

ИЗ ТЕКУЩЕЙ ЛИТЕРАТУРЫ

535.338.4

**КВАЗИРЕЗОНАНСНЫЕ НЕЛИНЕЙНЫЕ ОПТИЧЕСКИЕ  
ПРОЦЕССЫ С УЧАСТИЕМ ВОЗБУЖДЕННЫХ  
И ИОНИЗИРОВАННЫХ АТОМОВ**

*C. M. Гладков, N. I. Коротеев*

(Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова)

СОДЕРЖАНИЕ

|   |     |
|---|-----|
| 1. Введение . . . . .   | 105 |
| 2. Квазирезонанс в рассеянии света: простейшие модели . . . . .   | 107 |
| 2.1. Понижение собственных частот при возбуждении. 2.2. Классическая одномерная модель. 2.3. Простейшая квантовая картина.  |     |
| 3. Рэлеевское и спонтанное комбинационное рассеяние на возбужденных атомах . . . . .  | 110 |
| 3.1. Диэлектрическая проницаемость возбужденной атомарной и ионизированной сред. 3.2. Вычисление сечений резонансного рэлеевского и спонтанного комбинационного рассеяния. 3.3. Спонтанное комбинационное рассеяние на состояниях тонкой структуры атомов.  |     |
| 4. Нелинейные оптические восприимчивости возбужденных атомов и ионов . . . . .  | 115 |
| 4.1. Новый этап в изучении оптических нелинейностей возбужденных сред. 4.2. Квазирезонансное возрастание нелинейных восприимчивостей. 4.3. Аномалии поляризации КАРС-процессов, стартующих из возбужденных состояний. 4.4. Активная спектроскопия КР на состояниях тонкой структуры атомов. 4.5. Активная спектроскопия гиперкомбинационного рассеяния на возбужденных атомах и ионах. 4.6. Новые возможности генерации оптических гармоник в возбужденных атомарных и ионизированных средах. |     |
| 5. Когерентное нелинейное рассеяние и умножение частоты лазерного излучения в низкотемпературной плазме . . . . .   | 127 |
| 5.1. Новая постановка задачи. 5.2. Первые эксперименты. 5.3. Модель: классическая столкновительная плазма. 5.4. Недостаточность простых моделей.  |     |
| 6. Когерентные нерезонансные нелинейные процессы рассеяния и умножения частоты лазерного излучения в экстремально сильных световых полях . . . . .  | 132 |
| 6.1. Сверхсильные оптические поля: введение. 6.2. Классическая одномерная модель. 6.3. Столкновительная плазма в сильном поле. 6.4. Квантовая модель: водородоподобный атом. 6.5. Фазовый синхронизм в сильных полях.   |     |
| 7. Заключение . . . . .   | 141 |
| Список литературы . . . . .   | 142 |

**1. Введение.** Атомы — традиционные объекты нелинейной оптики.

Резонансные нелинейно-оптические процессы с их участием широко изучались под углом зрения генерации гармоник и других преобразований частот оптических излучений [1], а также в спектроскопических целях — для измерения сил осцилляторов [2] и других атомных констант, и т. п. В этих исследованиях использовались, как правило, невозбужденные атомы.

В настоящее время обозначился интерес к исследованию нелинейно-оптических свойств возбужденных атомов и ионов. Этот интерес поддерживается, с одной стороны, потребностями спектроскопии плазмы, с другой — успехами в направлении генерации и использовании экстремально сильных световых полей (пико- и фемтосекундных импульсов большой мощности [3—6]). Атомы, находящиеся в таких полях, возбуждаются и многократно ионизируются; тем самым существенно изменя-

ются их первоначальные оптические свойства. Оптические процессы с участием атомов в возбужденных состояниях имеют ряд интересных и практически важных особенностей, обсуждение которых мы и поставим себе целью в настоящем обзоре. Мы называем такие процессы квази-резонансными, поскольку, как оказывается, даже при отсутствии точных резонансов частот излучения с частотами электронных переходов их эффективность достаточно велика, а поляризационные свойства рассеянного излучения оказываются аномальными.

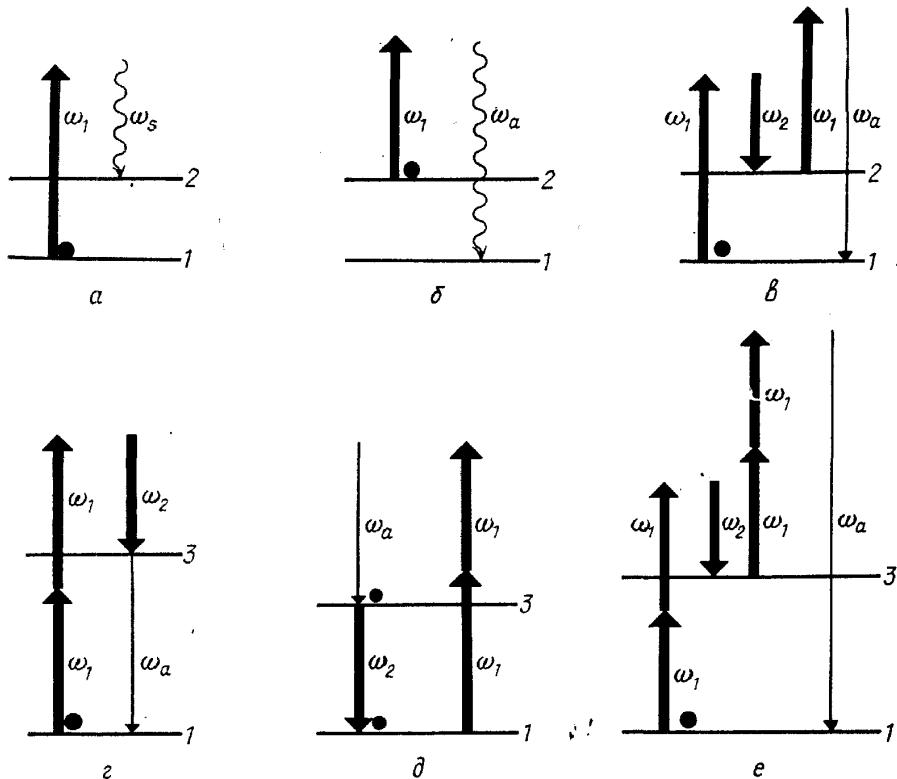


Рис. 1. Спектроскопические схемы обсуждаемых процессов рассеяния. Волнистые стрелки соответствуют некогерентному излучению. *а* — Стоксово спонтанное комбинационное рассеяние (СКР). *б* — Антистоксово СКР. *в* — Активная спектроскопия комбинационного рассеяния (АСКР). *г, д* — Вырожденная активная спектроскопия гиперкомбинационного рассеяния (АСГКР). *е* — Невырожденная АСГКР. Кружками отмечены заселенные состояния

Изменяя степень возбуждения среды, экспериментатор получает возможность «перестраивать» ее оптические свойства и подгонять их к потребностям своего эксперимента. Такой подход оказывается очень ценным при решении практических задач.

В настоящем обзоре рассматриваются характерные черты когерентных нелинейных процессов рассеяния в достаточно сильно возбужденных газах, т. е. в газах, находящихся в атомарном или ионизированном состоянии. Разумеется, из-за очень тесной связи когерентных нелинейных процессов рассеяния со своими спонтанными аналогами [7], мы не можем не затронуть в своем обзоре и процессы спонтанного (некогерентного) рассеяния света в газе возбужденных атомов и ионов.

Поскольку в настоящем обзоре рассматриваются разнообразные процессы рассеяния света, представляется полезным дать их классификацию и связать с ними условные схематические изображения (рис. 1) (см. [7]). При спонтанном комбинационном рассеянии света (СКР) кванты излучения накачки смешаются по частоте на частоту комбинационно-активного перехода (см. рис. 1, *а*, *б*); кванты рассеянного излучения некогерентны. Рэлеевское рассеяние (РР) соответствует случаю,

когда состояния 1 и 2 совпадают. На рис. 1, в показана схема активной спектроскопии комбинационного рассеяния света (ACKP), когерентного аналога СКР (соответствующая англоязычная аббревиатура CARS — Coherent Anti-Stokes Raman Spectroscopy). Здесь используется двухчастотная накачка (частоты  $\omega_1, \omega_2$ ); рассеянное антистоксово излучение когерентно и весьма интенсивно по сравнению с сигналом рассеяния в СКР. На рис. 1 также приведены схемы активной спектроскопии гиперкомбинационного рассеяния (ACГKP): четырехфотонной (см. рис. г, д) и шестифотонной (см. рис. е). ACГKP — также когерентный процесс. Русскоязычная аббревиатура КАРС (когерентное антистоксово рассеяние света) объединяет ACKP и четырехфотонный вариант ACГKP. Ниже смысл этих терминов будет раскрыт более подробно.

Материал обзора распределен следующим образом.

В разделе 2 вводится понятие квазирезонанса при взаимодействии оптического излучения с газами на примере простейших моделей среды — ансамбля невзаимодействующих классических или квантовых нелинейных осцилляторов.

В разделе 3 рассматриваются рэлеевское и спонтанное комбинационное рассеяния в атомарных средах. С помощью простых оценок показывается, что сечение этих процессов при старте с возбужденных состояний значительно возрастает. Обсуждаются результаты экспериментов.

Раздел 4 посвящен нелинейно-оптическим восприимчивостям возбужденных атомов и ионов. Приводятся результаты оценок кубической восприимчивости возбужденного газа, состоящего из атомов водорода. Обсуждается переход от нерезонансного к квазирезонансному режиму взаимодействия света и среды при ее возбуждении и связанное с этим возрастание нелинейно-оптических восприимчивостей. Рассматриваются результаты экспериментов по когерентному четырехфотонному рассеянию в возбужденных атомарных и ионизированных средах: активная спектроскопия комбинационного и гиперкомбинационного рассеяния, генерация третьей гармоники.

Раздел 5 посвящен квазирезонансным когерентным нелинейно-оптическим процессам в низкотемпературной столкновительной, достаточно разреженной газовой плазме. В отличие от экспериментов по лазерному термоядерному синтезу в этом случае плазменные коллективные нелинейности не играют решающей роли. Даются простые модели, излагаются экспериментальные результаты.

Наконец, в разделе 6 проанализированы особенности генерации гармоник экстремально сильных световых полей. Рассмотрены и систематизированы результаты экспериментов с субпикосекундными лазерными импульсами, предложены несколько простых моделей для объяснения наблюдаемых результатов. В этих моделях взаимодействие оптического электрона со световым полем считается более сильным, чем с собственным ионом. Обсуждаются вопросы фазового согласования в сильных полях.

## 2. Квазирезонанс в рассеянии света: простейшие модели.

**2.1. Понижение собственных частот при возбуждении.** Прежде чем приступить к обсуждению нелинейно-оптических свойств реальных высоковозбужденных атомов и ионов, мы рассмотрим две простейшие модели возбужденной газовой среды и покажем на их примере, что многие специфические свойства являются общими для реальных нелинейных систем, как классических, так и квантовых. Эта общность определяется свойством многих реальных физических систем, имеющих внутренние степени свободы, становиться более «мягкими» при возбуждении, то есть понижать собственную резонансную частоту при

приближении к границе распада. При возбуждении первоначально высокочастотной системы она приходит в квазирезонанс с низкочастотным внешним возмущением, вследствие чего значительно возрастают оптические линейные и нелинейные восприимчивости среды, образованной из таких систем.

**2.2. Классическая одномерная модель.** Классические модели среды используются в нелинейной оптике с самого начала ее развития [11, 12] с целью установления общих закономерностей нелинейного взаимодействия света со средой. В первых работах, однако, рассматривались лишь простейшие квадратичные и кубические нелинейности, которые априори могут применяться лишь при малых возмущениях; с ростом степени возмущения системы следует привлекать к рассмотрению более сложные нелинейности, которые могут описать ее распад [9, 10].

Рассмотрим две классические частицы, связанные некоторой нелинейной силой. Для того чтобы обеспечить возможность гармонических колебаний при малых амплитудах, мы потребуем, чтобы возвращающая сила была «упругой», т. е. пропорциональной  $-x$  ( $x$  — координата, отсчитываемая от положения равновесия). Пусть внешнее поле имеет вид  $E_0 \sin(\omega t)$  (пространственная фаза здесь несущественна). Когда отклик системы с учетом ее предварительного возбуждения становится достаточно большим, реальная система может распасться. Это означает, что при  $|x| \rightarrow \infty$  возвращающая сила должна стремиться к нулю. Достаточно хорошей моделью системы, связанной силами типа кулоновской, может служить одномерный осциллятор с возвращающей силой вида

$$F(x) = \frac{-x}{1 + (x/a)^n},$$

где  $a$  есть константа; при  $n=3$  и  $x \gg a$  асимптотика  $F(x)$  соответствует кулоновскому взаимодействию двух зарядов;  $n=4$  при  $x \gg a$  соответствует взаимодействию заряда с диполем и т. п.

Соответствующий потенциал для  $n=4$  имеет вид

$$V(x) = -\frac{a^2}{2} \left( \operatorname{arctg} \frac{x^2}{a^2} - \frac{\pi}{2} \right).$$

Очевидно, что параметр « $a$ » имеет смысл полуширины потенциальной ямы. Уравнение для колебаний такой системы под воздействием внешнего поля амплитудой  $E$  имеет вид:

$$x'' = -\frac{\omega_0^2 x}{1 + (x/a)^4} + \frac{eE_0}{m} \sin(\omega t), \quad (1)$$

где каждый штрих обозначает производную по времени,  $m$  — приведенная масса системы,  $e$  — заряд,  $\omega_0$  — частота свободных колебаний с малой амплитудой,  $\omega$  — частота поля.

Рассмотрим сначала случай слабых вынужденных колебаний, совершающихся на фоне достаточно сильных свободных начальных колебаний системы  $x_0(t)$ . Такое начальное возбуждение (с дальнейшим усреднением по начальной фазе) является аналогом заселения дискретных энергетических состояний в квантовом случае. Предположим также, что система является достаточно «жесткой», а внешнее поле — низкочастотным (ситуация, характерная, например, для рассеяния излучения Nd: YAG-лазера на атомах водорода). Таким образом, считаем, что выполняются следующие условия:

$$\omega_0 \gg \omega,$$

$$\begin{aligned} x_0 &\gg x_E, \quad x_0 \gg a, \\ E_0 &\ll \frac{m\omega^2 x_0}{e}, \end{aligned} \tag{2}$$

где  $x_E(t)$  — вынужденное решение уравнения (1), а  $x_0$  и  $x_E$  — амплитуды колебаний.

В первом приближении, пользуясь разложением в ряд Тейлора, из (1) имеем

$$x_E^{(1)} = \frac{-\omega_0^2 \{1 - 3[(x_0(t) + l)/a]^4\} x_E^{(1)}}{1 + [(x_0(t) + l)/a]^4} + \frac{eE_0}{m} \sin(\omega t), \tag{3}$$

здесь, как мы указали выше,  $x_0(t)$  — периодическое «свободное» решение достаточно большой амплитуды, определяемое начальными условиями, и мы ввели постоянное смещение  $l \gg x_0$  для того, чтобы обеспечить возможность разложения в ряд в любой момент времени. В дальнейшем это смещение в формулах опускается, но подразумевается. Усредняя это выражение по временному интервалу  $T$  ( $1/\omega_0 \ll T \ll 1/\omega$ ), нетрудно видеть, что уравнение (3) приобретает вид уравнения линейного гармонического осциллятора с собственной частотой  $\omega'$ , значительно меньшей частоты малых колебаний:

$$\begin{aligned} x_E'' &= -\omega'^2 x_E + \frac{eE_0}{m} \sin(\omega t), \\ \omega' &= \omega_0 \sqrt{\frac{1}{T} \int_0^T \frac{1 - 3(x_0(t)/a)^4}{1 + (x_0(t)/a)^4} dt} \ll \omega_0. \end{aligned} \tag{4}$$

Очевидно, комплексное решение уравнения (4) имеет следующий вид:

$$x_E^{(1)} \sim \frac{1}{\omega'^2 - \omega^2 + i\gamma}.$$

Здесь мы ввели феноменологическую константу затухания осциллятора  $\gamma$ . Процедура получения более высоких приближений очевидна. Таким образом, нелинейная система, которая достаточно сильно возбуждена, может оказаться квазирезонансно более восприимчивой к внешнему низкочастотному возмущению при  $\omega \approx \omega' \ll \omega_0$ ; например, такая ситуация имеет место в системе, близкой к фазовому переходу, когда реализуется неустойчивость к малым возмущениям. Оптический пример — ридберговский атом.

Среда, образованная из таких классических нелинейных невзаимодействующих осцилляторов, при условии достижения квазирезонансного режима, демонстрирует повышенную эффективность линейного и нелинейного рассеяния света (условия фазового синхронизма обсуждаются в разделе 6).

**2.3. Простейшая квантовая картина.** Рассмотрим газовую среду, состоящую из квантовых частиц с дискретными энергетическими уровнями, характеризуемыми главным квантовым числом  $n$ . Предположим, что вследствие тех или иных причин (из-за нагрева, электронного удара и т. д.) некоторые из этих состояний оказались заселенными. В результате (рис.2) линейные и нелинейные оптические процессы будут «стартовать» как из основного, так и из возбужденных состояний. Вследствие характерного для атомов и ионов быстрого сгущения возбужденных уровней по мере продвижения к ионизационному пределу, частоты переходов между даже низколежащими соседними возбужденными состояниями оказываются в видимом или ближнем инфракрасном диапазонах, то есть в квазирезонансе с частотами наиболее распространенных

ненных источников лазерного излучения. Кроме того, с ростом главного числа  $n$  сила осциллятора в переходах между соседними состояниями ( $\Delta n=1$ ) возрастает как  $n^4$  (до тех пор, пока не станет существенным взаимодействие между частицами среды: см. раздел 3). Эти факторы, вместе взятые, приводят к квазирезонансному возрастанию оптических характеристик атома: поляризуемости (растет как  $n^6$ ), диэлектриче-

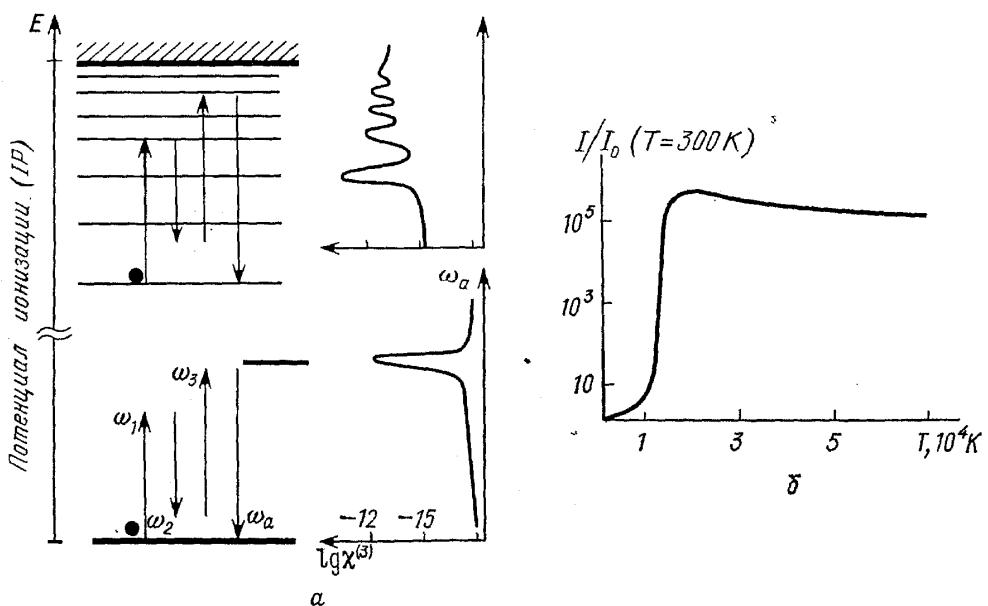


Рис. 2. Возрастание оптических восприимчивостей атомарного газа при его возбуждении на примере кубической восприимчивости  $\chi^{(3)}$  (см. [15]). а — Схема, иллюстрирующая установление режима квазирезонанса между частотами переходов среды и внешнего излучения;  $E$  — энергия состояния. б — Зависимость интенсивности  $I$  первонациально нерезонансного когерентного антистоксова рассеяния модельного газа атомов водорода от температуры (расчет [15]),  $I_0$  — интенсивность рассеяния при температуре  $T=300$  К. Кружками отмечены заселенные состояния

ской проницаемости всей атомарной среды, нелинейных восприимчивостей и т. д. (см. подробнее раздел 4 и работы [13—15]). По мнению авторов работ [13, 14] это может приводить к самофокусировке излучения.

