 231; Phys. Rev. Lett. 1977. V. 39. P. 1138.
102. Vidal C. R.//¹⁹. — P. 431.
Klorotek P., Vidal C. R.//J. Opt. Soc. Am. 1985. V. 2. P. Can. J. Phys. 1986.
103. Wallenstein R.//Opt. Commun. 1980. V. 33. P. 119.
104. Marinero E. E. et al.//Chem. Phys. Lett. 1983. V. 95. P. 486.
105. Srinivasan T. et al.//IEEE J. Quantum Electron. 1983. V. QE-19. P. 1270.
106. Зайдель А. Н. Атомно-флуоресцентный анализ. — М.: Наука, 1980.
107. Mahon R., Yiu Y. M.//Opt. Lett. 1980. V. 5. P. 279.
108. Zacharias H. et al.//Opt. Commun. 1980. V. 35. P. 185; 1981. V. 37. P. 15.
Rottke H. et al.//¹⁹.
Rottke H., Welge K. H.//Preprint. — FRG, 1982.
109. Wallace S. C., Innes K. K.//J. Chem. Phys. 1980. V. 72. P. 4805.
110. Драбович К. Н., Дубовик А. Н., Суровегин А. А.//Изв. АН СССР. Сер. физ. 1978. Т. 42. С. 2580.
Драбович К. Н. и др.//Ibidem. 1982. Т. 46. С. 1637.
111. Геллер Ю. И., Тимченко Е. В.//Опт. и спектр. 1984. Т. 57. С. 701.
112. Jain K. et al.//J. Res. and Dev. 1982. V. 26. P. 151.
113. Rhodes C. K.//Laser Interaction and Related Phenomena. — New York: Plenum Press, 1984. — V. 6. P. 87.
114. Smiley V. N.//Adv. Electron. and Elect. Phys. 1981. V. 56. P. 1.
115. Djen N., Burnham R.//Appl. Phys. Lett. 1977. V. 30. P. 473.
116. Brosnan S. J. et al.//Opt. Lett. 1982. V. 7. P. 154.
117. Loree T. et al.//EIII J. Quantum Electron. 1979. V. QE-15. P. 337.
118. Komine H. et al.//Appl. Phys. Lett. 1982. V. 40. P. 551.
119. Murray J. R. et al.//IEEE J. Quantum Electron. 1979. V. QE-15. P. 342.
120. Cotter D., Hanna D. C.//Opt. and Quantum Electron. 1977. V. 9. P. 509.
121. Cotter D., Hanna D. C., Wyatt R.//Opt. Commun., 1976. V. 16. P. 256.
122. Kung R. T. V., Itzkan I.//Appl. Phys. Lett. 1976. V. 29. P. 780.
123. Grischkowski D. R., Sorokin P. P., Lankard J. R.//Opt. Commun. 1976. V. 18. P. 205.

124. Sorokin P. P., Lankard J. R.//IEEE J. Quantum Electron. 1973. V. QE-9. P. 227.
125. Wyatt R., Cotter D.//Opt. Commun. 1980. V. 32. P. 481.
126. Sorokin P. P. et al.//Laser Spectroscopy/Eds R. C. Brewer. A. Mooradian. — New York: Press Plenum, 1974. — P. 103.
127. Trutna W. R., Byer R. L.//Appl. Opt. 1980. V. 19. P. 301.
Berry A. et al.//Opt. Comm. 1982. V. 43. P. 229.
128. De Martino, Frey R., Pradere F.//IEEE J. Quantum Electron. 1980. V. QE-16. P. 1184.
129. Brosnan S. J. et al.//Appl. Phys. Lett. 1977. V. 30. P. 330.
130. Болотских Л. Т., Попов А. К.//Автоматизация. 1978. № 6. С. 61.
131. Bruesck S. R., Kildal H.//Appl. Phys. Lett. 1978. V. 33. P. 928.
132. Ахманов С. А. и др.//Письма ЖТФ. 1979. Т. 5. С. 1504.
