

зволяет измерять время жизни возбуждённого уровня и дипольный момент перехода.

Затухание свободной поляризации наблюдается в виде излучения, испускаемого атомами (молекулами) среды после их возбуждения коротким импульсом резонансного излучения. Оптич. импульс наводит в ансамбле частиц макроскопич. поляризацию (суммарный дипольный момент всех возбуждённых светом частиц), благодаря чему и после окончания импульса возбуждённые частицы продолжают испускать излучение частоты, резонансной частоте перехода. Вследствие дефазировки колебаний отд. диполей (в газе — вследствие поступат. движения частиц, т. е. доплеровской дефазировки) происходит затухание макроскопич. поляризации. Этот эффект наблюдается и при любом ступенчатом переключении резонансного оптич. излучения (обычно он происходит одновременно с оптич. пугациями в течение первого периода пугаций) и используется в спектроскопии высокого разрешения.

Простейший вариант оптич. эхо-спектроскопии (спектроскопии на основе светового эха) реализуется при наблюдении зависимости амплитуды сигнала светового эха от времени задержки эл.-магн. излучения, резонансно взаимодействующего с ансамблем частиц среды. Сигнал светового эха появляется после 2-го импульса через время, равное задержке 2-го импульса относительно 1-го. Оптич. эхо есть, по существу, повторное возникновение эффекта затухания свободной поляризации, к-рое сопровождается 1-й импульс. 2-й импульс нужен для того, чтобы восстановить одинаковую фазу возбуждённых 1-м импульсом атомных диполей, потерянную к моменту прихода 2-го импульса вследствие процессов релаксации. Для регистрации оптич. эха площадь 1-го импульса (интеграл от амплитуды напряжённости оптич. поля по всей длительности импульса, умноженный на дипольный момент перехода d_{12}) должна быть равна $\pi/2$, второго — π . Спектроскопия светового эха — один из наиб. мощных инструментов изучения столкновительных релаксац. процессов в газах. Время затухания сигнала светового эха равно эфф. времени жизни возбуждённого уровня, определяемого атомными (молекулярными) столкновениями и спонтанным излучением. Методами спектроскопии светового эха измеряют также сверхтонкую структуру возбуждённых состояний.

Помимо описанного метода двухимпульсного эха находят применение спектроскопия вынужденного (трёхимпульсного) эха и спектроскопия цуга эха типа Карра — Парселла.

Когерентная спектроскопия комбинационного рассеяния (стационарная и нестационарная; см. *Активная лазерная спектроскопия*) позволяет измерять времена релаксации, изучать процессы внутри- и межатомного переноса энергии возбуждения для трёх- и более уровней систем (рис. 5).

Спектроскопия трёх- и четырёхволнового смешения — один из наиб. распространённых методов Н. с. — представляет собой варианты когерентной активной лазерной спектроскопии поглощения и (или) рассеяния света. В этих методах регистрируется частотная зависимость интенсивности (поляризации, фазы) световой волны, генерируемой в исследуемой среде за счёт трёх- или четырёхволнового смешения (с участием *нелинейной восприимчивости* 2-го и 3-го порядков соответственно), т. е. за счёт нелинейных оптич. процессов, при к-рых

$$\omega_c = \omega_1 \pm \omega_2 \quad (1)$$

или

$$\omega_c = \omega_1 \pm \omega_2 \pm \omega_3, \quad (2)$$

где ω_c — частота регистрируемой волны сигнала, $\omega_1, \omega_2, \omega_3$ — частоты лазерных волн накачки, вводимых в исследуемую среду извне.

Частотная зависимость исследуемого параметра волны сигнала смешения испытывает резонансное измене-

ние, когда частота одной или неск. волн накачки либо к.-л. их линейная комбинация ($\omega_1 \pm \omega_2; \omega_1 \pm \omega_3; \omega_2 \pm \omega_3$ и т. п.) совпадает с частотой соответствующего разрешённого правилами отбора перехода в исследуемой системе. Для получения сигнала достаточно большой интенсивности используют явление синхронной генерации сигнала смешения, когда одновременно с условиями (1) или (2) выполняются условия фазового синхронизма для волновых векторов k_c, k_1, k_2, k_3 взаимодействующих волн:

$$k_c = k_1 \pm k_2 \quad (3)$$

либо

$$k_c = k_1 \pm k_2 \pm k_3. \quad (4)$$

В центросимметричных средах, обладающих макроскопич. центром инверсии (газы, жидкости и плазма в отсутствие внеш. воздействий, стёкла, аморфные твёрдые тела, кристаллы определ. классов), квадратичные процессы при трёхволновом смешении запрещены. Поэтому наиб. универсальна спектроскопия четырёхволнового смешения. Она обладает высоким спектральным разрешением, определяемым только шири-

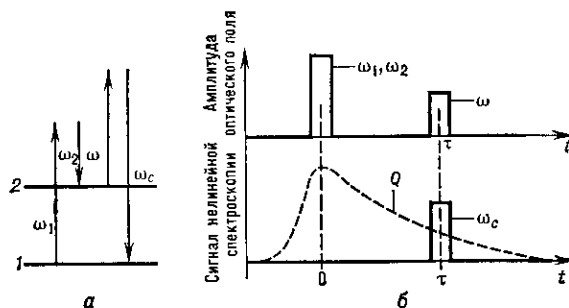


Рис. 5. Когерентная активная спектроскопия комбинационного рассеяния: а — квантовые переходы; б — временной ход процессов нестационарной когерентной спектроскопии комбинационного рассеяния. Сигнал с частотой $\omega_c = \omega + (\omega_1 - \omega_2)$ регистрируется спустя время задержки τ (переменное) после воздействия двух импульсов лазерной накачки (частоты ω_1, ω_2) (внизу пунктиром показан временной ход амплитуды Q когерентных молекулярных колебаний, возбуждённых импульсами накачки).

нами спектральных линий с частотами $\omega_1, \omega_2, \omega_3$. Т. к. эти ширины могут быть сделаны предельно малыми, спектральная разрешающая способность G приборов, используемых в этом методе (типичные значения $G = \omega/\Delta\omega \sim 10^9 - 10^{11}$), на несколько порядков выше, чем для традиц. спектральных приборов или фурье-спектрометров (для них $G \sim 10^5 - 10^7$). При этом область дисперсии для нелинейных спектрометров может быть аномально велика, она определяется шириной области перестройки частоты одного или нескольких перестраиваемых лазеров накачки и может занимать значит. часть видимого спектра. При сочетании спектроскопии четырёхволнового смешения с Н. с. насыщения удаётся исключить доплеровское уширение. Пространств. разрешение методов смешения частот определяется размерами области перекрытия всех взаимодействующих пучков.

С помощью методов Н. с. смешения может быть достигнуто очень высокое временное разрешение. Для этого излучение накачки направляют в среду в виде коротких импульсов, синхронизованных с изучаемыми процессами с точностью, не меньшей, чем длительность используемых оптич. импульсов, и вводится переменная, строго контролируемая временная задержка между началом изучаемого процесса и моментом зондирования. В таком случае временное разрешение схемы регистрации определяется длительностью лазерных импульсов, к-рые могут выбираться в нано- и даже в фемтосекундном диапазоне (см. *Фемтосекундная*