### 3. Рэлеевское и спонтанное комбинационное рассеяние на возбужденных атомах.

**3.1.** Диэлектрическая проницаемость возбужденной атомарной и ионизированной сред. Прежде чем оценивать сечения рэлеевского и спонтанного комбинационного рассеяний в возбужденных атомарных средах, изучим поведение самой простой оптической характеристики среды — диэлектрической проницаемости  $\epsilon(\omega)$ . Для квантовой системы с дискретными уровнями энергии она может быть представлена в виде:

$$\epsilon(\omega) = 1 + \frac{2N}{3\hbar} \sum_n \sum_i \frac{\rho_n \omega_{in}^2 |D_{ni}|^2}{\omega_{in}^2 - \omega^2} = 1 + \frac{4\pi e^2 N}{m} \sum_n \sum_i \frac{\rho_n f_{ni}}{\omega_{in}^2 - \omega^2}, \quad (5)$$

где  $N$  — плотность числа частиц,  $f_{ni}$  и  $D_{ni}$  — соответственно сила осциллятора и матричный элемент дипольного момента на переходе. Суммирование осуществляется по всем дискретным состояниям с главным квантовым числом  $n$ . Заселенность  $\rho_n$  возбужденных состояний для наших

целей можно считать больцмановской:

$$\varrho_n = \frac{2n^2 g_n e^{-E_n/kT}}{\sum_n 2n^2 g_n e^{-E_n/kT}}; \quad (6)$$

$kT$  — температура среды,  $E_n$  — энергия состояния,  $g_n$  — факторы коррекции статвеса состояния, для свободных атомов все они равны 1. В случае, когда  $\omega \ll \omega_{12}$ , при нагреве газа можно ожидать, что  $\varepsilon(\omega)$  должна увеличиваться от 1 до некоторого максимального значения, а затем уменьшаться и становиться меньше 1. В действительности это имеет место только при условии, если отстройка частоты излучения от частоты одного из переходов не превышает нескольких сотен обратных сантиметров. В противном случае возрастание  $\varepsilon(\omega)$  за счет заселения дискретных состояний компенсируется отрицательным вкладом (плазменным) свободных электронов. Для учета этого вклада в правую часть (5) добавляется член (см. [14]):  $-4\pi e^2 N_e/m\omega^2$ , где  $N_e$  — концентрация свободных электронов. При нагреве газ частично ионизируется, и плазменный вклад быстро растет по абсолютной величине. При больших отстройках  $\varepsilon(\omega)$  сразу уменьшается в процессе нагрева. Для подтверждения сказанного можно выполнить простой расчет, в котором на примере газа из атомов водорода  $\varepsilon(\omega)$  вычисляется с учетом теплового заселения дискретных состояний и вклада свободных электронов; доля ионизированных атомов оценивается по формуле Саха:

$$\frac{N_e^2}{N_a} = 4 \cdot \frac{2\pi m T}{\hbar^2} \frac{e^{-I/kT}}{Z}, \quad (7)$$

где  $N_{a,e}$  — концентрации соответственно атомов и электронов (они связаны условием  $N_a + N_e = N_0$ , в наших оценках принято  $N_0 = 2,7 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$ ). Благодаря такой связи уравнение (7) разрешается относительно  $N_e$ .  $I$  — потенциал ионизации атома водорода,  $Z$  — статистическая сумма атома:

$$Z = \sum_n 2n^2 g_n e^{-E_n/kT}. \quad (8)$$

Факторы  $g_n$  зависят от концентрации свободных электронов и лежат в пределах 1 ... 0 в зависимости от  $N_e$ ; эта зависимость отражает тот факт, что плазменные микрополя «растворяют» высоколежащие дискретные состояния, и при  $N_e$  порядка  $10^{18} \text{ см}^{-3}$  в атоме водорода «выживают» лишь нижние 3—4 состояния. Методика расчета факторов  $g_n$  приведена в работе [16]; в наших оценках для аппроксимации распределения напряженности микрополей использовалась функция Хольцмарка (об этом и других распределениях микрополя см. [17]). Для наших целей было достаточно учитывать 15 нижних состояний атома  $H$ ; увеличение их числа не приводило к сколько-нибудь заметному изменению результата. Эта же методика оценки факторов  $g_n$  применялась и при расчете нелинейных восприимчивостей.

Вследствие взаимозависимости уравнений (7) и (8) их разрешение осуществляется численным методом, последовательными приближениями. Если для первого приближения выбрать все  $g_n$  равными 1, то обычно требуются 3—5 итераций. После вычисления взаимосогласованных значений  $N_e$  и  $g_n$  по формуле (5) с учетом плазменного вклада можно найти  $\varepsilon(\omega)$ . Результаты расчетов зависимости  $\varepsilon(\omega)$  от температуры газа приведены на рис. 3. Можно видеть, что эти зависимости разные для различных частот излучений накачки: для  $\omega = 15000 \text{ см}^{-1}$  величина  $\varepsilon - 1$  может значительно возрасти, а для  $\omega = 17000 \text{ см}^{-1}$  имеет место монетой-

ное спадание. Таким образом, можно заключить, что на частотной шкале имеются квазирезонансные зоны шириной в несколько сотен обратных сантиметров или более, границы которых зависят от соотношения частот излучения и переходов среды. При попадании в эти зоны и нагреве среды реализуется квазирезонанс.

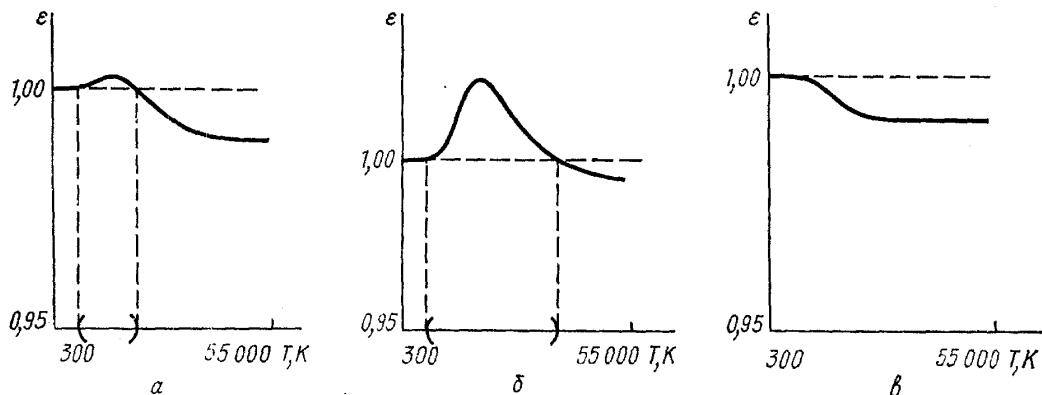


Рис. 3. Зависимость диэлектрической проницаемости газа из атомов водорода на разных частотах от температуры (модельный расчет).  $\omega$  ( $\text{см}^{-1}$ ) = 14 000 (а), 15 000 (б) и 17 000 (в). В случае рис. в квазирезонанс не реализуется ни при каких температурах. Скобками на горизонтальной оси отмечены температурные границы зоны квазирезонанса падающего излучения с переходом  $n=2 \rightarrow n=3$

По мере возбуждения атомов растет не только их линейная поляризуемость—растут и сечения рэлеевского и спонтанного комбинационного рассеяния света. Однако, несмотря на то, что эти сечения оказываются высокими (они могут превосходить  $10^{-27} \text{ см}^2/\text{ср}$ ; см. ниже), сигнал рассеяния в эксперименте непросто выделить вследствие высокого уровня разнообразных засветок (тормозной или рекомбинационной природы), всегда имеющих место в возбужденных газах. Это создает значительные трудности в эксперименте.

Ниже мы обсудим вопросы вычисления сечения РР и СКР, а также результаты немногочисленных экспериментов в этом направлении.

**3.2. Вычисление сечений резонансного рэлеевского и спонтанного комбинационного рассеяния.** Вычисление сечений оказывается относительно простым при использовании экспериментально измеренных величин сил осцилляторов в переходах между возбужденными состояниями. Такой подход был предложен и опробован в работе [18]. Рассмотрим сначала рэлеевское рассеяние. Пусть процесс рассеяния стартует с состояния, характеризуемого квантовыми числами  $T, J$  (возбужденные состояния обозначим как  $T', J'$ ). В случае  $J=0$  (рассеяние на изотропных частицах) сечение непосредственно может быть выражено через показатель преломления среды  $n$  ( $\epsilon(\omega)=n^2$ ):

$$(\sigma_{12})_{TJ \rightarrow TJ} = \frac{\omega^2}{c^4} \left( \frac{n^2 - 1}{4\pi N} \right)^2 \cos^2 \psi;$$

здесь  $\psi$  — угол между ортами  $\bar{\epsilon}_1$  и  $\bar{\epsilon}_2$ ; первый из них определяет направление вектора поляризации падающего излучения, второй — направление, на которое ищется проекция рассеянного излучения. В случае  $J \neq 0$  выражение для сечения более громоздкое:

$$(\sigma_{12})_{TJ \rightarrow TJ} = \sigma_{zz} \cos^2 \psi + \sigma_{zx} \sin^2 \psi,$$

где

$$\sigma_{zz} = 9(2J+1)\omega^4 \frac{e^2}{mc^2} \sum_M \left[ \sum_{T'J'} \frac{\hat{f}_{TJ,T'J'}}{\omega_{T'J',TJ}^2 - \omega^2} \begin{pmatrix} J' & 1 & J \\ -M & 0 & M \end{pmatrix}^2 \right]^2,$$

$$\sigma_{zx} = \frac{9}{4}(2J+1)\omega^4 \frac{e^2}{mc^2} \sum_M \left\{ \sum_{T'J'} \frac{\hat{f}_{TJ,T'J'}}{\omega_{T'J',TJ}^2 - \omega^2} \times \right. \\ \left. \times \left[ \frac{\begin{pmatrix} J' & 1 & J \\ -M & 0 & M-1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} J' & 1 & J \\ -M & 0 & M \end{pmatrix}}{\omega_{T'J',TJ} - \omega} + \frac{\begin{pmatrix} J' & 1 & J \\ -M+1 & 0 & M-1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} J' & 1 & J \\ -M+1 & 0 & M \end{pmatrix}}{\omega_{T'J',TJ} + \omega} \right]^2 \right\},$$

здесь величины в круглых скобках —  $3J$ -символы. Таким образом, при «старте» с состояния, имеющего момент  $J$ , не равный нулю, возникает деполяризация рассеяния. Недавно этот факт был экспериментально продемонстрирован в работе [19] на примере возбужденных ионов бария.

Для спонтанного комбинационного рассеяния представление сечения рассеяния через силы осцилляторов для случая, когда существенны многие промежуточные состояния, было выполнено в работе [20]; получен следующий результат:

$$(\sigma_{zb})_{TJ \rightarrow T'J'} = \frac{(\omega - \omega_{T'J',TJ})^4 e^4}{\hbar^2 c^4 (2J+1)} \sum_M \left| \sum_{T''J''} \langle T''J'' | D | T'J' \rangle^* \langle T''J'' | D | TJ \rangle \times \right. \\ \left. \times \left[ \frac{\begin{pmatrix} J' & 1 & J'' \\ -M' & q & M \end{pmatrix} \begin{pmatrix} J'' & 1 & J \\ -M & 0 & M \end{pmatrix}}{\omega_{T''J'',TJ} - \omega} + (-1)^q \frac{\begin{pmatrix} J' & 1 & J'' \\ -M' & 0 & M' \end{pmatrix} \begin{pmatrix} J' & 1 & J \\ -M' & q & M \end{pmatrix}}{\omega_{T''J'',T'J'} + \omega} \right] \right|^2,$$

здесь комбинационный переход осуществляется на переходе  $TJ \rightarrow T'J'$ ;  $b=z$  и  $q=0$  для поляризованного рассеяния, и  $b=x$  и  $q=-1$  для деполяризованного. Величины в угловых скобках — это приведенные матричные элементы дипольного момента; они следующим образом выражаются через силы осцилляторов  $\hat{f}$  на соответствующих переходах:

$$\langle T''J'' | D | T'J' \rangle^* \langle T''J'' | D | TJ \rangle = \frac{3\hbar\xi(T''J'')}{m} \left| \frac{2\hat{f}_{TJ,T''J''}\hat{f}_{T'J',T''J''}}{\omega_{T''J'',TJ}\omega_{T''J'',T'J'}} \right|^{1/2}, \quad (9)$$

здесь величины  $\xi$  могут быть равны +1 или -1 в зависимости от типа перехода. Данные по силам осцилляторов имеются в справочной литературе [21, 22]; однако из этих таблиц невозможно определить знаки приведенных матричных элементов, то есть величины  $\xi$ . Их определение возможно с помощью прямого расчета (быть может, недостаточно точного, чтобы дать величину матричного элемента, но способного дать правильный его знак). Подробное обсуждение этой проблемы можно найти в работах [23, 128]. Проверка правильности выбора знаков может быть осуществлена путем сравнения коэффициента деполяризации  $\rho = \sigma_{zx}/\sigma_{zz}$ , полученного из эксперимента, с его расчетной величиной. Такая проверка проводилась для некоторых атомов в работе [20]. В ней же по приведенной выше формуле рассчитаны величины сечений СКР для различных длин волн возбуждения. Так, в случае стоксова рассеяния (старт из основного состояния  ${}^2P_{1/2}$ ) при  $\lambda=6943$  Å для атома индия In  $\sigma_{zz}=0,68 \cdot 10^{-27}$  см $^2$ /ср и  $\rho=0,68$ ; на той же длине волн для таллия Tl  $\sigma_{zz}=5,5 \cdot 10^{-29}$  см $^2$ /ср и  $\rho=0,76$ . Несколько отличающиеся значения получены в случае антостоксова варианта рассеяния (старт из возбуж-

денного состояния  ${}^2P_{3/2}\rangle$ : на той же длине волн для индия имеем  $\sigma_{zz} = 1,6 \cdot 10^{-27}$  см $^2$ /ср и  $\rho = 0,78$ , для таллия  $\sigma_{zz} = 15,9 \cdot 10^{-27}$  см $^2$ /ср и  $\rho = 0,83$ . Таким образом, при старте из возбужденного состояния сечение и деполяризация рассеяния заметно выше. Причем этот рост обусловлен не столько фактором  $\omega^2$ , сколько уменьшением резонансных знаменателей в формуле для сечения. Эту закономерность убедительно продемонстрировали авторы работы [24]. В ней рассчитаны сечения рэлеевского и комбинационного рассеяния при старте с высоколежащих возбужденных состояний атомов неона, аргона, ксенона. Результаты расчетов сведены в следующую таблицу (падающее излучение имеет длину волны  $\lambda = 6943$  Å, линейно поляризовано; табл. I).

Таблица I

| Атом | Начальное состояние      | Конечное состояние | $\sigma_{zz}$ , см $^2$ /ср | $\rho$ | Тип рассеяния  |
|------|--------------------------|--------------------|-----------------------------|--------|----------------|
| Ne   | $2p^6 [0]$<br>(основное) | $2p^6 [0]$         | $1,03 \cdot 10^{-29}$       | 0      | Рэлеевское     |
|      | $1s_2 [1]$               | $1s_2 [1]$         | $2,76 \cdot 10^{-22}$       | 0,381  | »              |
|      | $1s_2 [1]$               | $1s_4 [1]$         | $8,09 \cdot 10^{-23}$       | —      | Комбинационное |
| Ar   | $3p^6 [0]$<br>(основное) | $3p^6 [0]$         | $1,81 \cdot 10^{-28}$       | 0      | Рэлеевское     |
|      | $1s_5 [2]$               | $1s_5 [2]$         | $1,73 \cdot 10^{-24}$       | 0,975  | »              |
|      | $1s_5 [2]$               | $1s_3 [0]$         | $4,42 \cdot 10^{-24}$       | —      | Комбинационное |

Из этой таблицы видно, что при старте с высоколежащих состояний сечение как рэлеевского, так и комбинационного рассеяния значительно больше, чем при старте из основного состояния. Это, в основном, вызвано уменьшением частотных знаменателей в выражениях для сечений вследствие сгущения возбужденных уровней (см. также рис. 2). Рост сечений оказывается столь большим, что при заселении даже малого числа возбужденных состояний интенсивность рассеянного сигнала заметно возрастает. Тем не менее, по упоминавшимся выше причинам, в условиях электроразряда процесс СКР на возбужденных уровнях до сих пор был зарегистрирован лишь в работе [24], причем при специальных условиях, ослабляющих засветки.

Коротко остановимся на оценке вклада непрерывного спектра (связанно-свободных переходов) в сечение. Оказывается, что как для невозбужденных свободных атомов [25], так и для возбужденных [26], его учет дает поправку не более 10% величины сечения. Для атомов в плазме следует использовать теорию, развитую для описания двухфотонных переходов в экранированном кулоновском потенциале (см. работу [27] и ссылки в ней), либо привлекать эмпирические данные по фоторекомбинации.

**3.3. Спонтанное комбинационное рассеяние на состояниях тонкой структуры атомов.** Наиболее подходящими для реализации комбинационного рассеяния на атомах являются переходы между состояниями тонкой структуры основного электронного состояния, возникающей вследствие спин-орбитального взаимодействия. Момент соседних состояний отличается на единицу, причем все состояния спин-орбитального мультиплета имеют одинаковую четность. Переходы с  $|\Delta J| = 1$  являются магнито-дипольными (возможен также квадрупольный вклад); переходы с  $|\Delta J| = 2$  являются чисто квадрупольными. Эти переходы в поглощении или испускании в дипольном приближе-

нии запрещены, поэтому комбинационное рассеяние является наиболее подходящим методом спектроскопии таких переходов.

Для атомов металлов, имеющих низколежащие электронные состояния, процессы рассеяния оказываются квазирезонансными даже при старте из основного состояния. Сечение рассеяния для СКР при этом обычно лежит в пределах  $10^{-27}$ – $10^{-22}$  см<sup>2</sup>/ср, что значительно выше, чем соответствующая величина для молекул (обычно порядка  $10^{-31}$  см<sup>2</sup>/ср). Для атомов, не имеющих низколежащих электронных состояний, связанных с основным состоянием переходами с большой силой осциллятора, сечение достаточно мало: так, для атома фтора на переходе  $^2P_{3/2}$ – $^2P_{1/2}$  сечение оказывается порядка  $2 \cdot 10^{-31}$  см<sup>2</sup>/ср [28].

В настоящее время эксперименты по спонтанному комбинационному рассеянию на атомах уже не воспринимаются как некая экзотика; тем не менее, таких экспериментов пока что выполнено немного [28–36] (порядка десяти), их краткий обзор дан в работе [37]. Большинство из них выполнено в атомарных средах, полученных с помощью термического нагрева. В неравновесных и плазменных средах такие эксперименты не выполнялись вследствие малости рассеянного сигнала на фоне сильных засветок (за исключением уже упоминавшейся работы [24]).

#### **4. Нелинейные оптические восприимчивости возбужденных атомов и ионов.**

**4.1.** Новый этап в изучении оптических нелинейностей возбужденных сред. Интерес к изучению нелинейно-оптических свойств возбужденных атомарных и ионизированных сред обусловлен рядом причин. Как уже упоминалось во введении, такие исследования необходимы для правильного описания взаимодействия сверхсильных световых полей с газовыми средами, для развития новых методов спектроскопии плазмы и измерения нелинейных восприимчивостей атомов и ионов — новых независимых комбинаций атомных и ионных параметров. Для начала мы рассмотрим наименее нелинейные восприимчивости, соответствующие четырехфотонным процессам; квадратичные нелинейности в изотропной газовой среде обращаются в нуль (механизмы генерации второй гармоники обсуждаются в работах [83]). Среди рассматриваемых нами процессов — когерентное антистоксово рассеяние света (КАРС) [7] и генерация третьей гармоники (ГТГ). Четырехфотонные процессы в атомарных невозбужденных средах широко изучались в связи с потребностями преобразования частот оптических излучений (см., например, обзор [1]). Мы же будем интересоваться особенностями протекания таких процессов с участием возбужденных атомов и ионов.

Первые указания на возможность роста нелинейных восприимчивостей при заселении возбужденных дискретных состояний газовой среды были даны в работах [13, 14].

Как будет ясно из дальнейшего, нелинейные восприимчивости газов при возбуждении последних, как правило, возрастают тем более, чем выше порядок по полу нелинейного процесса. Это дает возможность изучать процессы рассеяния, которые трудно изучать в невозбужденном газе.