133. May A. D. et al.//Can. J. Phys. 1970. V. 49. P. 2331.
134. Bruesck S. R., Kildal H.//Laser and Its Applications. — Berlin; Heidelberg, New York; Springer-Verlag, 1981. — P. 147.
135. Chung K. M. et al.//IEEE J. Quantum Electron. 1979. V. QE-15. P. 874.
Алиппиев С. С. и др.//Кр. сообщ. физ., ФИАН СССР. 1982. № 2. С. 3.
Варакин В. Н., Гордиенко В. М.//КЭ. 1982. Т. 9. С. 1941.
136. Воронин Э. С., Стрижевский В. Л.//УФН. 1979. Т. 127. С. 99.
137. а) Комаров С. А. и др.//КЭ, 1980. Т. 7. С. 2485.
б) Архипкин В. Г., Попов А. К.//Письма ЖТФ. 1981. Т. 7. С. 414.
138. Kiyashko V. A. et al.//Appl. Phys. Ser. B. 1983. V. 30. P. 157.
139. Krishnan K. S., Ostrem J. S., Stappaerts E. A.//Opt. Engng. 1978. V. 17. P. 108.
140. Falk J.//Laser Focus. 1979. V. 15. P. 73.
141. Красников В. В. и др.//КЭ. 1983. Т. 10. С. 1502.
142. Lantz W., Koidl P.//Appl. Phys. Lett. 1977. V. 31. P. 99.
143. Зельдович Б. Я., Пилипецкий Н. Ф., Шкунов В. В. Обращение волнового фронта. — М.: Наука, 1985.
144. Квантовая электроника: Библиогр. указатель. — Минск ИФ АН БССР. — 1986.
145. Bloom D. M. et al.//Opt. Lett. 1978. V. 3. P. 58.
146. Lind R. C., Steel D. G.//Ibidem. 1981. V. 6. P. 554.
147. Александров К. С., Болотских Л. Т., Попов А. К. и др.//ДАН СССР. 1986. Т. 286. С. 610.
148. Hilbig R., Wallenstein R.//Appl. Opt. 1982. V. 21. P. 913.
149. Kung A. H.//Appl. Phys. Lett. 1974. V. 25. P. 653.
150. Hilbig R., Wallenstein R.//IEEE J. Quantum Electron. 1981. V. QE-17. P. 1566.
151. Cotter D.//Opt. Commun. 1979. V. 31. P. 391.
152. Wallenstein R.//Ibidem. 1980. V. 33. P. 119.
153. Langer H., Puell H., Röhr H.//Ibidem. 1980. V. 34. P. 137.
154. Mahon R., McIlrath T. J., Koorman D. W.//Appl. Phys. Lett. 1978. V. 33. P. 305.
155. Mahon R., Yiu Y. M.//Opt. Lett. 1980. V. 5. P. 279.
156. Батище С. А., Бураков В. С., Гладущак В. И. и др.//Письма ЖТФ. 1986. Т. 8. С. 1375.
157. Ганеев Р. А., Кулагин И. А., Усманов Т. и др.//КЭ. 1982. Т. 9. С. 2508.
158. Cotter D.//Opt. Lett. 1979. V. 4. P. 134.
159. Zapka W., Cotter D., Brackmann U.//Opt. Commun. 1982. V. 36. P. 79.
160. Reintjes J.//Opt. Lett. 1979. V. 4. P. 242; 1980. V. 5. P. 342.
161. Трошин Б. И., Черненко А. А., Чеботаев В. П.//ЖТФ. 1982. Т. 12. С. 2422.
162. Hilbig R., Wallenstein R.//Opt. Commun. 1983. V. 44. P. 283.
163. Marinero E. E., Rettner Ch. T., Zare R. N. et al.//Chem. Phys. Lett. 1983. V. 95. P. 486.
164. Harris S. E., Young J. F., Kung A. H. et al.//Laser Applications in Optics and Spectroscopy. — Addison Wesley, Mass., 1975. — V. 2. P. 181.
