

сти мощного электрич. поля  $E$  эл.-магн. (в частности, световой) волны. Описывается вектором нелинейной поляризации  $P_{нл} = P - P_{лин}$ . Такая зависимость проявляется при облучении среды интенсивными световыми (лазерными) пучками, в к-рых напряжённость электрич. поля сравнима с внутриатомными и внутримолекулярными полями. Н. п. является одним из видов нелинейного отклика вещества на действие эл.-магн. полей и может быть обусловлена разл. физ. механизмами: ангармонизмом движения связанных электронов в веществе; ориентацией в сильном электрич. поле молекул, обладающих анизотропией *поляризуемости*; локальным изменением плотности среды за счёт *электрострикции*; перераспределением частиц по энергетич. уровням при поглощении эл.-магн. излучения и т. д. Вид зависимости Н. п. от амплитуды электрич. поля световой волны в общем случае определяется конкретным механизмом нелинейности, величиной напряжённости поля  $E$  и характером её изменения во времени. Часто Н. п. представляют в виде разложения по степеням напряжённости  $E$  электрич. поля; в качестве коэф. ряда при этом выступают тензоры нелинейных восприимчивостей.

Нелинейной поляризацией объясняют возникновение таких эффектов, как генерация гармоник, смещение частот, самовоздействие и кроссвзаимодействие эл.-магн. волн, *вынужденное рассеяние света*, нелинейное поглощение, эл.-оптич. и магн.-оптич. эффекты и т. д. (подробнее см. *Нелинейные восприимчивости и Нелинейная оптика*).

К. Н. Дравович.

**НЕЛИНЕЙНАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ** — совокупность методов оптич. спектроскопии, базирующихся на применении эффектов *нелинейной оптики*. Методами Н. с. исследуют нелинейные оптич. восприимчивости — их частотную дисперсию, симметричные свойства, изменения во времени и т. п., а также изменения линейных оптич. характеристик вещества (показателя преломления, коэф. поглощения, анизотропии и оптич. активности), вызванные нелинейным взаимодействием мощного оптич. (лазерного) излучения с исследуемым веществом. Н. с. относится к *лазерной спектроскопии*, т. к. для реализации всех методов Н. с. используется лазерное излучение одной или неск. длин волн. Одной из разновидностей Н. с. является *активная лазерная спектроскопия*. Первые работы по Н. с. появились в 1964—66, широкое развитие она получила после создания плавно перестраиваемых по частоте лазеров, а также лазеров со стабилизиров. узкими линиями генерации, лазеров, испускающих сверхкороткие световые импульсы с длительностью в пико- и фемтосекундном диапазонах, и др.

Исследования частотной и пространственной дисперсий нелинейных оптич. свойств — источник принципиально новой, ранее недоступной эксперим. исследованию информации о веществе. В Н. с. изучают также спектральные характеристики вещества, к-рые можно изучать и методами обычной линейной спектроскопии (положение и форма *контура спектральных линий*, сечения взаимодействий, поляризац. характеристики оптич. резонансов и т. п.), однако методы Н. с. часто обладают более высокой точностью, значительно более высоким отношением сигнала к шуму, бóльшим спектральным, временным и пространственным разрешениями.

**Спектроскопия насыщения.** В этом методе монохроматич. лазерное излучение (излучение накачки) насыщает резонансную неоднородно уширенную спектральную линию поглощения (или излучения), а гораздо более слабый лазерный пучок, распространяющийся коллинеарно (сонаправленно либо навстречу) пучку накачки, зондирует индуциров. изменения в спектральном контуре линий (рис. 1). Мощное узкополосное лазерное излучение накачки вызывает перераспределение населённости уровней энергии системы. Наиб. возмущению подвергается распределение населённо-

стей уровней энергии частиц, одна из резонансных частот к-рых совпадает с частотой излучения накачки  $\omega_n$ . Неоднородно уширенная линия поглощения (испускания) квантовой системы вблизи  $\omega_n$  насыщается. Если одновременно или с небольшой задержкой во времени зондировать систему менее интенсивным излучением (пробной волной) с перестраиваемой частотой  $\omega$ ,



то в спектральном контуре поглощения (усиления) этой волны образуется «провал» на частоте  $\omega_n$ . Длительность существования провала определяется временем жизни частиц на возбужденном уровне. Перестройкой частоты пробного пучка удаётся измерить естеств. форму линий перехода, совпадающую с формой провала в «насыщенном» спектре поглощения (усиления) и обычно скрытую неоднородным (в газе — доплеровским) уширением. Этим методом можно также определить времена релаксации двухуровневой системы. Т. о., Н. с. позволяет измерять параметры одиночного оптич. резонанса, не поддающиеся измерению методами линейной спектроскопии. Циркулярно поляризованная волна накачки может индуцировать в среде *гиротропию* для пробной световой волны.

**Спектроскопия выжигания провалов** примыкает к спектроскопии насыщения. Она основана на селективном возбуждении монохроматич. лазерным излучением однородной группы атомов (молекул) примеси в охлажденной твердотельной матрице, к-рое сопровождается фотохим. или иным превращением возбужденных частиц, кардинально изменяющим их спектры поглощения (испускания). В результате в неоднородно уширенном спектральном контуре поглощения (испускания) примесных частиц образуется узкий провал, к-рый обнаруживается при сканировании частоты слабоинтенсивного зондирующего излучения по полосе поглощения (либо при изучении спектрального состава люминесценции) примесных частиц. Форма спектральной линии и ширина «выжженного» провала определяются однородной формой и шириной линии поглощения (испускания) отд. частицы. Время жизни спектрального провала может длиться от неск. микросекунд до многих часов, а быть ещё более продолжительным в зависимости от природы фотопревращения, испытываемого примесной частицей, и темп-ры образца. В предельном случае необратимого фотопревращения и полного исключения миграции невозбужденных частиц по матрице за счёт глубокого охлаждения образца спектральный провал может существовать неограниченно долго.

Т. о., метод позволяет исследовать тонкую структуру оптич. спектров примесных частиц, находящихся в неоднородном кристаллич. поле матрицы, и в обычных условиях скрытую под широким неоднородно уширенным контуром, и, следовательно, получать спектроскопич. информацию, недоступную линейным методам.

**Спектроскопия двух- и многофотонного поглощения.** В этом методе исследуемая пара уровней квантовой системы (атома, молекулы) возбуждается перекрывающимися сонаправленными (или встречными) двумя или неск. лазерными пучками, причем сумма частот возбуждения ( $\omega_1 + \omega_2$  или  $\omega_1 + \omega_2 + \omega_3$ ) должна совпадать с частотой перехода 1—2. Происходит одноврем. поглощение двух (или неск.) фотонов из лазерных пучков, сопровождаемое квантовым переходом 1—2 (рис. 2). О возбуж-