#### **4.2. Квазирезонансное возрастание нелинейных восприимчивостей. Общее выражение для величины тензора кубической восприимчивости $\chi^{(3)}$ атомарного газа было дано в**

работе [38]:

$$\begin{aligned} \chi^{(6)}(\omega_0; \omega_1, \omega_2, \omega_3) \sim & \text{St} \sum_{n, J} \sum_{k=0}^2 (-1)^{3J+J_2+k} \rho_{nJ, nJ}^{(0)} \frac{(2k+1)^{1/2}}{2J+1} \times \\ & \times \langle nJ | D | n_1 J_1 \rangle \langle n_1 J_1 | D | n_2 J_2 \rangle \langle n_2 J_2 | D | n_3 J_3 \rangle \langle n_3 J_3 | D | nJ \rangle \times \\ & \times \begin{Bmatrix} J & k & J_2 \\ 1 & J_1 & 1 \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} J & 1 & J_3 \\ 1 & J_2 & k \end{Bmatrix} \frac{((\epsilon_0 \epsilon_1)^{(k)} \epsilon_2^{(1)} \epsilon_3^{(0)})}{D_{\omega}(nJ, n_1 J_1, n_2 J_2, n_3 J_3; \omega_1 \omega_2 \omega_3)}; \end{aligned} \quad (10)$$

здесь  $n, J$  — квантовые числа,  $\epsilon$  — орты поляризаций рассеянного сигнала и волн накачки,  $\langle nJ | D | nJ \rangle$  — приведенные матричные элементы дипольного момента, выражаемые через силы осцилляторов на соответствующих переходах (см. формулу (9));  $\text{St}$  — оператор всевозможных перестановок частотных индексов. Частотные знаменатели  $D_{\omega}$  (в общем случае их 48) содержат в себе все возможные резонансы и в явном виде выписаны в работе [39]. В приведенной формуле учтены все процессы, стартующие с возбужденных состояний, населенности которых  $\rho_{nJ, nJ}^{(0)}$  могут быть оценены по формуле Больцмана (см. формулу (6)).

При достаточно высоких температурах часть атомов ионизирована; их доля может быть вычислена по формуле Саха (см. раздел 3). Выражение (10) не содержит вклада состояний непрерывного спектра; важность их учета в строгих расчетах для среды, состоящей из свободных атомов, показана в работе [40]. При достаточно высоком давлении газа и при нагреве, до температур порядка десятков тысяч градусов высоколежащие состояние дискретного и примыкающие к ним состояния непрерывного спектров атомов не реализуются (см. раздел 3.1), так что подход, развитый в [40], не применим. Вклад в рассеяние свободных электронов плазмы должен учитываться другим способом (см. ниже, раздел 5). Тем не менее, приведенная выше формула годна для качественных оценок, так как даже при малой плотности возбужденных дискретных состояний их роль в условиях квазирезонанса довольно велика. Для атома водорода имеются аналитические выражения для приведенных матричных элементов дипольного момента [41], выбор их знака не представляет проблемы [23], поскольку в этом случае радиальные интегралы на невырожденных переходах положительны.

Снова возвращаясь к рис. 2 и анализируя формулу (10), мы можем убедиться, что при заселении возбужденных состояний как резонансные, так и «нерезонансные», т. е. не обусловленные точным резонансом с каким-либо одним переходом процессы, описываемые этой формулой, протекают гораздо эффективнее. Частоты излучений видимого или ближнего инфракрасного диапазона оказываются в квазирезонансе с частотами электронных переходов в возбужденной газовой среде. Благодаря резкому падению величин частотных знаменателей  $D$  рост кубической восприимчивости при возбуждении газа может составлять несколько порядков величины, т. е. быть гораздо больше, чем возрастание линейной восприимчивости  $(\epsilon(\omega) - 1)/4\pi$ ; см. раздел 3.1. Соответственно расширяются и границы частотных областей, в которых имеет место квазирезонанс. Свой вклад в это возрастание может дать и рост величин сил осцилляторов на соседних переходах, имеющий место при росте главного квантового числа  $n$  (при этом, однако, следует учитывать «размытие» возбужденных состояний микрополями плазмы; см. раздел 3.1).

С использованием обсуждаемой формулы (10) мы в наших работах [15, 42] выполнили оценку восприимчивости  $\chi^{(3)}$  для процесса рассеяния по КАРС-схеме для модельного газа, состоящего из атомов водо-

рода, возбужденных равновесным тепловым нагревом. При старте из основного состояния атома  $H$  КАРС-процесс при любых частотах волн накачки, лежащих в видимом диапазоне, является нерезонансным. Однако заселение даже небольшого числа возбужденных состояний делает процесс квазирезонансным. Восприимчивость может превышать свое нерезонансное значение на несколько порядков, однако отсутствует какая-либо отчетливо выраженная спектральная зависимость этого процесса, что и отличает его от обычного, резонансного процесса. Следует еще раз подчеркнуть, что в реальной плотной, частично ионизированной газовой среде высоковозбужденные состояния атомов и примыкающие к ним состояния непрерывного спектра существенно изменены по сравнению с тем, что имеет место для свободных атомов [16]: ридберговские состояния не реализуются (растворяются плазменными микрополями), сила осциллятора с ростом главного квантового числа растет только до определенного предела, а затем начинает быстро уменьшаться. Для рассмотрения таких ситуаций необходим либо полуэмпирический подход, либо строгая статистическая теория нелинейно-оптических процессов в плазме с учетом микроструктуры образующих ее частиц.

Результаты наших расчетов восприимчивости  $\chi^{(3)}(\omega_0; \omega_1, \omega_1, -\omega_2)$  в модельном газе атомов водорода (работы [15, 42]) приведены на рис. 3. Уже при нагреве газа до  $T \approx 10^4$  К рост величины  $|\chi^{(3)}|^2$ , пропорциональной интенсивности рассеянного сигнала, составляет один порядок величины; при  $T \approx (3-5) \cdot 10^4$  К рост интенсивности достигает 5–6 порядков величины; однако при таких температурах пренебрежение вкладом свободных электронов уже некорректно. Тем не менее, тенденция здесь прослеживается ясно: первоначальное нерезонансное рассеяние КАРС при возбуждении среды становится квазирезонансным, и его интенсивность значительно возрастает. Этот вывод косвенно подтверждается результатами экспериментов по КАРС в низкотемпературной лазерной плазме (см. ниже раздел 5). Мы можем здесь также подчеркнуть, что чем выше порядок по полю нелинейного процесса, тем больше имеется частотных знаменателей, и тем сильнее относительное возрастание рассеяния. Это позволяет надеяться на регистрацию в возбужденной среде процессов рассеяния, которые слишком слабы в невозбужденном газе.

**4.3. Аномалии поляризации КАРС-процессов, стартающих из возбужденных состояний.** Четырехфотонные процессы рассеяния света в возбужденных атомах и ионах, помимо возросшей эффективности их протекания, имеют еще одну особенность, связанную с поляризацией рассеянного сигнала. Анализ состояния поляризации широко используется в КАРС-спектроскопии [7, 43] и открывает еще одну «степень свободы» при диагностике среды. Характерной для КАРС-процессов в возбужденных средах является обусловленная квазирезонансами «аномалия» поляризации рассеянного сигнала.

Рассмотрим этот вопрос несколько подробнее на примере КАРС-процесса, обусловленного комбинационным резонансом (рис. 4). Для вектора  $\mathbf{P}_{\text{КАРС}}$ , дающего направление вектора  $\mathbf{E}$  рассеянного сигнала, в случае частично вырожденного процесса ( $\omega_a = 2\omega_1 - \omega_2$ ) имеет место следующее представление [43]:

$$\mathbf{P}_{\text{КАРС}} = 2\chi_{1122}\mathbf{e}(\mathbf{e}_1\mathbf{e}_2) + \chi_{1221}\mathbf{e}_2(\mathbf{e}_1\mathbf{e}_1),$$

где  $\mathbf{e}_i$  — орты векторов  $\mathbf{E}_i$  линейно поляризованных волн накачки,  $\chi_{1122}$  и  $\chi_{1221}$  — линейно независимые компоненты тензора  $\chi^{(3)}$ . Компоненты вектора  $\mathbf{P}_{\text{КАРС}}$  вдоль ортов  $\mathbf{e}_1$  и  $\mathbf{e}_2$  (между которыми в эксперименте обычно устанавливается угол  $\varphi \approx 70^\circ$ ), соответственно равны:

$$(\mathbf{P}_{\text{КАРС}})_1 = 2\chi_{1122}\cos\varphi, \quad (\mathbf{P}_{\text{КАРС}})_2 = \chi_{1221}.$$

При достаточном удалении от однофотонных резонансов для процесса КАРС на комбинационном резонансе имеют место следующие соотношения:

$$\begin{aligned}\chi_{1122} &\sim -\gamma_1 + \gamma_2, \\ \chi_{1221} &\sim \gamma_1 + \gamma_2,\end{aligned}\quad (11)$$

здесь  $\gamma_1$  и  $\gamma_2$  — антисимметричный и анизотропный инварианты тензора комбинационного рассеяния [44]. Каждый из инвариантов  $\gamma_0$  (изо-

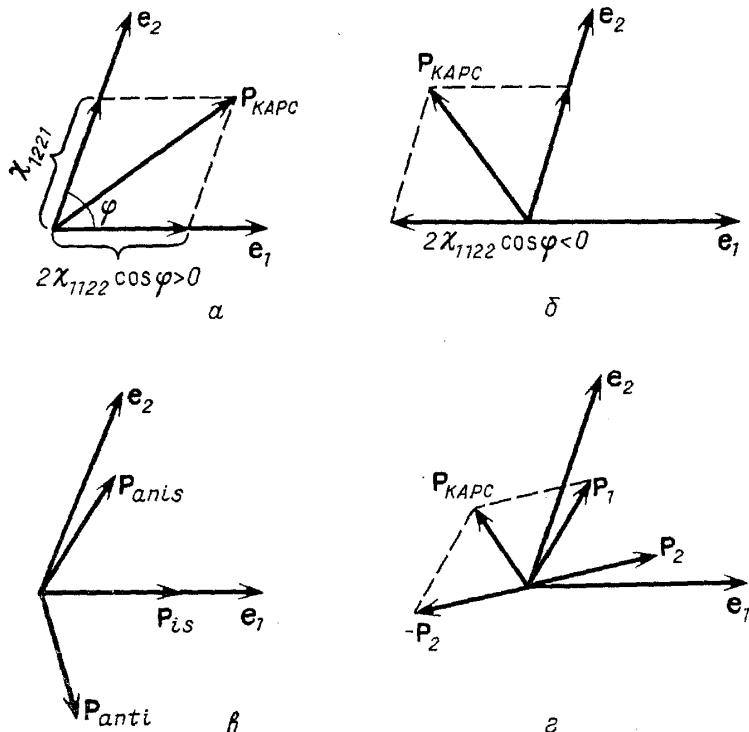


Рис. 4. Поляризация рассеянного сигнала при КАРС с комбинационным резонансом.  $e_1$ ,  $e_2$  — орты векторов линейно поляризованных волн накачки.  $P_{CARS}$  — вектор, определяющий состояние поляризации сигнала рассеяния. *а* — Обычная «нерезонансная» поляризация (холодный газ). *б* — Образование аномальной поляризации в квазирезонансном режиме. *в* — Вклад в  $P_{CARS}$  разных инвариантов тензора рассеяния. *г* — Механизм образования аномальной поляризации сигнала КАРС при интерференции вкладов различных возбужденных состояний

тропный),  $\gamma_1$  и  $\gamma_2$ , взятый по отдельности, приводит к появлению соответственно изотропного, антисимметричного и анизотропного вкладов в вектор  $P_{CARS}$  (см. рис. 4, *в*):

$$\begin{aligned}P_{is} &\sim 3e_1 \cos \varphi; \\ P_{anti} &\sim e_1 \cos \varphi - e_2, \\ P_{anis} &\sim e_1 \cos \varphi + 3e_2.\end{aligned}$$

Вдали от однофотонных резонансов антисимметричный инвариант  $\gamma_1$  мал [44], и вектор  $P_{CARS}$ , обусловленный комбинационным резонансом, есть линейная комбинация изотропного и анизотропного вкладов и поэтому лежит между  $e_1$  и  $e_2$ . При приближении к однофотонным резонансам  $\gamma_1$  растет, и компонента  $\chi_{1122}$  может стать отрицательной; вектор  $P_{CARS}$  при этом выходит за пределы сектора, ограниченного  $e_1$  и  $e_2$ . Такое состояние поляризации мы называем аномальным, так как оно никогда не встречается в классической КАРС-спектроскопии невозбуж-

денных молекулярных сред. Здесь необходимо заметить, что вышеприведенный анализ состояния поляризации не совсем корректен, так как вблизи однофотонных резонансов соотношения (11) могут нарушаться [7]. Тем не менее такое рассмотрение довольно наглядно и указывает причину аномалии поляризации: квазирезонансность частот излучений накачки и переходов в среде. К такому же результату, что и приведенные качественные соображения, приводят и описанный выше модельный расчет для газа из атомов водорода (рис. 5). В процессе нагрева газа вектор  $\mathbf{P}_{\text{КАРС}}$  поворачивается и его направление становится аномальным.

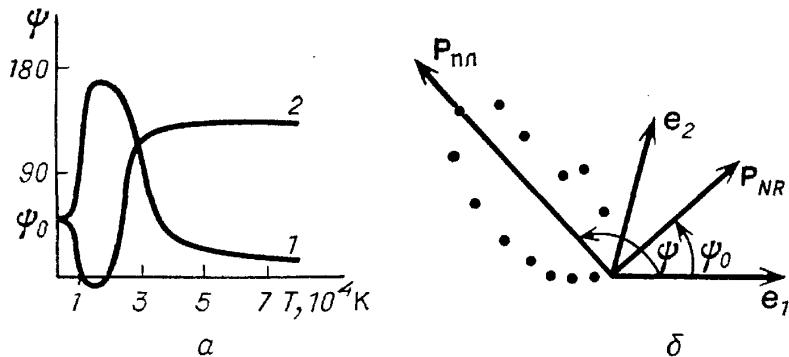


Рис. 5. Ориентация вектора  $\mathbf{P}_{\text{КАРС}}$  в возбужденном газе — расчет и эксперимент. *а* — Зависимость угла  $\Psi$  поворота вектора  $\mathbf{P}_{\text{КАРС}}$  от температуры (расчет [15, 42]), для кривой 1 частоты излучений накачки  $\omega_1/2\pi c$  и  $\omega_2/2\pi c$  соответственно равны 16 000 и 15 000 см<sup>-1</sup>, для 2 эти величины соответственно равны 17 000 и 16 000 см<sup>-1</sup>. *б* — Направление вектора  $\mathbf{P}_{\text{ππ}}$  квазирезонансного антистоксова сигнала в плазме оптического пробоя (эксперименты [45]). Экспериментальные данные нанесены в виде точек полярной диаграммы.  $\mathbf{P}_{\text{NR}}$  соответствует рассеянию в «холодном» газе.  $\psi_0 = 43^\circ$

К аномалии поляризации может также привести интерференция вкладов в  $\chi^{(3)}$  от различных возбужденных состояний. Так, если два таких состояния дают векторы  $\mathbf{P}_{\text{КАРС}}$ , лежащие в «нормальном» направлении (между  $\mathbf{e}_1$  и  $\mathbf{e}_2$ ), но вклады этих состояний имеют разные знаки, суммарная поляризация становится аномальной (см. рис. 4, *г*). Заметим, что этот механизм связан именно с дискретностью энергетического спектра частицы, рассеивающей свет.

**4.4. Активная спектроскопия КР на состояниях тонкой структуры атомов.** В этом разделе будут рассмотрены результаты экспериментов по КАРС-спектроскопии по исследованию комбинационных резонансов (антистоксов вариант когерентной активной спектроскопии комбинационного рассеяния — АСКР) на состояниях тонкой структуры атомов. Достаточно подробная библиография работ в этом направлении имеется в обзорах [37, 46, 47]. Мы коротко рассмотрим соответствующие экспериментальные методики и основные результаты, полученные в этой новой для КАРС-спектроскопии области.

Как известно, АСКР является когерентным аналогом спонтанного комбинационного рассеяния [7]; кубическая восприимчивость в этом случае просто выражается через сечение СКР (вдали от однофотонных резонансов):

$$\chi^{(3)} \approx \frac{Nc^4}{24\hbar\Gamma\omega^4} \sigma_{\text{СКР}},$$

где  $N$  — плотность рассеивающих частиц,  $\Gamma$  — полуширина комбинационного резонанса. В условиях квазирезонанса происходит одновременный рост величин как  $\sigma_{\text{СКР}}$ , так и  $\chi^{(3)}$ . АСКР, однако, является когерентным процессом, сигнал рассеяния имеет все свойства лазерного излучения и весьма интенсивен. Поэтому с экспериментальной точки зрения

схема АСКР более предпочтительна, чем СКР, по крайней мере, при достаточно высоких плотностях среды.

Рассмотрим схему типичной экспериментальной установки, используемой для четырехфотонной спектроскопии возбужденных газов (рис. 6). Это импульсный КДРС-спектрометр на основе кристаллов Nd : YAG, в нем используется режим модуляции добротности — длительность оптических импульсов около 15 нс, частота повторения 10—15 Гц. Излучение с длиной волны  $\lambda=1,06$  мкм после выхода из генератора Г усиливается в двух независимых каналах (также с использованием кристаллов Nd:YAG), и удваивается в кристаллах СДА. Излучение с частотой второй гармоники  $\omega_1$  в одном из каналов использует

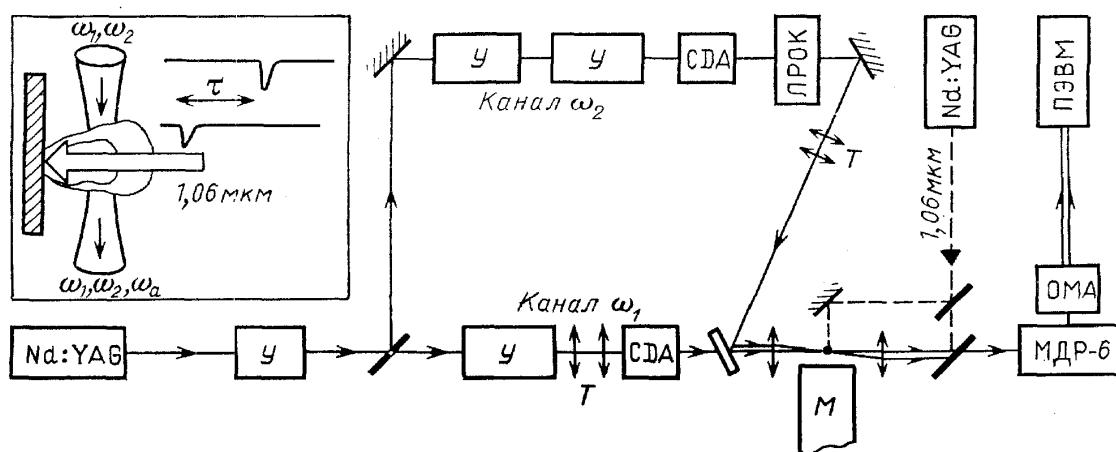


Рис. 6. Схема экспериментальной установки для четырехфотонной спектроскопии атомов и ионов. Nd : YAG — генератор излучения с длиной волны  $\lambda=1,06$  мкм на кристалле иттрий-алюминиевого граната с неодимом, У — усилители излучения на тех же кристаллах, СДА — удвоители излучения на кристаллах СДА, ЛРОК — лазер на растворе органического красителя, Т — телескопы для согласования диаметров и расходимостей световых пучков, М — металлическая мишень, ОМА — оптический многоканальный анализатор, ПЭВМ — персональный микрокомпьютер, МДР-6 — полихроматор. Слева на вставке поясняется схема нелинейно-оптического зондирования области оптического пробоя.  $\tau$  — временная задержка между возбуждающим и зондирующими оптическими импульсами

зуется для накачки перестраиваемого по частоте ( $\omega_2$ ) лазера на красителе. В результате энергия излучения на частоте  $\omega_1$  ( $\lambda=0,53$  мкм) достигает 50 мДж, а на частоте  $\omega_2$  — 2 мДж. Эти излучения с помощью дихроичных зеркал устанавливаются строго коллинеарными; с помощью телескопов  $T$  выравниваются их диаметры и расходимости. Затем эти излучения фокусируются в кювету с газом. Используются как узкополосный, так и широкополосный варианты КАРС [7]. Регистрация оптического сигнала на частоте  $\omega_a$  после предварительной фильтрации с помощью светофильтров и развертки по спектру с помощью полихроматора осуществляется на оптическом многоканальном анализаторе ОМА, соединенном с персональным компьютером.

Атомизация и возбуждение газовой среды осуществлялись разными способами. При работе с парами легколетучих металлов — путем термического нагрева в кварцевой кювете. В других случаях использовалось возбуждение в дуговых или искровых электроразрядах с помощью оптического пробоя, либо селективного оптического заселения. С целью создания оптического пробоя использовалась дополнительная наносекундная система на кристаллах Nd : YAG, синхронизованная с КАРС-спектрометром (см. рис. 5). Пробой осуществлялся либо путем фокусировки ее излучения непосредственно в исследуемый газ, либо на по-

верхность металлической мишени. При этом можно было получать плотность возбужденных атомов малолетучих металлов вплоть до  $10^{19} \text{ см}^{-3}$ . Задержка КАРС-зондирования относительно момента возбуждения при использовании как электрического, так и оптического пробоя могла изменяться в широких пределах: от 50 нс до 100 мкс.