165. Hilbig R., Lago A., Wallenstein R.//Opt. Commun. 1984. V. 49. P. 297.
166. Pummer H., Strinivasan T., Egger H. et al.//Opt. Lett. 1982. V. 7. P. 93.
167. Hilbig R., Wallenstein R.//IEEE J. Quantum Electron. 1983. V. QE-19. P. 194.
168. Hager J., Wallace S. C.//Chem. Phys. Lett. 1982. V. 90. P. 472.
169. Ferguson A. I., Arthurs E. G.//Phys. Lett. Ser. A. 1976. V. 58. P. 298.
170. Taylor J. R.//Opt. Commun. 1976. V. 18. P. 504.
171. Royt T. R., Chi H. Lee//Appl. Phys. Lett. 1977. V. 30. P. 332.

172. Hodgson R. T., Sorokin P. P., Wynne J. J.//Phys. Rev. Lett. 1974. V. 20. P. 1183.
Sorokin P. P., Wynne J. J., Armstrong J. A. et al.//Ann. N.Y. Acad. Sci. 1976. V. 267. P. 30.
173. Scheingraber H., Puel H., Vidal C. R.//Phys. Rev. Ser. A. 1978. V. 18. P. 1585.
174. Bokor J., Freeman R. R., Panock R. L. et al.//Opt. Lett. 1981. V. 6. P. 182.
175. Брэдли Д. Дж.//Сверхкороткие световые импульсы. — М.: Мир, 1981. — С. 35.
176. Freeman R. R., Bjorklund G. C., Economou N. P. et al.//Appl. Phys. Lett. 1978. V. 33. P. 731.
177. Zdasiuk G. A. M. Sci. Thesis. — University of Toronto, 1975.
178. Bjorklund G. C., Bjorkholm J. E., Freeman R. R. et al.//Appl. Phys. Lett. 1977. V. 31. P. 330.
179. Wallace S. C., Zdasiuk G.//Ibidem. 1976. V. 28. P. 449.
180. Hutchinson M. N. R., Thomas R. J.//IEEE J. Quantum Electron. 1983. V. QE-19. P. 1823.
181. Heinrich J., Hollenberg K., Behmenburg W.//Appl. Phys. Ser. B. 1984. V. 33. P. 225.
182. Innes K. K., Stoicheff B. P., Wallace S. C.//Appl. Phys. Lett. 1976. V. 29. P. 715.
183. Junginger H., Puell H. P., Scheingraber H. et al.//IEEE J. Quantum Electron. 1980. V. QE-16. P. 1132; 1981. V. QE-17. P. 557.
184. Timmerman A., Wallenstein R.//Opt. Lett. 1983. V. 8. P. 517.
185. Vallee F., Rougemont F. D. E., Lukasik J.//IEEE J. Quantum Electron. 1983. V. QE-19. P. 1332.
186. Jamroz W., Labocque P. E., Stoicheff B. P.//Opt. Lett. 1982. V. 12. P. 617.
187. McKee T. J., Stoicheff B. P., Wallace S. C.//Ibidem. 1978. V. 3. P. 207.
188. Miyazaki K., Sakai H., Sato T.//Ibidem. 1984. V. 9. P. 457.
189. Caro R. G., Gostela A., Webb C. E.//Ibidem. 1981. V. 6. P. 464.
190. Mahon R., Tomkins F. S.//IEEE J. Quantum Electron. 1982. V. QE-18. P. 913.
191. Yiu Y. M., Bonin K. D., McIlrath T. J.//Opt. Lett. 1982. V. 7. P. 268.
192. Mahon R., McIlrath T. J., Tomkins F. S. et al.//Ibidem. 1979. V. 4. P. 360.
193. Tomkins F. S., Mahon R.//Opt. Lett. 1982. V. 7. P. 304.
194. Hsu K. S., Kung A. H., Zych L. J. et al.//IEEE J. Quantum Electron. 1976. V. QE-12. P. 60.
195. Dlabal M. L., Reintjes J., Tankersley L.//Proc. of SPIE (Int. Soc. Opt. Eng.). 1984. V. 476. P. 65.
196. Vallee F. et al.//Opt. Commun. 1982. V. 42. P. 148. V. 43. P. 287.
197. Трошин Б. И., Чеботаев В. П., Черненко А. А.//Письма ЖЭТФ. 1978.