До сих пор выполнено лишь небольшое число экспериментов по АСКР на атомах [48–53], что, по-видимому, объясняется нетрадиционностью атомарной среды для этого вида спектроскопии, а также чисто техническими сложностями. Перспективность же таких исследований очевидна: кроме возможности изучать комбинационно-активные переходы в сильно светящихся атомарных средах (что не удается сделать с помощью СКР) и кинетику соответствующих состояний (в том числе —

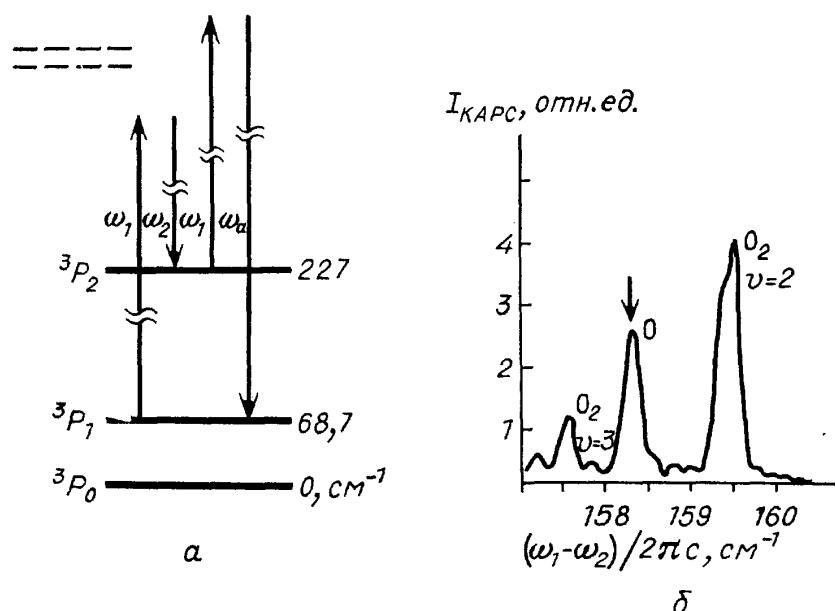


Рис. 7. Когерентное антистоково рассеяние в атомах кислорода ([48]). *а* — Схема процесса АСКР на состояниях тонкой структуры атома кислорода. Состояние  $^3P_1$  за-селено путем нагрева. *б* — Экспериментальный спектр АСКР. Спин-орбитальный ком-бинационный резонанс (отмечен стрелкой сверху) проявляется на фоне чисто врача-тельных резонансов колебательно возбужденных молекул кислорода

метастабильных), имеется возможность заселения возбужденных состояний в магнитно-дипольных и квадрупольных переходах, а также измерения компонент кубической восприимчивости, сравнения их с расчетными данными и извлечения информации, например, о знаках приведенных матричных элементов дипольного момента. АСКР может быть применена для диагностики лазеров на тонкой структуре основного электронного состояния атомов галогенов, например, йодного лазера.

По-видимому, первая экспериментальная работа по АСКР на атомах была выполнена в 1981 г. [48]. В ней осуществлена АСКР атомов кислорода, образованных в пламени кислородно-водородной горелки при температуре около 3000 К. На рис. 7 приведена схема низколежащих состояний атома О (спин-орбитальный триплет). Переходы между его соседними состояниями ( $|\Delta J|=1$ ), имеющими одинаковую четность, имеют магнито-дипольный и/или квадрупольный характер (при  $|\Delta J|=2$  — чисто квадрупольный). При совпадении разности частот  $\omega_1-\omega_2$  с частотами переходов  $^3P_0 \rightarrow ^3P_2$ ,  $^3P_2 \rightarrow ^3P_1$  (их частоты соответственно 227 и  $158 \text{ см}^{-1}$ ) в спектре АСКР возникают резонансы (см. рис. 7, б). При совпадении разности  $\omega_1-\omega_2$  с частотой, например,  $\Omega_{12}$  (см. рис. 7, а) происходит возбуждение магнитодипольного момента, гораздо более эффективное, чем при однофотонном возбуждении такого перехода ИК-

источником. Излучательная дезактивация магнито-дипольных колебаний происходит неэффективно (за времена порядка секунды); поэтому чтобы заставить переход интенсивно излучать, необходим третий фотон (в данном случае с частотой  $\omega_1$ ), который «подмешивает» дипольный момент переходов с высоколежащих электронных состояний.

В работах [49, 50] осуществлена АСКР на тонкой структуре атомов, галогенов: хлора, полученного при диссоциации молекулярного хлора в микроволновом разряде [49], и брома, образованного в результате фотодиссоциации молекул HBr [50].

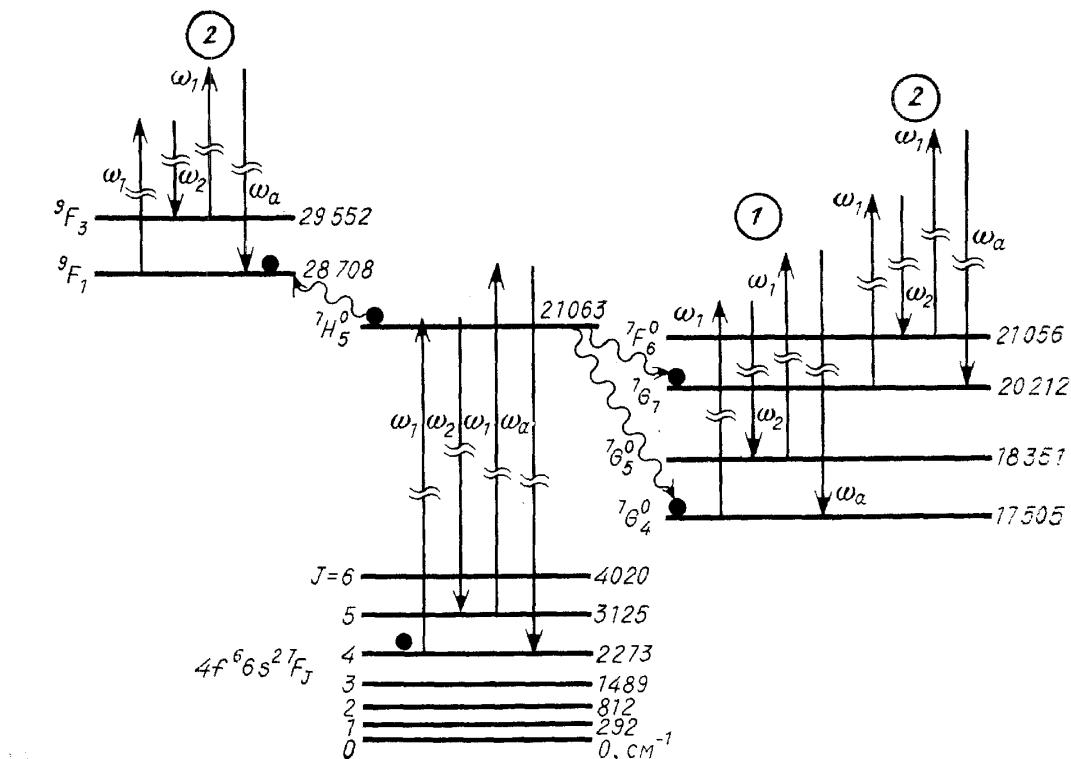


Рис. 8. АСКР в атомарных парах самария в условиях, близких к однофотонному резонансу (схема). Волнистые стрелки показывают пути столкновительного переноса энергии, кружками отмечены заселенные состояния. Энергия этих состояний приведена в  $\text{см}^{-1}$

Анализ спектроскопических аспектов АСКР на атомах был выполнен в наших работах [53—55]. В них изучались переходы  ${}^7\text{F}_2 - {}^7\text{F}_3$ ,  ${}^7\text{F}_3 - {}^7\text{F}_4$ ,  ${}^7\text{F}_4 - {}^7\text{F}_5$ ,  ${}^7\text{F}_5 - {}^7\text{F}_6$  конфигурации  $4\text{f}^6 6\text{s}^2$  в атомарных парах самария,  ${}^2\text{F}_{7/2}^0 - {}^2\text{F}_{5/2}^0$  конфигурации  $4\text{f}^{13}(2\text{F}^0)6\text{s}^2$  в тулии и  ${}^2\text{P}_{1/2}^0 - {}^2\text{P}_{3/2}^0$  конфигурации  $6\text{s}^2({}^1\text{s})$  бр атомов таллия. В этих тяжелых элементах возбужденные электронные состояния, связанные с основным состоянием переходами с большим дипольным моментом, лежат довольно низко, так что излучения видимого диапазона находятся в квазирезонансе даже с «холодными» атомами. Поэтому КАРС-процессы, стартующие из возбужденных низколежащих состояний тонкой структуры ( $J = 2, 3, 4, 5$ ), имеют высокую и примерно одинаковую восприимчивость. Интенсивность сигнала рассеяния вследствие этого велика даже при давлении паров порядка  $10^{-2}$  торр; порог по давлению обнаружения сигнала на существующей аппаратуре, по-видимому, не превышает  $10^{-4}$  торр.

Изучение способностей протекания АСКР при высоких интенсивностях волн накачки было выполнено в работах [56, 57]. В них изучена зависимость формы спектра антистоксова сигнала от интенсивности  $I_1$  (на частоте  $\omega_1$ ) в атомарных парах самария. Комбинационный резонанс на переходе  ${}^7\text{F}_4 - {}^7\text{F}_5$  (состояние  ${}^7\text{F}_4$  заселено термическим путем; рис. 8) дает в спектре одиночную линию с частотой  $853 \text{ см}^{-1}$  при интен-

сивностях  $I_1, I_2 < 10^8 \text{ Вт/см}^2$  (рис. 9). При увеличении  $I_1$  до  $2 \cdot 10^9 \text{ Вт/см}^2$  линия расщепляется на четыре компоненты. Характерно, что такое расщепление происходит только при достаточно высоких температурах ( $T > 700^\circ \text{C}$ ). По-видимому, в данном случае проявляется столкновительно-радиационный механизм заселения высоколежащих уровней сamarия [58, 59]. Состояние  ${}^7\text{H}_5^0$  заселяется квазирезонансным излучением с частотой  $\omega_1$ , а затем оптико-столкновительные процессы с участием атомов буферного газа при  $T \approx 1000^\circ \text{C}$  эффективно заселяют, в частности, состояния  ${}^7\text{G}_4^0, {}^7\text{G}_7^0, {}^9\text{F}_1$ . Вследствие этого в АСКР-спектре появляются «горячие» линии с частотами  $846 \text{ см}^{-1}$  (линия 1) и  $844 \text{ см}^{-1}$  (линия 2). При увеличении как температуры среды, так и интенсивности

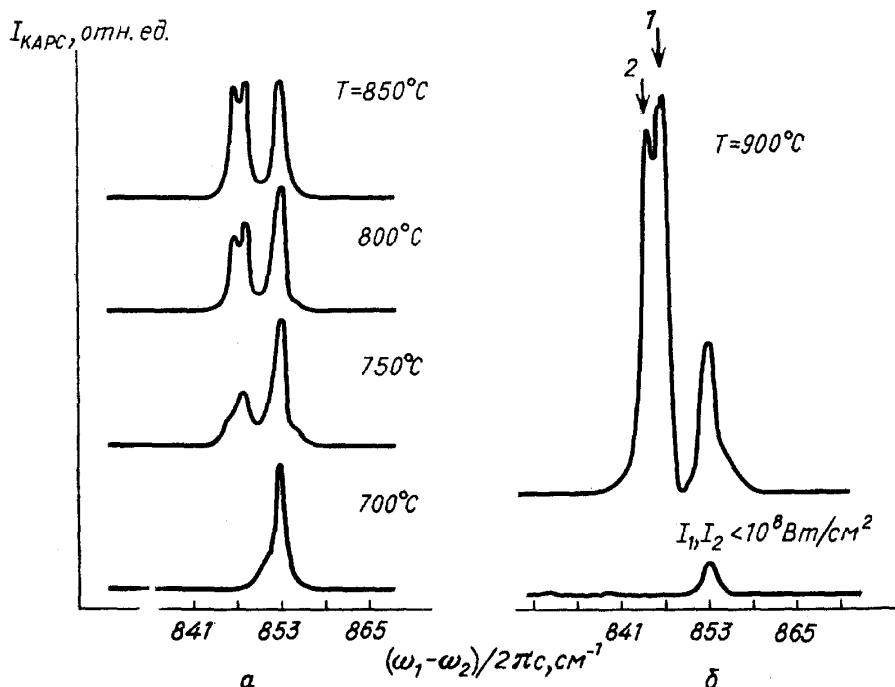


Рис. 9. Зависимость формы спектра АСКР в районе  $853 \text{ см}^{-1}$  (переход  ${}^7\text{F}_4 \rightarrow {}^7\text{F}_5$ ) от температуры (a) и интенсивности волн накачки (б). Стрелками сверху отмечены линии, интерпретация которых дана на рис. 8. Одновременное действие нагрева и интенсивного излучения накачки приводит к установлению квазирезонансного режима взаимодействия. Для верхних кривых рис. а  $I_1 = 2 \cdot 10^9 \text{ Вт/см}^2, I_2 = 10^8 \text{ Вт/см}^2$

излучения таких линий становится все больше и больше, в конце концов они сливаются и образуют бесструктурный, довольно интенсивный фон. АСКР при этом эффективно протекает при любых значениях  $\omega_1$  и  $\omega_2$ .

В работе [60] была продемонстрирована возможность применения АСКР в сильно светящемся факеле оптического пробоя в атмосфере на поверхности оловянной мишени. В этих экспериментах удалось наблюдать довольно интенсивный КАРС-процесс, стартующий с возбужденного состояния тонкой структуры, и измерить поляризационные свойства рассеянного сигнала. Показано наличие у тензора КР значительной антисимметричной части.

АСКР на атомах кремния была осуществлена в работе [61], в которой эти атомы получались с помощью фотодиссоциации молекул  $\text{CS}_2$ .

В заключение настоящего раздела еще раз отметим, что АСКР на состояниях тонкой структуры атомов может быть предложена для изучения кинетики метастабильных состояний лазеров на атомарных переходах, например, йодного лазера или лазеров на атомах фтора, хлора или брома.

**4.5. Активная спектроскопия гиперкомбинационного рассеяния на возбужденных атомах и ионах.** Как уже упоминалось, четырехфотонный процесс способы КАРС с одноди-  
тонным резонансом по частотам накачки или рассеянного сигнала мо-  
жет быть назван активной спектроскопией гиперкомбинационного рас-  
сеяния (АСГКР) (см. рис. 1). При проведении экспериментов на опи-  
санной в предыдущем пункте установке и регистрации рассеянного сиг-  
нала на частоте  $\omega_a = 2\omega_1 - \omega_2$  такие резонансы могут быть осуществлены  
при совпадении частот  $\omega_2$  или  $\omega_a$  с частотами дипольно-разрешенных  
переходов возбужденных атомов или ионов. Такая спектроскопическая;

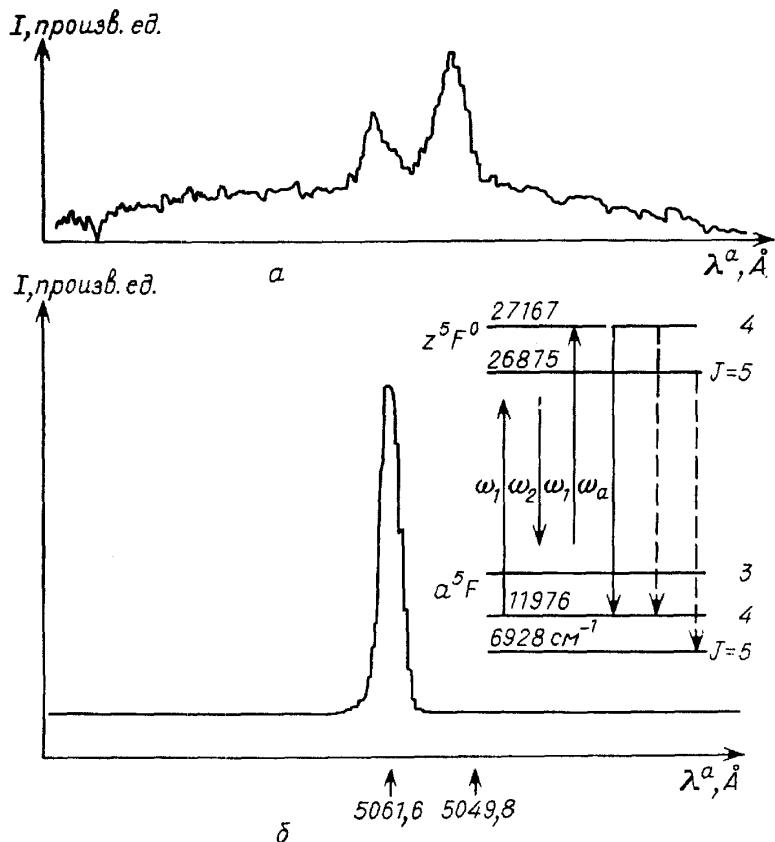


Рис. 10. Активная спек-  
троскопия ГКР на ато-  
мах Fe, возбужденных  
в факеле оптического  
пробоя [62]. а — Линии  
спонтанного свечения  
атомов Fe. б — Зареги-  
стрированный спектр АС-  
ГКР. На вставке спра-  
ва у рис. б интерпрета-  
ция спектра. Штрихо-  
вые линии соответству-  
ют линиям спонтанного  
свечения. I — интенсив-  
ность оптического сиг-  
нала

схема более удобна именно в сильно возбужденных средах, где АСГКР имеет низкую эффективность (так как комбинирующие состояния близки по энергии и, следовательно, при высокой температуре имеют практически одинаковую населенность).

Один из первых экспериментов в этом направлении описан в работе [62] (рис. 10). Возбужденные атомы железа образовывались при оптическом пробое на поверхности железной мишени. Между моментами пробоя и зондирования вводилась временная задержка около 5 мкс, для того чтобы плазма остыла и частично рекомбинировала. В данном случае реализуется резонанс на частоте антистоксова сигнала. Поскольку резонанс осуществляется на дипольно-активном переходе, на частоте этого перехода наблюдается спонтанное излучение; сигнал АСГКР возникает точно на той же частоте (см. рис. 10). При этом сигнал когерентного рассеяния в условиях экспериментов [62] оказался на 1–2 порядка интенсивнее, чем спонтанное свечение. Поскольку когерентный сигнал гораздо слабее волн накачки, резонанс на частоте сигнала более предпочтителен для спектроскопии, чем резонанс по частоте накачки: он не вызывает насыщения перехода и не искажает спектроскопическую информацию. В описываемых экспериментах ширина АСГКР-резонансов была менее 1 см<sup>-1</sup> и определялась аппаратной функцией системы регистрации.

Следует пояснить, почему обсуждаемый четырехфотонный процесс мы называем активной спектроскопией ГКР. Этот термин и подход были введены и развиты в работах [63—67]. Как было показано в этих работах, компоненты кубической восприимчивости, описывающие АСГКР, в рассматриваемом случае могут быть выражены следующим образом:

$$\chi_{1111} = \frac{N}{24\hbar} \frac{d_{12}}{\Omega_{12} - \omega_a - i\Gamma} \left( \frac{\beta_0}{\sqrt{3}} + \frac{2\beta_2}{\sqrt{15}} \right),$$

$$\chi_{1221} = \frac{N}{24\hbar} \frac{d_{12}}{\Omega_{12} - \omega_a - i\Gamma} \left( \frac{\beta_0}{\sqrt{3}} - \frac{\beta_2}{\sqrt{15}} \right),$$

где  $\beta_i$  — компоненты векторной части тензора ГКР,  $\Omega_{12}$  — частота резонансного перехода,  $d_{12}$  — дипольный момент этого перехода. Отношение компонент тензора  $\chi$ , следовательно, и отношение инвариантов  $\beta$  может быть найдено экспериментально с помощью поляризационных методов [7]. А именно:

$$\frac{\beta_0}{\beta_2} = \frac{1 + (2 \operatorname{tg} \theta / \operatorname{tg} \varphi)}{\sqrt{5} [1 - (\operatorname{tg} \theta / \operatorname{tg} \varphi)]},$$

где  $\varphi$  — угол между ортами векторов  $\mathbf{E}$  волн накачки, а  $\theta$  — угол между вектором поляризации сигнала рассеяния и ортом  $\mathbf{e}_1$ .

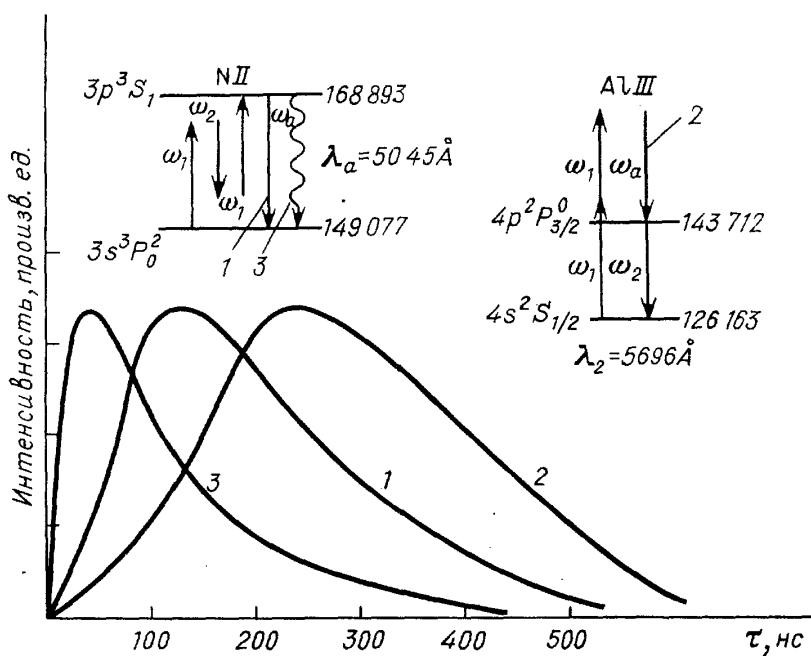


Рис. 11. АСГКР на атомарных ионах в факеле лазерной плазмы (из [70—72]). Приведена кинетика интенсивности сигнала резонансов АСГКР для некоторых резонансов: на ионах NII (1) и AlIII (2), а также спонтанного свечения NII (3). На схемах вверху дана интерпретация наблюдавшихся резонансов

Отметим, что такая спектроскопическая схема может измерять только векторные инварианты тензора ГКР. Полная активная спектроскопия ГКР возможна с использованием шестифотонного процесса (см. рис. 1). На изучаемом переходе должно быть реализовано правило отбора  $|\Delta J|=3$ , чтобы избежать каскадного четырехфотонного процесса. В такой схеме осуществляется приготовление и зондирование октупольного момента атома. Эксперименты в этом направлении пока что не выполнялись.

Результаты экспериментов по АСГКР на ионах, возбужденных в низкотемпературной плазме, опубликованы в наших работах [45, 68—

[72]. Возбуждение осуществлялось либо с помощью электроразряда [45, 68], либо оптического пробоя на поверхности металлов. В [70–72] записаны спектры АСГКР на переходах между высоколежащими состояниями атомарных ионов: первого иона азота, первого и второго ионов алюминия, первого иона индия (рис. 11), и исследована временная кинетика сигнала рассеяния.

Было обнаружено, что, как правило, в случае резонанса на частоте накачки резонанс довольно широкий — несколько обратных сантиметров, а при резонансе на частоте сигнала спектр рассеяния остается узким. Обнаружено качественное различие в кинетике интенсивности спонтанного свечения и когерентного рассеяния на том же переходе: первое из них спадает довольно быстро, отслеживая населенность верхнего резонансного состояния; второе же пропорционально квадрату разности заселенностей резонирующих состояний, поэтому когерентный сигнал сначала возрастает, затем (по мере опустошения нижнего резонансного состояния, которое может быть метастабильным) медленно спадает. Эти кинетические кривые были удовлетворительно воспроизведены в рамках простой столкновительно — радиационной модели расчета населенностей возбужденных состояний. Таким образом, сигнал АСГКР довольно силен даже тогда, когда спонтанное свечение уже значительно ослабло. Поэтому АСГКР может быть предложена для спектроскопии метастабильных состояний в низкотемпературной плазме, позволяя получить как временное, так и пространственное разрешение.

**4.6. Новые возможности генерации оптических гармоник в возбужденных атомарных и ионизированных средах.** Впервые идея использования возбужденных ионов для резонансного преобразования частот оптических излучений была высказана в работах [73–75]. В них было экспериментально показано, что на ионах магния возможна эффективная генерация третьей гармоники. Ионизированная среда приобретает новые резонансные частоты, более подходящие для источников излучения видимого диапазона.

В работе [76] были проведены эксперименты по генерации третьей гармоники лазера на Nd : YAG в пучке возбужденных ионов галлия. Так как концентрация ионов была невелика (до  $10^{10}$  см $^{-3}$ ), сигнал третьей гармоники оказался довольно слабым (КПД  $10^{-7}$ ). Однако в работе оценено, что соответствующая кубическая восприимчивость возбужденных ионов оказывается на шесть порядков выше, чем невозбужденных, так что повышение плотности ионов может дать практически значимые коэффициенты преобразования.

Эксперименты, выполненные в [69, 77], специально предназначались для проверки положения о том, что при достижении условий квазирезонанса эффективность генерации третьей гармоники может значительно возрасти. Эксперименты проводились в парах таллия при давлении 0,1 торр. Состояние 6P $_{3/2}$  селективно заселялось с помощью двухфотонного комбинационного насыщения [78], которое особенно эффективно в атомарных средах [79, 80] (рис. 12). В экспериментах использовались излучения на длине волны 1,06 мкм (частота  $\omega_0$ ) и 0,58 мкм (частота  $\omega_1$  — перестраиваемая). При заселении состояния 6P $_{3/2}$  эффективность генерации третьей гармоники возрастала на 3 порядка величины. Причем, как показали расчеты, выполненные в [69], это возрастание было обусловлено именно ростом восприимчивости  $\chi^{(3)}$ , а не улучшением условий фазового согласования при возбуждении.

Заслуживают упоминания также эксперименты [81, 82], в которых резонанс на частоте третьей гармоники мог наблюдаться с высокой контрастностью за счет подавления сигнала трехфотонной люминесценции.

В заключение настоящего параграфа отметим, что в условиях квазирезонанса, достигаемого путем возбуждения газовой среды, когерентные четырехфотонные процессы протекают с высокой эффективностью,

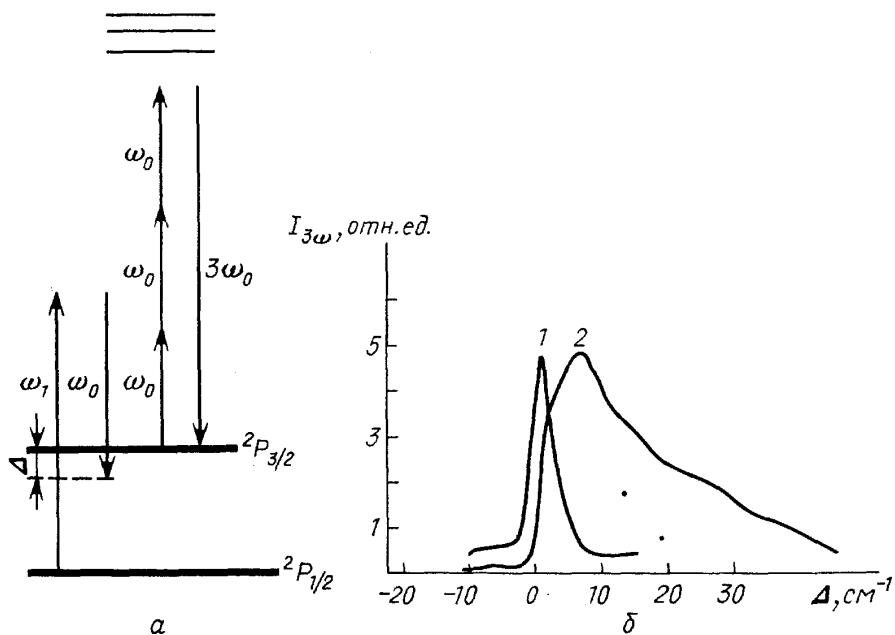


Рис. 12. Увеличение эффективности генерации третьей гармоники излучения с длиной волны 1,06 мкм (частота  $\omega_0$ ) в парах таллия при двухфотонном комбинационном возбуждении (ДКВ) состояния  $6P_{3/2}$  (из [77]). Частота  $\omega_1$  перестраивается. а — Схема процесса. б — Зависимость интенсивности третьей гармоники от отстройки ДКВ.

Для кривой 2 произведение  $I_1 I_2$  на три порядка больше, чем для кривой 1

и могут быть применены как для спектроскопических целей, так и для преобразования частот оптических излучений.

### 5. Когерентное нелинейное рассеяние и умножение частоты лазерного излучения в низкотемпературной плазме.

**5.1. Новая постановка задачи.** В этом разделе мы рассмотрим процессы КАРС и генерации гармоник в низкотемпературной газовой плазме оптического пробоя. В сравнении с нелинейно-оптическими экспериментами, традиционными для лазерного термоядерного синтеза [83—86], рассматриваемые нами эксперименты имеют ряд отличительных черт. Они выполнены при умеренных энергиях лазерных импульсов — не выше 200 мДж (обычно 50—100 мДж). Плазма образуется либо при оптическом пробое газов, либо при пробое вблизи поверхности металла. Пробой и нелинейно-оптическое зондирование осуществляются с помощью разных источников; между ними вводится регулируемая времененная задержка. Эксперименты выполняются при таких задержках (100—1000 нсек), при которых плотность плазмы не превышает  $10^{17}$ — $10^{19}$  см $^{-3}$ , так что частоты излучений гораздо выше частоты лэнгмюровских колебаний. Поэтому плазма практически полностью прозрачна для видимого и/или ближнего ИК излучения. В таких условиях нелинейно-оптические процессы могут быть осуществлены в коллинеарном, когерентном режиме, и, как оказалось, имеют неожиданно высокую эффективность.

**5.2. Первые эксперименты.** Первые эксперименты в этом направлении были выполнены в нашей лаборатории в 1981 г. (опубликованы в 1981—1982 гг. [87—89]). В них было обнаружено, что при опти-

ческом пробое атмосферного воздуха сфокусированными импульсами накачки, используемыми для генерации нерезонансного сигнала КДРС, его интенсивность возрастала на один — два порядка величины по сравнению со случаем отсутствия пробоя. Этот эффект был подтвержден впоследствии в работе [90]. В дальнейшем нами проводились эксперименты по генерации третьей гармоники лазера на Nd : YAG сnano- и пикосекундными импульсами [91—93, 95, 96]. На рис. 13 приведена

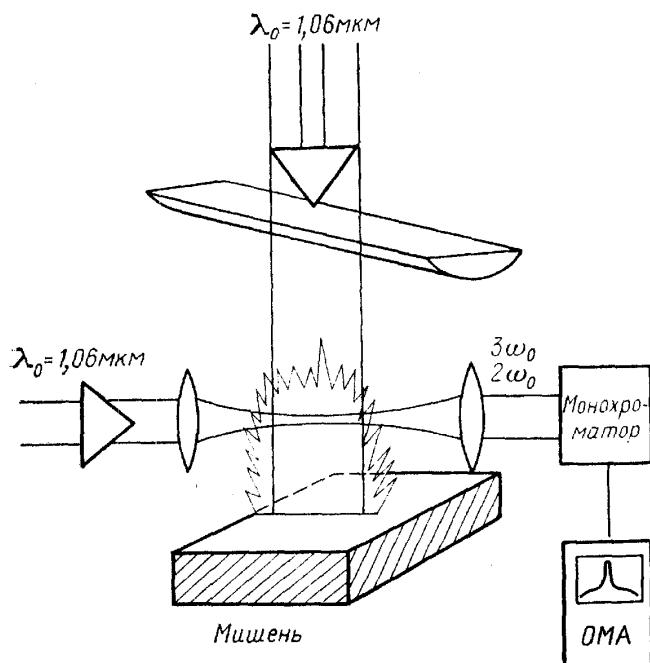


Рис. 13. Геометрия экспериментов [91—93] по генерации гармоник в плазме лазерного пробоя. Излучение Nd : YAG-лазера фокусируется цилиндрической линзой на поверхность металлической мишени. В образованную таким путем плазму через некоторое время  $\tau$  фокусируется излучение накачки. Гармоники наблюдаются коллинеарно накачке

упрощенная схема таких экспериментов. Излучение Nd : YAG лазера, работающего в режиме модуляции добротности (наносекундные импульсы), имеющего энергию 100—200 мДж в импульсе, фокусируется цилиндрической линзой на поверхность металлической мишени для создания плазмы в вакууме или в атмосфере; пробой в газе при отсутствии мишени осуществлялся фокусировкой с помощью сферической линзы лазерного импульса во встречном направлении по отношению к зондирующему излучению. В плазменный факел через время  $\tau$ , лежащее в диапазоне 100 нс—1 мкс, фокусируется излучение другого Nd : YAG-лазера, с импульсами nano- или пикосекундной длительности. Их энергия не превышает 100 мДж. Когерентное излучение третьей гармоники распространяется коллинеарно излучению накачки и, пройдя через полихроматор, регистрируется на многоканальном анализаторе. Такая постановка эксперимента существенно отличается от осуществленных ранее в опытах [95—97], в которых исследовалась генерация оптических гармоник в плазме, образованной самими лазерными импульсами в энергией в десятки джоулей, умножение частоты которых и регистрировалось.

В наших экспериментах было установлено, что интенсивность нерезонансных (для нейтрального газа) четырехфотонных процессов, как по схеме КАРС, так и генерации третьей гармоники в условиях лазерного пробоя возрастает, в зависимости от условий эксперимента, на один — три, а в некоторых случаях — на четыре порядка величины (табл. II).

Сигнал когерентного рассеяния существенно зависит от задержки  $\tau$  и максимальен при некоторой оптимальной задержке. Было установлено, что чем больше объем, занятый плазмой, тем больше величина «оптимальной задержки». Кроме того, было зарегистрировано также и

излучение когерентной второй гармоники; оно было значительно (на три — пять порядков) слабее третьей. Это может служить аргументом в пользу утверждения, что градиентный (за счет неоднородностей) механизм генерации не является доминирующим [83].

Наилучшие результаты по повышению эффективности FTF были получены недавно [93]: при использовании пикосекундных импульсов (40 псек, 40 мДж) удалось довести КПД преобразования в третью гар-

Таблица II. Сводка экспериментальных данных по утроению частоты излучения Nd:YAG-лазера в низкотемпературной плазме [69, 91—93]

| Ссылка, год | Способ приготовления плазмы | Энергия в импульсе, мДж | Длительность импульса, пс | КПД, $W_{ГТГ}/W_{1,06}$ |
|-------------|-----------------------------|-------------------------|---------------------------|-------------------------|
| [91], 1986  | C <sup>*)</sup>             | 100                     | 30000                     | $10^{-10}$              |
| [91], 1986  | M <sup>**)</sup>            | 100                     | 30000                     | $10^{-8}$               |
| [69], 1988  | C                           | 200                     | 700                       | $10^{-5}$               |
| [93], 1988  | C                           | 40                      | 40                        | $10^{-3}$               |
| [93], 1988  | M                           | 40                      | 40                        | $10^{-2}$               |

\*) С — самопробой атмосферного воздуха лазерным пучком, используемым для ГТГ.  
\*\*) М — пробой атмосферного газа вблизи металлической мишени, вызванный независимым лазерным источником

монику до 3%. Излучение третьей гармоники было пространственно когерентным, узкополосным и могло быть использовано в других нелинейно-оптических экспериментах. Этот результат позволяет поставить вопрос о практическом применении такого метода преобразования частот оптических излучений. Его преимущества — нерезонансность и, следовательно, возможность преобразования излучения, перестраиваемого по частоте в широких пределах, доступность и универсальность нелинейной среды; возможность масштабирования по энергии (о роли эффектов насыщения см. ниже); возможность использования этого метода умножения частоты в тех спектральных диапазонах (УФ, ВУФ), где отсутствуют или неэффективны нелинейные кристаллы; применимость к сверхкоротким лазерным импульсам и др.

**5.3. Модель: классическая столкновительная плазма.** Для объяснения столь эффективного преобразования частот лазерного излучения могут быть привлечены несколько механизмов. Во-первых, это уже упоминавшийся механизм возрастания нелинейных восприимчивостей при заселении возбужденных состояний атомов и ионов. Во-вторых, это механизм диссипативной нелинейности в столкновительной плазме. Последний был использован в работах [98—100] и состоит в зависимости частоты электрон-ионных столкновений  $v_{ie}$  от температуры электронов (не совпадающей в сильном электромагнитном поле с температурой газа). Этот механизм важен в плотной низкотемпературной плазме при использовании наносекундных и более длинных импульсов, когда за время импульса успевают произойти много соударений.

Проиллюстрируем этот механизм на простейшей модели [98]. Уравнения для скорости электронов  $V$  и температуры электронной подсистемы плазмы  $T_e$  имеют вид

$$\frac{dV}{dt} = \frac{e}{m} E_0 \sin(\omega t) - v(T_e) V, \quad (12)$$

$$\frac{dT_e}{dt} = \frac{2e}{3} V E_0 \sin(\omega t) - \delta v(T_e) (T_e - T_0);$$

здесь  $E_0$  — амплитуда внешней электромагнитной волны (влияние пространственной дисперсии здесь не рассматривается),  $v(T_e)$  — зависящая от температуры частота электрон-ионных столкновений (для полностью ионизованного газа):  $v(T_e) = v_0 (T_0/T_e)^{3/2}$  и  $T_0$  — температура газа в энергетических единицах;  $\delta = m_e/m_i$ .

Эта модель была применена в работе [100] для вычисления интенсивности генерации третьей гармоники лазерного излучения. В стационарных условиях вычислен невысокий КПД ( $10^{-5}$ ) преобразования. Сделан вывод о том, что в условиях сильного отрыва  $T_e$  от  $T_0$  (нестационарный случай) возможен КПД порядка нескольких процентов. Расчеты для этого случая, однако, не проводились. Для стационарного случая получено следующее выражение для интенсивности сигнала третьей, гармоники:

$$P_3 = \left( \frac{3v_0\alpha}{16\delta\omega} \right)^2 \frac{E_0^8}{(1 + \alpha E_0^2)^5}$$

где

$$\alpha = \frac{e^2 E_0^2 \delta}{6m(\omega^2 + v^2) T_0}.$$

Здесь содержится источник насыщения эффективности ГТГ с ростом интенсивности накачки.

Этот же механизм с помощью кинетического уравнения рассматривался в работах [101, 102].

Наконец, следует упомянуть механизмы нелинейности плазмы, связанные с действием силы Лоренца [103, 104], и коллективными плазменными резонансами. Первый из них — наиболее фундаментальный источник оптической нелинейности плазмы. Даже уединенный свободный электрон испытывает действие силы Лоренца со стороны магнитного поля лазерного излучения,  $F_\perp \sim (e/c)[vH]$ . Скорость электрона  $v$ , зависящая в дипольном приближении от электрического поля волны:  $v = (e/m)E$ , приобретает нелинейную составляющую  $v^{(2)}$ , квадратичную по амплитуде поля световой волны  $|E| \sim |H|$ :  $v^{(2)} \sim E^2$  и обусловленную силой Лоренца. Однако в нерелятивистских световых полях, при условии  $v/c \ll 1$ , имеем

$$|F_\perp| \ll |F_{\text{дип}}| = e|E|,$$

так что описанная лоренцевская нелинейность свободного электрона относительно невелика.

Рассмотренный механизм, в конечном счете, приводит к нелинейностям коллективных плазменных возбуждений, которые могут давать нерезонансный вклад как в линейный, так и нелинейный оптические отклики плазмы (мы не рассматриваем гидродинамических механизмов). Наиболее важную роль в незамагниченной плазме играют ленгмюровские плазменные колебания с частотой  $\Omega_p = (4\pi N_e e^2/m)^{1/2}$ . При падении на плазму бигармонического светового поля, содержащего частоты  $\omega_1$  и  $\omega_2$ , возможна резонансная раскачка ленгмюровских колебаний за счет биения компонент светового поля при выполнении условия резонанса:  $\omega_2 - \omega_1 = \Omega_p$ . Соответственно, как и в обычной АСКР, имеет место резонансное возрастание кубической восприимчивости для процесса типа четырехфотонной смеси вида:  $\omega_a = \omega_1 + (\omega_1 - \omega_2) = 2\omega_1 - \omega_2$ . Пиковое значение этой резонансной кубической восприимчивости было рассчитано еще в 1966 г. [103]:

$$\chi^{(3)} = \frac{-ie^4 N \Omega_p \tau}{\omega_1^2 \omega_2^2 m^3 c^2} = -i \frac{\Omega_p^3 \tau r_0}{4\pi \omega_1^2 \omega_2^2 m},$$

где  $r_0 = e^2/mc^2$  — классический радиус электрона;  $\tau$  — константа релаксации энергии плазменных колебаний. В случае точного резонанса абсолютная величина восприимчивости может достигать значений  $10^{-17}$  ед. СГС при  $N_e \sim 10^{19} \text{ см}^{-3}$ ,  $\Omega_p \tau = 10^2$ . Однако из-за неоднородности плазмы условия такого резонанса не могут быть выполнены точно для сколько-нибудь значительного объема взаимодействия и реально можно ожидать величин  $\chi^{(3)}$  на несколько порядков величины меньших. В результате средняя «коллективная» нелинейность плазмы невелика и не может объяснить высоких значений КПД четырехфотонных процессов. К тому же при ГТГ в условиях обсуждаемых экспериментов нельзя осуществить резонанс между частотами волн накачки видимого или ближнего ИК с частотами плазменных колебаний.