198. Freeman R. R., Jopson R. M., Bokor J.//¹⁹. P. 19.
199. Slabko V. V., Попов А. К., Lukinykh V. F.//Appl. Phys. 1978. V. 15. P. 239.
200. Egger H., Hawkins R. T., Bokor J. et al.//Opt. Lett. 1980. V. 5. P. 282.
201. Bradley D. J., Hutchinson M. H. R., Lind C. C.//Tunable Lasers and Applications. — Berlin; Heidelberg; New York: Springer-Verlag, 1976. — P. 40.
202. Metchkov D. I., Mitev V. M., Pavlov L. I. et al.//Opt. Commun. 1977. V. 21. P. 391.
Doitcheva V. L., Mitev V. M., Pavlov L. I. et al.//Opt. and Quantum Electron. 1978. V. 10. P. 131.
203. Mitev V. M., Pavlov L. I., Stamenov K. K.//J. Phys. Ser. B. 1978. V. 11. P. 819.
204. Grozdeva M. G., Metchkov D. I., Mitev V. M. et al.//Opt. Commun. 1977. V. 23. P. 77.
205. She C. Y., Reintjes J.//Appl. Phys. Lett. 1977. V. 31. P. 95.
206. Reintjes J., Tankersley L. L., Christensen R.//Opt. Commun. 1981. V. 39. P. 334.
207. Reintjes J., She C. Y., Eckardt R. C. et al.//Appl. Phys. Lett. 1977. V. 30. P. 480.
208. Овечко В. С., Стрижевский В. А.//ЖТФ. 1982. Т. 52. С. 144.
209. Александров А. В.//КЭ. 1984. Т. 11. С. 1679.
210. Архипкин В. Г., Попов А. К., Тимофеев В. П.//Письма ЖЭТФ. 1978. Т. 27. С. 3.
211. Красников В. В., Соломатин В. С.//КЭ. 1982. Т. 9. С. 1251.
212. Соломатин В. С., Мелешко А. И., Красников В. В.//КЭ. 1979. Т. 6. С. 1528.

- 213. Архипкин В. Г., Макаров Н. П., Попов А. К. и др. // КЭ. 1981. Т. 8. С. 643.
- 214. Ахманов С. А., Вальшин А. И., Гордиенко В. М. и др. // КЭ. 1984. Т. 11. С. 1897; 1986. Т. 13. С. 1922.
- 215. Ахманов С. А., Гордиенко В. М., Джиджоев М. С. и др. // КЭ. 1986. Т. 13. С. 1957.
- 216. Rhodes S. K. // ¹⁹. — Р. 112.
- 217. Джиджоев М. С., Платоненко В. Т., Чугунов А. В. // КЭ. 1985. Т. 12. С. 2200.
- 218. Делоне Н. Б., Крайнов В. П. Атом в сильном световом поле. — М.: Атомиздат, 1978.
- 219. Архипкин В. Г., Геллер Ю. И. // КЭ. 1983. Т. 10. С. 1243.
- 220. Райзер Ю. П. Лазерная искра и распространение разрядов. — М.: Наука, 1974.
- 221. Красников В. В., Пшеничников М. С., Соломатин В. С. // Письма ЖЭТФ. 1986. Т. 43. С. 115.
- 222. Корниенко Н. Б. // КЭ. 1985. Т. 12. С. 1592.
- 223. Попов А. К. Введение в нелинейную спектроскопию. — Новосибирск: Наука, 1983.
- 224. Архипкин В. Г., Кияшко В. А., Попов А. К. и др. // КЭ. 1980. Т. 7. С. 181.