Наконец, отметим, что характерной особенностью этого механизма является поляризация сигнала АСКР в том же направлении, что и излучение накачки с частотой  $\omega_1$  [103]. Такое состояние поляризации в атомарной среде мы наблюдали в единственном случае: при осуществлении АСКР в условиях резонансной фотоионизации паров натрия. Поскольку ионы  $\text{Na}^+$  не имеют квазирезонансов в видимом диапазоне, плазменный вклад не маскировался вкладом связанных электронов.

В поле мощных сверхкоротких световых импульсов адекватный подход к генерации оптических гармоник в плазме, на наш взгляд, должен состоять в рассмотрении этого процесса как результата рассеяния оптического электрона на ионе в присутствии поля (см. ниже, раздел 6).

**5.4. Недостаточность простых моделей.** В экспериментах [95–97] были получены указания на доминирующую роль вклада возбужденных дискретных состояний. Действительно, поляризационная аномалия КАРС (см. рис. 4 и раздел 4) может быть воспроизведена только при учете дискретных состояний. Диссипативная нелинейность, так же как и механизм, связанный с рассеянием электронов на бесструктурных ионах, являются по сути нерезонансными, так что вектор  $\mathbf{P}_{\text{КАРС}}$  должен лежать между ортами  $\mathbf{\epsilon}_1$  и  $\mathbf{\epsilon}_2$ ; см. монографию [7] и работу [110]. Что же касается лэнгмюровской нелинейности электронов, то, как упоминалось выше (см. также [103]), вектор  $\mathbf{P}_{\text{КАРС}}$  коллинеарен орту  $\mathbf{\epsilon}_1$ . Эти факты могут быть использованы для экспериментального разделения механизмов нелинейности. Определение границ действия механизмов, перечисленных в разделе 5.3, в каждом конкретном случае представляет собой сложную задачу; такое разделение в конкретных ситуациях до сих пор еще не производилось вследствие сложности такой проблемы.

По-видимому, количественное моделирование четырехфотонных процессов рассеяния в факеле лазерного пробоя должно проводиться на основе статистической теории с учетом структуры образующих ее частиц.

Дело осложняется также необходимостью учета вклада самовоздействия излучения, в частности, самофокусировки в плазме. В настоящее время опубликовано несколько работ, в которых показано влияние этого эффекта на когерентные нелинейно-оптические процессы при достаточно малых плотностях газа и невысоких интенсивностях падающего излучения (см. [14, 105–109] и ссылки в них). Так, в [105] теоретически показано, что самофокусировка в плазме возможна уже при интенсивности накачки порядка  $10^8 \text{ Вт/см}^2$ . За счет схлопывания пучка при самофокусировке и, соответственно, повышении интенсивности излучения накачки КПД генерации третьей гармоники лазерного излучения может возрасти на три порядка величины [105].

## 6. Когерентные нерезонансные нелинейные процессы рассеяния и умножения частоты лазерного излучения в экстремально сильных световых полях.

**6.1. Сверхсильные оптические поля: введение.** В настоящем разделе мы обсудим особенности нелинейно-оптических процессов, происходящих в световых полях, сравнимых с внутриатомными электрическими полями, либо даже превосходящими их. Интерес к таким вопросам возник и поддерживается в связи с экспериментами по взаимодействию мощных сфокусированных субпикосекундных лазерных импульсов с газами [3–6]. В их числе — надпороговая ионизация ато-

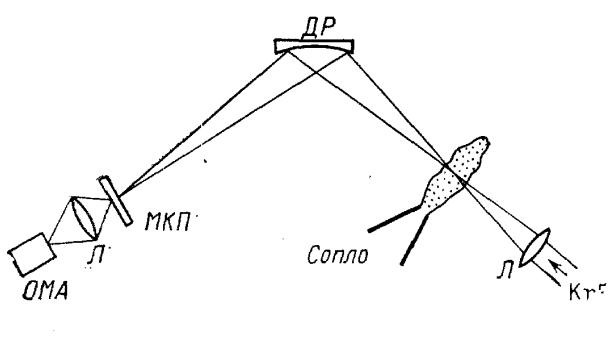


Рис. 14. Геометрия экспериментов [114] по генерации многократных гармоник в сфокусированных фемтосекундных световых импульсах. KrF-излучение эксимерного лазера фокусируется линзой  $L$  в струю инертного газа, истекающую в вакуум,  $DR$  — вогнутая дифракционная решетка,  $MKP$  — микроканальная пластина с люминофором,  $OMA$  — оптический многоканальный анализатор

МОВ [111], многофотонная обтирка атомов [112] (МОА) и др. Мы же будем интересоваться родственными, но когерентными процессами, приводящими к генерации многократных оптических гармоник (ГМГ). Такие процессы в настоящее время интенсивно изучаются как экспериментально, так и теоретически (см. труды конференции [113]).

Рассмотрим постановку и результаты типичного эксперимента в этом направлении [114]; тем самым мы сможем оценить многие аналогичные эксперименты из этого ряда [3, 94, 116–120] (рис. 14). Излучение KrF-лазера (длительность импульса 350 фс, энергия 20 мДж, длина волны генерации  $\lambda=248$  нм) фокусировалось в струю атомов инертного газа (интенсивность в фокусе  $10^{15}$ – $10^{16}$  Вт/см $^2$ ). При такой интенсивности атомы газа в объеме взаимодействия должны быть многократно ионизированы [8, 115], так что генерация гармоник происходит в газовой плазме. При этом длительность оптического импульса примерно в десять раз превышает период ленгмюровских колебаний плазмы. Есть основания предполагать, что процесс генерации гармоник может происходить в «полустолкновении» (half-bremsstrahlung — [121]) оптического электрона с «родительским» ионом. Гармоники регистрировались с помощью вакуумного монохроматора и оптического многоканального анализатора. Всего удалось зарегистрировать 17 гармоник (рис. 15, *a*). В работе [120] в аналогичных условиях наблюдалось до 33 гармоник пикосекундного Nd:YAG-лазера (рис. 15, *б*); интенсивность сфокусированного излучения достигала  $3 \cdot 10^{13}$  Вт/см $^2$ . Характерной особенностью таких экспериментов является то, что интенсивность высших гармоник довольно медленно уменьшается с ростом их номера — образуется своеобразное плато (см. рис. 15). Его наличие объясняется в работе [114] квазирезонансом излучения с переходами между состояниями внутренних электронных оболочек. В этих экспериментах, как и в экспериментах, описанных в разделе 5, гармоники были когерентны и коллинеарны пучку излучения накачки.

Заметим, что согласно терминологии, принятой в [113], сверхсильными оптическими полями называются поля с напряженностью, превышающей электростатическое поле на первой боровской орбите атома водорода. Другими словами, взаимодействие оптического электрона со

сверхсильным полем больше, чем с ионом. Поскольку напряженность поля на первой боровской орбите есть

$$E_a = \frac{e}{a_0^2} \sim 1,7 \cdot 10^7 \text{ ед. СГСЭ} \sim 5,1 \cdot 10^9 \text{ В/см}$$

( $a_0$  — боровский радиус), то соответствующая характерная «атомная» единица интенсивности светового поля  $I_a$  имеет величину:

$$I_a = \frac{c}{8\pi} E_a^2 \sim 0,35 \cdot 10^{17} \text{ Вт/см}^2.$$

При  $E > E_a$ ,  $I > I_a$  дискретная структура атомных уровней не проявляется, линейный и нелинейный оптические отклики вещества определяются электронными переходами в сплошном спектре.

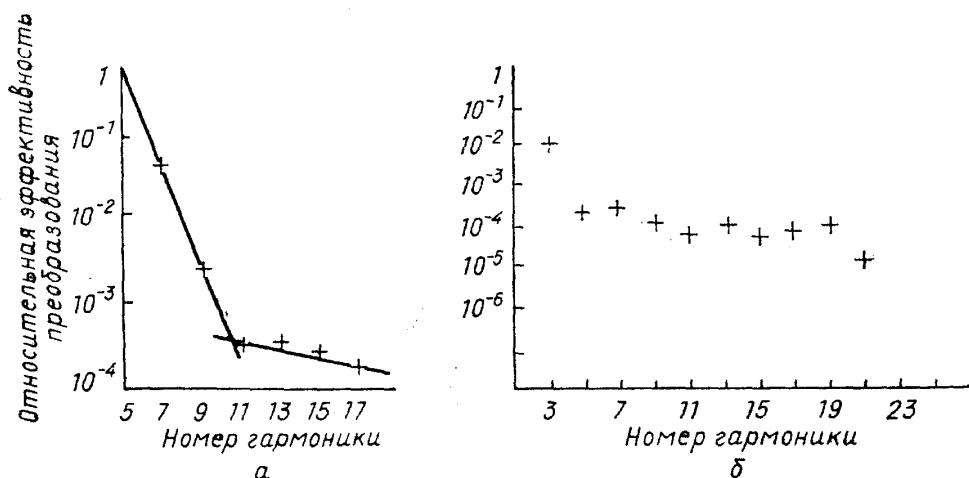


Рис. 15. Медленное спадание интенсивности оптических гармоник в зависимости от их номера в сверхсильных оптических полях — образование «плато» (эксперимент). *а* — Гармоники KrF-лазера (из [114]). *б* — Гармоники Nd : YAG-лазера (из [120])

Следует сказать, однако, что в определенных условиях (в частности, в ионизированной газовой среде) граница «сверхсильности» для возбужденных электронов значительно понижается, так что в некоторых случаях сверхсильным можно, например, считать излучение Nd : YAG-лазера интенсивностью всего лишь  $3 \cdot 10^{13} \text{ Вт/см}^2$  (см. [120, 121]). Эта оценка опускается еще ниже ( $10^{10} \text{ Вт/см}^2$ ) при использовании CO<sub>2</sub>-лазера и возбужденной газовой среды.

Фактически в этих случаях со световым полем взаимодействуют нелинейные распадающиеся атомные системы. Ниже мы предложим три простые модели, которые, будучи чрезвычайно простыми и наглядными, позволяют ответить на вопросы, возникающие при генерации гармоник в таких условиях.

При анализе процессов ГМГ в сверхсильных оптических полях следует выяснить следующее:

- каков характер зависимостей интенсивностей гармоник от интенсивности накачки;
- имеется ли насыщение этих зависимостей; если да — когда оно наступает;
- какова максимальная интенсивность гармоники с фиксированным номером, достигаемая в пределе сверхсильного поля;
- имеет ли место при ГМГ аналог «переключения пиков» при надпороговой ионизации (см. обзор [111]);
- каковы особенности достижения фазового синхронизма в сильных полях?

Для установления общих закономерностей нам потребуются некоторые простейшие модели, позволяющие провести анализ ситуации до конца хотя бы на качественном или полукачественном уровне. В этом направлении уже имеются первые результаты [9, 10], [122—124]. Ниже в качестве таких моделей мы рассматриваем одномерный классический осциллятор с реалистическим (но нетрадиционным) потенциалом, классическую столкновительную полностью ионизованную плазму, а также квантовую модель: водородоподобный атом с экранированным кулоновским потенциалом.

**6.2. Классическая одномерная модель.** Мы используем модель, уже описанную выше, в разделе 2, но рассматриваем ее в пределе экстремально сильных полей. Пусть, по-прежнему,  $x_E = eE_0/m\omega^2$  и  $x_0(t)$  — свободное решение уравнения (1) из раздела 2. В пределе сверхсильного поля  $x_E \gg a$ ,  $x_0(E \gg m\omega^2 a/e)$ . В этом случае для поиска

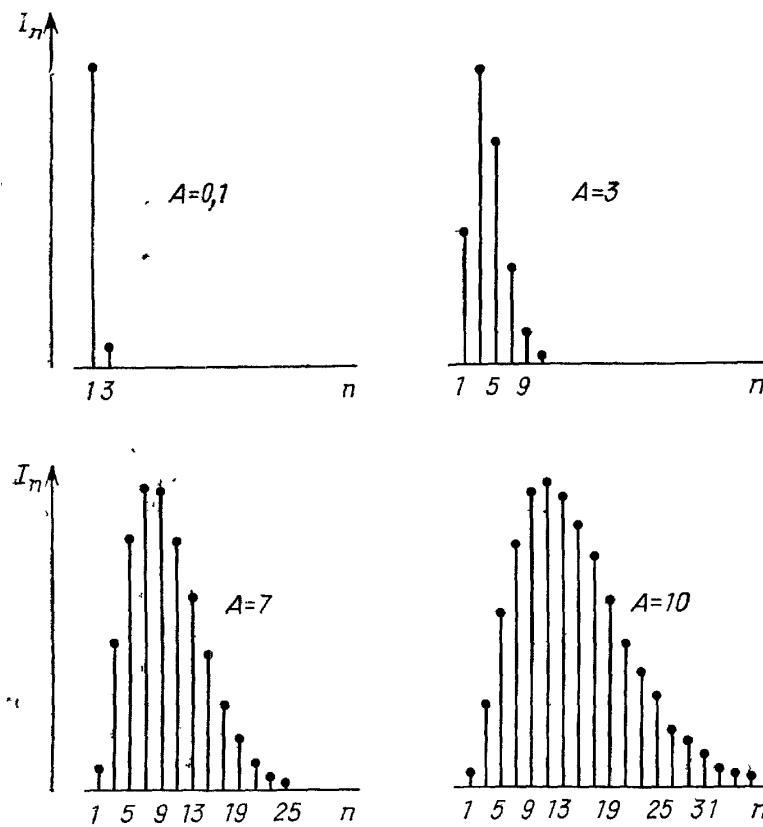


Рис. 16. Спектр гармоник столкновительной поправки  $x_E^{(2)}$  (см. формулу (13) данной статьи) в зависимости от относительной амплитуды возмущения  $A$ .  $I_n$  — интенсивность гармоники в относительных единицах.  $n$  — номер гармоники. Наблюдаются многократные нечетные гармоники, имеет место эффект «переключения пиков»

вынужденного решения также может быть применена теория возмущений, но обращенная: взаимодействие электрона с полем будем считать гораздо сильнее, чем его взаимодействие с ионом. В первом приближении, пренебрегая  $x_0$ , имеем

$$x_E^{(1)} = \frac{-eE_0}{m\omega^2} \sin(\omega t);$$

уравнение для следующего приближения имеет вид

$$x_E^{(2)} = \frac{-x_E^{(1)}}{1 + (x_E^{(1)}/a)^4} \sim \frac{A \sin \omega t}{1 + [A \sin(\omega t)]^4}, \quad (13)$$

где  $A$  — безразмерная напряженность оптического поля:  $A = eE_0/m\omega^2 a$ . Полученное выражение верно, когда  $A \gg 1$  и содержит все нечетные гармоники внешнего поля. Чтобы извлечь их амплитуды, разложим выра-

жение (13) в ряд Фурье:

$$x_E^{(2)} = \frac{a_0}{2} + \sum a_n \cos(\omega n t) + \sum b_n \sin(\omega n t). \quad (14)$$

Нетрудно видеть, что только коэффициенты  $b_n$  отличны от нуля:

$$b_n = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} \frac{A \sin(\omega t) \sin(n\omega t) dt}{1 + [(A \sin(\omega t)]^4}. \quad (15)$$

Интенсивность  $n$ -й гармоники равна  $I_{n\omega} = a_n^2 + b_n^2 = b_n^2$ . На рис. 16 приводится зависимость спектра гармоник от безразмерной амплитуды поля  $A$ . С ростом  $A$  возникают все больше и больше гармоник. Можно видеть «переключение максимумов» в спектре ГМГ, аналогично тому, как происходит «переключение пиков» в надпороговой ионизации [111]: при повышении  $A$  центр тяжести спектра гармоник смещается в сторону больших  $n$ . Отсутствие коэффициентов  $a_n$  в разложении (14) означает, что все гармоники находятся в фазе с внешним полем и друг с другом. Таким образом, можно сделать вывод, что процесс является нерезонансным, как и в случае бесструктурного атомарного континуума. Вычисление поля излучения выполняется просто: вторая производная из выражения (13) подставляется в волновое уравнение как источник.

Насыщение некоторых гармоник показано на рис. 17. Интенсивность любой гармоники сначала растет с ростом амплитуды внешнего поля, а затем уменьшается. Для более высоких номеров гармоник напряженность поля, при которой происходит насыщение, монотонно растет. Из модели также следует, что полная энергия, приобретенная осциллятором, монотонно растет с ростом амплитуды накачки. Происхождение насыщения легко установить: скорость «включения» и «выключения» взаимодействия электрона с ионом с ростом поля растет, так что их взаимодействие представляет собой серию все более коротких ударов. Именно поэтому более высокие гармоники более эффективно генерируются в сильном поле.

Наклоны кривых, приведенных на рис. 17, необычны для традиционной картины теории возмущений: наклоны практически одинаковы для всех гармоник, причем, как показал численный эксперимент, они связаны с параметром  $n$  нашей модели, т. е. с характеристикой потенциала взаимодействия, а не с номером генерируемой гармоники. Кстати говоря, указанное обстоятельство можно было бы использовать для восстановления характера потенциала, на котором происходит рассеяние оптического электрона. Возможно, в этом состоит причина неожиданных наклонов интенсивностей пиков электронного спектра НПИ, полученных в экспериментах [125] при использовании CO<sub>2</sub>-лазера, в которых реализовался туннельный режим ионизации.

Учет более высоких порядков теории возмущений не меняет качественно спектра гармоник — он лишь несколько уширяется.

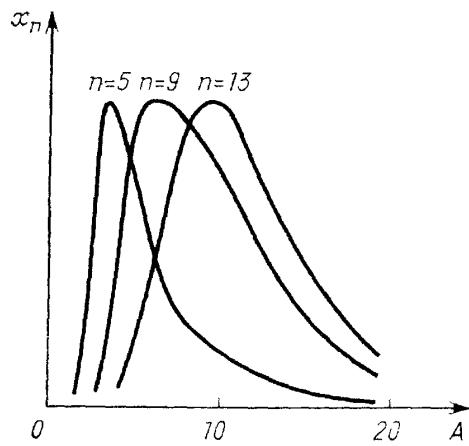


Рис. 17. Насыщение гармоник с  $n=5, 9$  и  $13$  в зависимости от относительной амплитуды  $A$  (расчет, см. раздел 6.2). Наклоны кривых на начальном участке практически одинаковы

Из приведенных результатов можно получить еще одно интересное следствие. Благодаря тому, что все оптические гармоники синфазны, их прямое суммирование приводит к значительному укорочению отклика системы на внешнее воздействие. На рис. 18 показан результат такого суммирования; видно, что отклик системы, порожденный взаимодействием электрона с ионом, имеет тем более короткую длительность, чем больше гармоник присутствует в спектре вынужденных колебаний электрона. Например, если взять излучение СО<sub>2</sub>-лазера, достаточно мощное, чтобы генерировалось порядка 100 гармоник (безразмерная амплитуда  $A$  порядка 20—30), мы можем получить последовательность

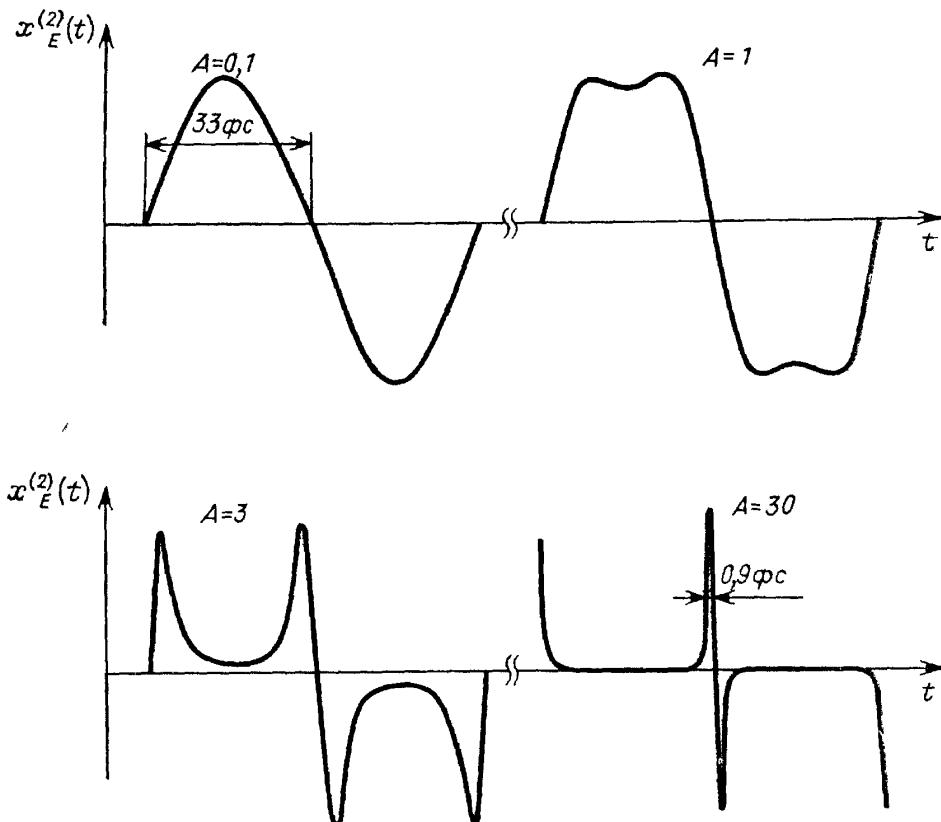


Рис. 18. Обострение нелинейного отклика (поправка  $x_E^{(2)}$ ; см. формулу (13)) в зависимости от безразмерной амплитуды поля  $A$  — образование «ударной волны» в случае, когда внешнее возмущение осциллирует с частотой излучения СО<sub>2</sub>-лазера.  $A=0.1$  (а), 1 (б), 3 (в) и 30 (г)

импульсов длительностью около  $10^{-16}$  сек (аттосекундный временной диапазон). Заметим, что это уже не обычная световая волна, поскольку эти импульсы не содержат осцилляции (видеоимпульсы). Указанное обстоятельство напоминает процесс образования ударной волны в нелинейной акустике, где дисперсия среды мала и возможна генерация многих гармоник. Напомним, что образование осцилляции с коротким периодом (30 фс) уже наблюдалось экспериментально в работе [126], где интерферировали две далеко отстоящие друг от друга линии излучения аргонового лазера (488 и 514,5 нм); в работе [127] наблюдались биения атто-секундной длительности. В рамках рассматриваемой модели эти эксперименты соответствуют наличию в спектре интерферирующих полей только двух первых гармоник соизмеримой интенсивности.

Разумеется, для более реалистического анализа экспериментальной ситуации в рамках рассмотренной классической модели, ее следует обобщить на трехмерный случай, и усреднить получаемые результаты.

по ансамблю начальных условий. Для этой цели может быть использован численный метод Монте-Карло в варианте, приведенном в работах [130—133].

**6.3. Столкновительная плазма в сильном поле.** Как уже упоминалось выше, в случае достаточно длинных оптических импульсов, распространяющихся в плотной низкотемпературной плазме, возможно применение простой столкновительной модели (система уравнений (12)). Применим эту модель также и в случае сверхсильного оптического поля. Мы поступим так же, как и в предыдущей одномерной классической модели: будет применена обращенная теория возмущений; взаимодействие с полем считается более сильным, чем взаимодействие частиц плазмы между собой. В этом случае решение (12) ищется в форме

$$V = V_0 + V_1 + V_2 \dots,$$

где

$$V_0 = \frac{eF_0}{m\omega} \cos(\omega t), \quad V_1 \sim \frac{v(T_e)}{\omega}$$

и т. д. В первом приближении имеем при  $V = V_0$

$$\frac{dT_e}{dt} = \frac{2e}{3} \frac{eE_0^2}{m\omega} \sin(\omega t) \cos(\omega t); \quad (16)$$

это означает, что средняя температура электронов постоянна, и  $T_e$  осциллирует на частоте  $2\omega$  с амплитудой:

$$\delta T_{2\omega} = \frac{e^2 E_0^2}{3m\omega}; \quad (17)$$

по этой причине  $v(T_e)$  осциллирует на той же самой частоте.

В следующем приближении имеем:

$$V_1 = -v(T_e)V_0 = -v_0 T_0^{3/2} \frac{(eE_0/m\omega) \cos(\omega t)}{[T_0 - (e^2 E_0^2/6m\omega^2) \cos(2\omega t)]^{3/2}}, \quad (18)$$

т. е., как и в предыдущей модели, присутствуют все нечетные гармоники излучения накачки, и они синфазны. Рассеянное излучение гармоник пропорционально квадрату амплитуды нелинейного тока, т. е. квадрату амплитуды скорости. Мы можем переписать полученное выражение:

$$V_1 = v_0 V_0^{(0)} \frac{\cos(\omega t)}{[1 - A \cos(2\omega t)]^{3/2}}; \quad (19)$$

где

$$V_0^{(0)} = \frac{eE_0}{m\omega}, \quad A = \frac{e^2 E_0^2}{6m\omega^2 T_0} = \frac{E_0^2}{E_p^2}.$$

Здесь мы ввели напряженность «плазменного поля»:  $E_p = (6m\omega^2 T_0/e^2)^{1/2}$ . Можно видеть, что в данном случае безразмерная амплитуда  $A$  пропорциональна отношению колебательной энергии электрона  $W_q$  к температуре газа  $T_0$ :  $A = (2/3) W_q/T_0$ .

Подчеркнем, что приведенные выше выражения верны, если только  $A \gg 1$ , т. е. внешнее поле гораздо сильнее, чем «плазменное поле» (последне возрастает при нагреве среды).

Генерация нечетных гармоник сильного внешнего тюля, приложенного к плазме, была впервые изучена в работе [102], на примере более сложной модели.

**6.4. Квантовая модель: водородоподобный атом.** В этой модели мы рассмотрим процесс ГМГ в экстремально сильном световом поле как результат рассеяния оптического электрона водородоподобного атома на собственном ионе, предполагая, что взаимодействие электрона с лазерным полем гораздо сильнее, чем с ионом, так что влияние последнего может рассматриваться как возмущение [92, 93, 134]. Этот подход существенно отличается от стандартного Квантово-механического расчета нелинейных восприимчивостей с использованием теории возмущений [38], и близок к методу расчета сечения многофотонных тормозных процессов [135, 136] — отличие в том, что мы будем интересоваться когерентным откликом среды. Приводимые ниже оценки следует рассматривать не как законченную теорию, а лишь как результат первой попытки продвинуться в указанном направлении.

Уравнение Шредингера для электрона, помещенного в интенсивное лазерное поле  $\bar{E}(t) = \bar{E} \sin \omega t$  и находящегося в потенциале иона, может быть записан в следующем виде:

$$i\hbar \frac{\partial \psi}{\partial t} = (H_0 + V) \psi, \quad (20)$$

где

$$H_0 = \frac{1}{2m} \left( \hbar \mathbf{k} - \frac{e}{\omega} \mathbf{E} \cos(\omega t) \right)^2$$

— гамильтониан свободного электрона в электромагнитной волне,  $V = -e^2/r$  в случае кулоновского потенциала и  $V = -(e^2/r)e^{-\beta r}$  при наличии дебаевской экранировки;  $V$  рассматривается как малое возмущение.

Волновая функция свободного электрона, имеющего волновой вектор  $\mathbf{k}$  и находящегося в поле  $\mathbf{E}(t) = \mathbf{E} \sin(\omega t)$ , может быть записана в виде [137]:

$$\Psi_k(r) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} \exp \left[ i \left\{ kr - \frac{\hbar k^2}{2m} t + \frac{e\mathbf{k}\mathbf{E}}{m\omega^2} \sin(\omega t) - \frac{1}{4m\hbar} \left( \frac{eE}{\omega} \right)^2 \left[ \frac{\sin(2\omega t)}{2\omega} + t \right] \right\} \right]. \quad (21)$$

Положим, что в начальный момент невозмущенная волновая функция электрона описывается волновым пакетом:

$$\Psi_k^0 = N \Psi_k e^{-\alpha r},$$

который удовлетворяет условию нормировки ( $N$  — нормировочная константа):

$$\int (\Psi_k^0)^* \Psi_k^0 d\mathbf{r} = 1;$$

здесь  $1 = \alpha^{-1}$  — характеристический линейный масштаб локализации электрона, связанный с параметрами лазера, приготовляющего данное состояние. Средний дипольный момент системы выражается так:  $\langle \mathbf{d} \rangle = \langle \Psi_k^0 | e\mathbf{r} | \Psi_k^0 \rangle$ . Здесь  $\Psi_k$  — поправка за счет взаимодействия с ионом. В случае возбужденного газа, а также при использовании сильных световых полей, когда размер излучающей системы может быть соизмерим с длиной волны излучения, вместо дипольного момента необходимо усреднять выражение  $e\mathbf{r} e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}}$ . Требования применимости дипольного приближения и «сверхсильности» поля противоречат друг другу и могут одновременно применяться лишь в узком диапазоне интенсивностей в районе  $10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup> для Nd: YAG-лазера (см. [137], с. 88). С целью упрощения расчетов мы ниже предполагаем использование именно таких интенсивностей.

Первый порядок теории возмущений дает следующее выражение для поправки  $\psi_k$ :

$$\psi_k = \int a(\mathbf{k}') \psi_{k'}^0 d\mathbf{k}',$$

где

$$a(\mathbf{k}') = -A(\mathbf{q}) \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n \left( -\frac{eqE}{\hbar m \omega^2} \right) \frac{\exp(i\omega_{k'k}t + in\omega t)}{\hbar\omega_{k'k} + n\hbar\omega + i \cdot 0}; \quad (22)$$

$$q = |\mathbf{q}|, \quad \mathbf{q} = \mathbf{k}' - \mathbf{k}, \quad \omega_{k'k} = \frac{\hbar}{2m} (\mathbf{k}'^2 - \mathbf{k}^2).$$

В этом выражении  $A(\mathbf{q})$  — амплитуда рассеяния электрона на потенциале  $V$  (сферически-симметричном); для экранированного кулоновского потенциала  $A(\mathbf{q}) = -4\pi e^2/(q^2 + \beta^2)$ .  $J_n$  — функция Бесселя. Среднее значение поправки к дипольному моменту системы находится путем усреднения по возмущенной волновой функции:

$$\langle \mathbf{d} \rangle = e \int \psi_k^{0*} \mathbf{r} \psi_k d\mathbf{r} + \text{к. с.}$$

Теперь легко найти выражение для проекции дипольного момента системы на направление вдоль вектора  $\mathbf{E}$ , осциллирующей на частоте  $n\omega$  и усредненное по начальному состоянию  $k$ :

$$d^{n\omega} = D \iint g(\mathbf{k}) A(q) G(q, E, n) dq dk + \text{к. с.}; \quad (23)$$

здесь

$$D = \frac{2^8 \pi^2 i \alpha N^4}{\hbar},$$

$$G(q, E, n) = \frac{q^3}{(4\alpha^2 + q^2)^3 y^2} \int_0^y \sum_{s=-\infty}^{\infty} J_s(x) J_{s-n}(x) \frac{x dx}{s\omega + \omega_{k'k} + i \cdot 0};$$

$$y = \frac{eqE}{\hbar m \omega^2},$$

$$A(q) = \frac{A(\mathbf{q})}{4\pi}.$$

Для четных  $n$  компоненты дипольного момента вдоль  $\mathbf{E}$  равны нулю.  $g(\mathbf{k})$  — первоначальное распределение по волновому вектору. Функция  $G(q, E, n)$  при некоторых условиях может быть упрощена; такие преобразования выполнены в работах [93, 134].

В подынтегральном выражении формулы (23) разделены влияние поля  $\mathbf{E}$  и взаимодействия с ионом: функция  $G$  зависит только от поля, а  $A(q)$  — от потенциала взаимодействия  $V$ . Эта формула в явном виде показывает взаимосвязь процессов ГМГ и рассеяния электрона на ионе.

Знание дипольного момента дает возможность рассчитать интенсивность излучения, например, на частоте третьей гармоники:  $I_3 \sim N^2 [d(3\omega)]^2 I^2$ , фактор  $I$  описывает влияние условий фазового синхронизма, см. [128, 129]. Вопрос согласования фаз в плазменных средах и сильных световых полях требует специального рассмотрения.

Упомянем также теоретическую работу [138], где предсказана генерация многократных гармоник слабого поля в присутствии сильного.

**6.5. Фазовый синхронизм в сильных полях.** Причина сильной дисперсии оптических сред — наличие резонансов. Если резонансы связанных электронов не играют роли (что имеет место в экстремально сильных световых полях), а плотность среды (в данном слу-

чае—плазмы) мала, то следует ожидать малой дисперсии. В этом случае надо иметь в виду, что линейная восприимчивость среды сильно отличается от таковой в слабом поле. Оптические электроны практически не «чувствуют» ионов, так что линейная восприимчивость первона-чально нейтральной газовой среды в таких условиях близка к восприимчивости плазмы. Таким образом, для диэлектрической проницаемости следует использовать выражение:

$$\epsilon(\omega) = 1 - \frac{\Omega_p^2}{\omega^2},$$

где  $\Omega_p$  — плазменная частота.

При давлении газа порядка 1 торр частота  $\Omega_p$  имеет величину около  $50 \text{ см}^{-1}$  (в случае полной однократной ионизации). Для излучения Nd : YAG-лазера величина  $\epsilon(\omega)$  меньше единицы, но довольно близка к ней:  $|\epsilon - 1| \sim 10^{-5}$ . В еще большей степени это верно для его гармоник. Однако при генерации гармоник в сфокусированных пучках, этого отличия  $\epsilon$  от единицы достаточно, чтобы значительно уменьшить эффективность генерации гармоник (вплоть до нескольких порядков величины). При этом, как оказывается, нельзя не учитывать наличия в плазме ионов с заселенными дискретными уровнями, поскольку это обстоятельство улучшает фазовое согласование: вклад ионов  $\epsilon_d$  в диэлектрическую проницаемость может быть больше единицы (см. раздел 3.1 и рис. 3) и, следовательно, может скомпенсировать отличие  $\epsilon_p$  от единицы; в противоположную сторону.

Проведем оценки на примере генерации третьей гармоники. Интенсивность ГГГ пропорциональна квадрату следующего выражения [128, 129]:

$$I(\Delta k, \xi) = \int_{-\xi}^{\xi} \frac{\exp[(1/2)i b \Delta k (\xi - \xi')]}{(1 + i \xi')^2} d\xi', \quad (24)$$

$$\Delta k = k_{3\omega} - 3k_\omega.$$

Здесь предполагается, что среда имеет протяженность от  $-\xi$  до  $\xi$ :

$$k_\omega = (\omega/c) n(\omega) = (\omega/c) (\epsilon_p(\omega) + \epsilon_d(\omega))^{1/2}$$

(индексы  $p$  и  $d$  соответствуют вкладу плазмы и дискретных состояний). Следует специально отметить, что формула (24) может применяться и в случае сверхсильных полей, когда используется альтернативная теория возмущений. Так, например, в классической одномерной модели (см. п. 2) учет пространственной фазы сводится к замене  $\omega t \rightarrow \omega t - kx$ , и после разложения выражения (13) в ряд Фурье, как в обычной теории возмущений, для  $n$ -й гармоники имеем пространственную фазу источника возмущения в виде  $n kx$ . То же самое имеет место и для других обсуждавшихся моделей.

Если учитывать только плазменный вклад, то для волны накачки с длиной  $\lambda = 1,06 \text{ мкм}$ , интенсивностью  $I_0 = 3 \cdot 10^{13} \text{ Вт}/\text{см}^2$  (соответствующей фокусировке одиночного импульса длительностью 30 псек и энергией 30 мДж — это поле в плазменной среде может считаться «сверхсильным»; см. раздел 4), при плотности плазмы  $10^{18} \text{ см}^{-3}$ , расчет по формуле (24) дает  $I^2$  порядка  $10^{-2}$ . Добавление же ионного вклада в  $\epsilon$  в зависимости от условий может увеличить этот фактор и сделать его порядка единицы.

Оценки интенсивности третьей гармоники по формуле (23) для условий, близким к только что названным, были выполнены в работе [93]; рассчитанный КПД преобразования по энергии оказался около 0,5% при учете только плазменного вклада  $\epsilon$ . При условии же ком-

пенсации дисперсии ионным вкладом (в условиях квазирезонанса) можно ожидать на порядок больших КПД, в согласии с результатами экспериментов [93]. При этом становится понятным оптимизирующее влияние временной задержки между моментом образования плазмы и моментом зондирования: с ее помощью можно добиться выполнения условий квазирезонанса с дискретными состояниями ионов.

Здесь следует также упомянуть работу [94], в которой экспериментально исследована генерация 11-й гармоники йодного лазера в ксеноне, в условиях положительной дисперсии. По-видимому, в условиях этой работы в перетяжке сфокусированного излучения накачки происходил оптический пробой, так что с излучением в основном взаимодействовал возбужденный газ (плазма), находящийся в ограниченной области пространства. Интересно также отметить, что в этом случае вплоть до давлений 0,1 ат интенсивность гармоники квадратично зависела от давления газа (условия фазового согласования не ухудшались).

В настоящее время становится ясно, что генерация многократных гармоник в низкотемпературной плазме по схеме, описанной в разделах 5, 6, может быть использована в практических целях для получения вакуумного ультрафиолетового и, возможно, мягкого рентгеновского излучения, в том числе и перестраиваемого по частоте.

**7. Заключение.** Изучение нелинейно-оптического взаимодействия возбужденных газовых сред с лазерным излучением в настоящее время стимулируется новой волной интереса, вызванной успехами в разработке и применении мощных субпикосекундных лазерных систем. Дальнейшее продвижение в этом направлении потребует совместных усилий специалистов по квантовой электронике, атомной физике, физике низкотемпературной плазмы, квантовой теории рассеяния и, возможно, ядерной физики.

Атомные ядра, как показывают некоторые оценки [139] и предварительные эксперименты [140], вполне могут проявлять себя в процессе взаимодействия со световыми пучками интенсивностью  $10^{20}$  Вт/см<sup>2</sup> и более. В работах [141, 142] показана возможность комбинационного рассеяния излучения видимого диапазона на переходах между состояниями составного ядра [143]; оценки показывают [144], что сечение спонтанного КР на таких переходах всего лишь на 3–5 порядков меньше, чем соответствующие величины для молекул. По мере роста интенсивности будут насыщаться другие механизмы рассеяния света, и возбужденные ядра могут давать свой вклад.

При повышении интенсивности светового поля нельзя не учитывать и появления не рассматривавшегося до сих пор источника оптической нелинейности, связанного с релятивистскими эффектами в движении оптических электронов (прежде всего зависимости массы электрона от его энергии). Соответствующую «релятивистскую» интенсивность светового поля можно оценить из равенства энергий осцилляции электрона под действием электромагнитной волны энергии покоя электрона:

$$I_{\text{рел}} = \frac{m^2 \omega^2 c^3}{4\pi e^2} .$$

Для частот  $\omega$ , соответствующих видимому диапазону,  $I_{\text{рел}} \sim 10^{19}$  Вт/см<sup>2</sup>.

Эффекты квантовой электродинамики начинают сказываться на протекании нелинейных оптических процессов при таких напряженностях световых полей, когда работа оптического электрона на комптонской длине электрона сравняется с энергией покоя электрона — станет возможным оптический пробой вакуума. Правда, соответствующая

характерная интенсивность световой волны фантастически велика:  $I_{\text{кэд}} \sim 10^{30} \text{ Вт}/\text{см}^2$  [145, 146].

Темпы продвижения по этому пути зависят от создателей усилителей фемтосекундных лазерных импульсов; в настоящее время планка высотой  $I \sim 10^{19} \text{ Вт}/\text{см}^2$  уже взята [113]. В ближайшем будущем можно ожидать десятикратного роста реализованной интенсивности каждые два — три года.

Разумеется, выделение эффектов взаимодействия сверхсильных оптических полей  $I > I_{\text{кэд}}$ ,  $I_{\text{реп}}$  со средами в чистом виде представит не-простую задачу, так как они всегда будут проявляться на фоне эффектов квазирезонансного рассеяния света, обсуждавшихся в настоящем обзоре: в сильно возбужденной газовой среде всегда присутствуют электроны плазмы и ионы с заселенными возбужденными состояниями, а световой импульс имеет распределение как во времени, так и в пространстве. Тем не менее, на этом пути исследователей ожидают очень интересные задачи.

Авторы выражают благодарность профессору С. А. Ахманову за ценные замечания и обсуждения, А. Б. Федорову и А. М. Желтикову, участвовавшим в выполнении многих экспериментов и расчетов, а также А. П. Крыловой и Т. А. Кузьминой за помощь при работе с литературой.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- [1] Архипкин В. Г., Попов А. К./УФН. 1987. Т. 153. С. 423.
2. Huber M. C. E., Sandeman R. J./Rep. Prog. Phys. 1986. V. 49. P. 397
3. Luk T. S., Pummer H., Boyer K., Shahidi M., Egger H., Rhodes C. K./Phys. Rev. Lett. 1983. V. 51. P. 110.
4. Ахманов С. А., Гордиенко В. М., Джиджоев М. С., Краюшкин С. В., Платоненко В. Т., Попов В. К./КЭ. 1986. Т. 13. С. 1957.
5. Ахманов С. А., Выслouch B. A., Чиркин А. С. Оптика фемтосекундных лазерных импульсов.—М.: Наука, 1988.
6. Gownia J. H., Arjalingam G., Sorokin P. P., Rothenburg J. E./Opt. Lett. 1986. V. 11. P. 79.
7. Ахманов С. А., Коротеев Н. И. Методы нелинейной оптики в спектроскопии рассеяния света.—М.: Наука, 1981.
8. Luk T. S., Gruber T., Jara H., Johann U., Boyer K., Rhodes C. K./JOSA. Ser. B. 1987. V. 4. P. 847.
9. Гладков С. М., Коротеев Н. И. Лекция на IX международной школе по когерентной оптике.—Ужгород, 1989.
10. Gladkov S. M./Proc. of the XXVI Colloquium Spectroscopicum Internationale.—Post Conference Volume.—Sofia, 1989.—P. 47.
- [11] Ахманов С. А., Хохлов Р. В. Проблемы нелинейной оптики.—М.: ВИНИТИ АН СССР, 1964.
12. Бломберген Н. Нелинейная оптика.—М.: Мир, 1966.
13. Аскарян Г. А./Письма ЖЭТФ. 1966. Т. 4. С. 400.
14. Key M. H., Preston D. A., Donaldson T. P./J. Phys. Ser. B. 1970. V. 3. P. L88.
15. Гладков С. М., Коротеев Н. И., Рычев М. В., Штенцель О./Письма ЖЭТФ. 1986. Т. 43. С. 227.
16. Sevastjanenko V./Beitr. Plasmaphys. 1985. Bd 25. S. 151.
17. Грим Г. Уширение спектральных линий в плазме/Пер, с англ. под ред. Г. А. Кобзева, Г. В. Шолина.—М.: Мир, 1978.
18. Penney C. M./JOSA. 1969. V. 59. P. 34.
19. Chen G., Nee T. J./JOSA Ser. B. 1987. V. 4. P. 1303.
20. Vriens L./Opt. Commun. 1974. V. 11. P. 396.
- [21] Corliss C. N., Bozman W. R. Experimental Transition Probabilities for Spectral Lines of Seventy Elements.—NBS Monograph 53.—1962; перевод: Корлисс Ч., Бозман У. Вероятности переходов и силы осцилляторов 70 элементов.—М.: Мир, 1968.
22. Wiese W. L., Smith M. W., Glennon B. M./Atomic Transition Probabilities. V. 1.—Washington: US Governement Print. Office. NSRDS-NBS-4. 1966.  
Wiese W. L., Smith M. W., Miles B. M./Ibidem. V. 2.—NSRDS-NBS-22, 1969.
23. Фано У., Купер Дж./Спектральные распределения сил осцилляторов в атомах Пер. с англ, под ред. Л. А. Вайнштейна.—М.: Наука, 1972.
24. Vriens L., Adriaansz M. J./Appl. Phys. 1974. V. 45. P. 4422.
25. —»—»—/Opt. Commun. 1974. V. 11. P. 402.

26. Гладков С. М., Желтиков А. М.//Вест. Моск. ун-та. Сер. 3, «Физика, астрономия». 1988. Т. 29. № 2. С. 51.
27. Lange R., Schluter D.//J. Quantit. Spectr. and Radiat. Transfer. 1985. V. 33. P. 237.
28. Schlossberg H.//J. Appl. Phys. 1976. V. 47. P. 2044.
29. Braunlich P., Hall R., Lambropoulos P.//Phys. Rev. Ser. A. 1972. V. 5. P. 1013.
30. Flusberg A., Weingarten R. A., Hartmann S. R.//Phys. Lett. Ser. A. 1973. V. 43. P. 433.
- [31] Vriens L., Adriaansz M.//J. Appl. Phys. 1975. V. 46. P. 3146.
32. Дзюмондзи М., Кобаяси Т., Инаба Х.//КЭ. 1976. Т. 3. С. 790.
33. Cummings J. C., Aeschliman D. P.//Opt. Commun. 1979. V. 31. P. 165.
34. Dasch C. J., Bechtel J. H.//Opt. Lett. 1981. V. 6. P. 36.
35. Chang H., Lin H. M., Hwang M. H.//J. Raman Spectr. 1984. V. 15. P. 205.
36. Габриэлян Ю. К., Нерсисян Г. Ц., Папанян В. О.//Тезисы докладов XII Всесоюзной конференции по когерентной и нелинейной оптике.—М.: Изд-во Моск. ун-та, 1985—Ч. 1. С. 331.
37. Гладков С. М., Коротеев Н. И. Итоги науки и техники. Сер. «Физические основы лазерной и пучковой технологии».—М.: ВИНИТИ АН СССР, 1988. Т. 2. С. 4.
38. Yuratich M. A., Hanna D. C.//J. Phys. Ser. B. 1976. V. 9. P. 729;  
Делоне Н. Б., Крайнов В. П. Основы нелинейной оптики атомных газов.—М.: Наука. 1986.
39. Blombergen N., Lotem H., Linch R. T.//Ind. J. Pure and Appl. Phys. 1978. V. 16, P. 151.
40. Манаков Н. Л., Мармо С. И., Файнштейн А. Г.//ЖЭТФ. 1986. Т. 91. С. 51.
- [41] Greenland P. T.//AERE Harwell.—AERE-R9986. 1981.
42. Гладков С. М., Рычев М. В., Штенцель О.//Опт. и спектр. 1986. Т. 61. С. 6.
43. Ахманов С. А., Бункин А. Ф., Иванов С. Г., Коротеев Н. И.//ЖЭТФ. 1978. Т. 74. С. 1272.
44. Конигстайн Н. Л. Введение в теорию комбинационного рассеяния света./Пер. с англ.—Мир. 1975.
45. Гладков С. М., Коротеев Н. И., Рычев М. В., Сергеев В. Н., Федоров А. Б.//Изв. АН СССР. Сер. физ. 1986. Т. 50. С. 1139.
46. Gladkov S. M., Koroteev N. I.//Lasers and their Applications: Proc. of the 4th Summer School on Quantum Electronics. Sunny Beach, Bulgaria, 1986//Ed. A. Y. Spasov.—Singapore: World Scientific, 1987.—P. 286.
47. Gladkov S. M.//Lasers in Atomic, Molecular, and Nuclear Physics: Proc. of the 4th Intern. School on Laser Applications in Atomic, Molecular and Nuclear Physics. Vilnius, 1987//Ed. V. S. Letochov.—Singapore: World Scientific. 1989.—P. 366.
48. Teets R. E., Bechtel J. H.//Opt. Lett. 1981. V. 6. P. 458.
49. Moore D. S.//Chem. Phys. Lett. 1982. V. 89. P. 131.
50. Quick C. R., Moore D. S.//J. Chem. Phys. 1983. V. 79. P. 759.
- [51] Wang Ahlian, Zou Yinghua//Chin. Phys. 1983. V. 3. P. 1004.
52. Xiaofeng Han, Zhenguo Lu, Zuguang Ma.//Opt. Commun. 1988. V. 67. P. 383.
53. Александров Е. Б., Ахманов С. А., Гладков С. М., Коротеев Н. И., Кулясов В. Н., Федоров А. Б.//Опты. и спектр. 1985. Т. 58. С. 721.
54. Гладков С. М., Коротеев Н. И., Федоров А. Б., Александров Е. Б., Кулясов В. Н.//[36].—С. 252.
55. Александров Е. Б., Ахманов С. А., Гладков С. М., Коротеев Н. И., Кулясов В. Н., Федоров А. Б.//Изв. АН СССР. Сер. физ. 1987. Т. 51. С. 224.
56. Гладков С. М., Желтиков А. М., Ильясов О. С.//Тезисы докладов XX съезда по спектроскопии.—Киев, 1988.—Ч. 1. С. 101.
57. Гладков С. М., Ильясов О. С., Сычев И. А.//Опты. и спектр. 1989. Т. 66. С. 467.
58. Бонч-Бруевич А. М., Пришибельский С. Г., Хромов В. В. и др.//Изв. АН СССР. Сер. физ. 1984. Т. 48. С. 587.
59. Lidow D. B., Falcone R. W., Young J. F., Harris S. E.//Phys. Rev. Lett. 1976 V. 36. P. 462.
60. Бункин С. Б., Гладков С. М., Желтиков А. М., Коротеев Н. И., Морозов В. Б., Рычев М. В., Федоров А. Б.//Опты. и спектр. 1989. Т. 66. С. 1182.
- [61] Fabelinski V. I., Marowsky G., Smirnov V. V., Arnold J.//Chem. Phys. Lett. 1989. V. 156. P. 159.
62. Гладков С. М., Коротеев Н. И., Рычев М. В., Федоров А. Б.//КЭ 1987, Т 14 С., 1086.
63. Ильинский Ю. А., Таранухин В. Д.//КЭ. 1974. № 8. С. 1799,
64. — » — //ЖЭТФ. 1975. Т. 69. С. 833.
65. Ахманов С. А., Жданов Б. В., Ковригин А. И., Першин С. М.//КЭ 1978 Т. 5. С. 833.
66. Асланян Л. С. Автореферат диссертации канд. физ.-мат. наук.—М.: МГУ. 1980.
67. Асланян Л. С., Коротеев Н. И.//КЭ. 1979. Т. 6. С. 942.
68. Гладков С. М., Коротеев Н. И., Рычев М. В., Сергеев В. Н., Федоров А. Б.//Письма ЖТФ. 1986. Т. 12. С. 728.

69. Гладков С. М., Желтиков А. М., Коротеев Н. И., Морозов В. Б., Рычев М. В., Тункин В. Г., Федотов А. Б./Изв. АН СССР. Сер. физ. 1988. Т. 52. С. 2 1 7 .
70. Гладков С. М., Желтиков А. М., Коротеев Н. И., Колева И. С., Федотов А. Б. // Письма ЖТФ. 1989. Т. 15. С. 24.
- [71] Gladkov S., Jeltikov A., Koroteev N., Koleva I., Fedotov A.//[10]. —V. 1(A—L). P. 186.
72. Гладков С. М., Желтиков А. М., Коротеев Н. И., Федотов А. Б./Тезисы докладов II Всесоюзного семинара «Физика быстропротекающих плазменных процессов».—Гродно, БССР, 1989.—С. 68.
73. Лебедев В. В., Плясуля В. М., Трошин Б. И., Чуботаев В. П./Перестраиваемые по частоте лазеры.—Новосибирск: ИТФ СО АН СССР, 1984.—С. 141.
74. — » — //КЭ. 1985. Т. 12. С. 866.
75. Лебедев В. В., Плясуля В. М./КЭ. 1988. Т. 15. С. 127.
76. Ганеев Р. А., Горбушин В. В., Кулагин И. А., Усманов Т., Худайбердиев С. Т. // Письма ЖТФ. 1989. Т. 15. С. 11.
77. Ганимаков Ф. Ш., Коротеев Н. И., Морозов В. Б., Рычев М. В., Саркисов С. В., Дункин В. Г./Ibidem. 1988. Т. 14. С. 1570.
78. Бродниковский А. М., Гладков С. М., Каримов М. Г., Коротеев Н. И./ЖЭТФ 1983. Т. 84. С. 1664.
79. Гладков С. М., Желтиков А. М., Ильясов О. С., Коротеев Н. И., Кулясов В. Н./// Тезисы докладов XIII Всесоюзной конференции по когерентной и нелинейной оптике.—Минск, 1988.
80. — » — //Опт. и спектр. 1988. Т. 65. С. 249
- [81] Payne M. G., Garrett W. R., Ferrell W. R./Phys. Rev. Ser. A. 1986. V. 34. P. 1143.
82. Payne M. G., Garrett W. R., Ferrell W. R., Miller J. C./Ibidem. P. 1165.
83. Басов Н. Г., Быченков В. Ю., Крохин О. Н., Осинов М. В., Рупасов А. А., Сулин В. П., Склизков Г. В., Стародуб А. Н., Тихончук В. Т., Шиканов А. С./// КЭ. 1979. Т. 6. С. 1829. Bethune D. S./Phys. Rev. Ser. A. 1981. V. 23. P. 3139.
84. Bobin J. L./Phys. Rep. 1985. V. 122. P. 173.
85. Key M. H., Hutcheon R. J./Adv. Atom. and Molec. Phys. 1980. V. 16. P. 201.
86. Goldman L. M., Seka W., Tanaka K., Short R., Simon A./Can. J. Phys. 1986. V. 64. P. 969.
87. Безъязычный Н. А., Гладков С. М., Задков В. Н., Каримов М. Г., Коротеев Н. И./Тезисы докладов V Всесоюзного совещания по нерезонансным взаимодействиям оптического излучения с веществом.—Л.: ГОИ, 1981.— С. 375.
88. Бродниковский А. М., Гладков С. М., Задков В. Н., Каримов М. Г., Коротеев Н. И./Письма ЖТФ. 1982. Т. 8. С. 497.
89. Гладков С. М., Коротеев Н. И./Тезисы докладов VI Всесоюзного совещания по взаимодействию оптического излучения с веществом.—Паланга, ЛитССР, 1984.— С. 40.
90. Beiting E. J./Appl. Opt. 1985. V. 24. P. 30Ю.
- [91] Гладков С. М., Коротеев Н. И., Рычев М. В., Федоров А. Б./Письма ЖТФ. 1986. Т. 12. С. 1272.
92. Гладков С. М., Желтиков А. М./Тезисы докладов VII Всесоюзной конференции по взаимодействию оптического излучения с веществом.—Л.: ГОИ, 1988.— С. 221.
- S3. Гладков С. М., Коротеев Н. И., Желтиков А. М., Федотов А. Б./Письма ЖТФ. 1988. Т. 14. С. 1399.
94. Wildenauer J./J. Appl. Phys. 1987. V. 62. P. 41.
95. Burnett N. H., Baldis H. A., Richardson M. C., Enright G. D./Appl. Phys. Lett. 1977. V. 31. P. 172.
96. McLean E. A., Stamper J. A., Ripin B. H., Griem H. R., McMahon L. M., Bodner G. D./Ibidem. P. 825.
97. Carman R. L., Rhodes C. K., Benjamin C. K./Phys. Rev. Ser. A. 1981. V. 24. P. 2649.
98. Гинзбург В. Л. Распространение электромагнитных волн в плазме.—М.: Физматгиз, 1960.
99. Силин В. П. Параметрическое воздействие большой мощности на плазму.—М.: Наука, 1973.
100. Sharma A. K./J. Appl. Phys. 1984. V. 55. P. 690.
- [101] Rosen P./Phys. Fluids. 1961. V. 4. P. 341.
102. Силин В. П./ЖЭТФ. 1964. Т. 47. С. 2254.
103. Blomberg N., Shen Y. R./Phys. Rev. 1966. V. 141. P. 298.
104. Sarachick E. S., Schappert G. T./Ibidem. Ser. D. 1970. V. 1. P. 2738.
105. Sodha M. S., Khanna R. K., Tripathi V. K./Ibidem. Ser. A. 1975. V. 12 P. 219.
106. Max C. E./Phys. Fluids. 1976. V. 19. P. 74.
107. Batani D., Biaconi F., Giulietti A., Giulietti D., Nocera L./Opt. Commun. 1989. V. 70. P. 38.
108. Giulietti D., Banfi G. P., Deha L., Giulietti A., Lucchesi M., Nocera L., Zun C. Z./Laser and Part. Beams. 1988. V. 6. P. 141.

109. Joshi C., Clayton C. E., Marsh K., Sakawa Y., Savager R. L.//Opt. Commun. 1989. V. 70. P. 44.
110. Гладков С. М.//Вестн. Моск. ун-та. Сер. 3 «Физика, астрономия». 1989. Т. 30, № 2. С. 60.
- [111] Делоне Н. Б., Федоров М. В.//УФН. 1989. Т. 158. С. 215.
112. Crance M.//Phys. Rep. 1987. V. 144. P. 118.
113. Conference on Super-intense Laser-atom Physics: Abstracts/Eds J. H. Eberly, W. G. Greewood.—Rochester: University of Rochester. NY 14627. USA, June 1989.
114. McPerson, Gibson G., Jara H., Johann U., McIntyre I. A., Boyer K., Rhodes C. K.//JOSA. Ser. B. 1987. V. 4. P. 595.
115. Lambropoulos P.//Phys. Rev. Lett. 1985. V. 55. P. 2141.
116. Bokor J., Bucksbaum P. H., Freeman R. R.//Opt. Lett. 1983. V. 8. P. 217.
117. Luk T. S., McPerson A., Jara H., Johann U., McIntyre I. A., Schwarzenbach A. P., Rhodes C. K.//Ultrafast Phenomena V//Eds G. R. Fleming, A. E. Siegman.—Berlin: Heidelberg. New York; Tokyo: Springer-Verlag, 1986.—P. GP-6.
118. Johann U., Luk T. S., McPerson A., Schwarzenbach A. P., Boyer K., Rhodes C. K.//Short Wavelength Coherent Radiation: Generation and Applications: Topical Meeting Monteray, Calif., March 24—26, 1986/Eds D. A. Attwood, J. Bokor.—New York: Amer. Inst. Phys., 1986.—P. 157.
119. Johann U., Luk T. S., McIntyre I. A., McPerson A., Schwarzenbach A. P., Boyer K., Rhodes C. K.//Ibidem.—P. 202.
120. Ferray M., L'Huillier A., Li X. F., Lompre L. A., Mainfray G., Manus C.//J. Phys. Ser. B. 1988. V. 21. P. L31.
- [121] Kupersztych J.//Europhys. Lett. 1987. V. 4. P. 23.
122. Эберли Дж. Х., Су К., Джаванайнен Дж.//Изв. АН СССР. Сер. физ. 1989. Т. 53. С. 1101.
123. Eberly J. H., Su Q., Javanainen J.//JOSA. Ser. B. 1989. V. 6. P. 1289.
124. Eberly J. H., Su Q., Javanainen J.//Phys. Rev. Lett. 1989. V. 62. P. 881.
125. Chin S. L., Xiong W., Lavigne P.//JOSA. Ser. B. 1987. V. 4. P. 853.
126. Ou Z. Y., Gage E. C., Magill B. E., Mandel L.//Opt. Commun. 1988. V. 69. P. 1.
127. De Beer D., Usadi E., Hartmann S. R.//Phys. Rev. Lett. 1988. V. 60. P. 1262.
128. Miles K. B., Harris S. E.//IEEE J. Quantum Electron. 1973. V. QE-9. P. 470.
129. Райнтджес Дж. Нелинейные оптические параметрические процессы в жидкостях и газах.—М.: Мир, 1987.
130. Abrines R., Percival I. C.//Proc. Phys. Soc. 1966. V. 88. P. 861.
- [131] Kyrala G. R.//JOSA. Ser. B. 1987. V. 4. P. 731.
132. Grochmalicki J., Mostowski J., Trippenbach M.//J. Phys. Ser. B. 1988. V. 21. P. 1673.
133. Cohen J. S.//Phys. Rev. Ser. A. 1982. V. 26. P. 3008.
134. Ахманов С. А., Гладков С. М., Коротеев Н. И., Желтиков А. М. Препринт физического факультета МГУ № 5.—Москва, 1988.
135. Бункин Ф. В., Федоров М. Ф.//ЖЭТФ. 1965. Т. 49. С. 1215.
136. Kroll N. M., Watson K. M.//Phys. Rev. Ser. A. 1973. V. 8. P. 804.
137. Елютин П. В. Теоретические основы квантовой радиофизики.—М.: Изд-во Моск. ун-та, 1982.
138. Федоров М. В.//ЖЭТФ. 1975. Т. 41. С. 849.
139. Boyer K., Luk T. S., Rhodes C. K.//Phys. Rev. Lett. 1988. V. 60. P. 557.
140. Biedenharn L. C., Rinker C. A., Solem J. C.//Bull. Am. Phys. Soc. 1987. V. 32. P. 1043.
- [141] Зарецкий Д. Ф., Ломоносов В. В.//ЯФ. 1985. Т. 41. С. 655.
142. Гладков С. М.//4-я международная школа по применению лазеров в атомной, молекулярной и ядерной физике.—Вильнюс, 1987.—С. 47.
143. Пикельнер Л. Б., Попов Ю. П., Шарапов Э. И.//УФН. 1982. Т. 137. С. 39.
144. Головинский П.//1X международная школа по когерентной оптике.—Ужгород, УССР, 1989.—С. 7.
145. Папанян В. О., Ритус В. И.//Тр. ФИАН СССР. 1986. Т. 168. С. 120, 141.
146. Гриб А. А., Мамаев С. Г., Мостапенко В. М. Вакуумные квантовые эффекты в сильных полях.—М.: Энергоатомиздат, 1988.