

потоков излучения и в соответствующем возбуждении облучаемого вещества. Процесс, обратный М. п., — многофотонное индуциров. испускание под действием того же излучения, сопровождающееся квантовым переходом в атоме вещества из возбуждённого состояния  $|2\rangle$  в нижнее  $|1\rangle$ .

Состояние  $|2\rangle$  может относиться как к дискретному, так и к непрерывному спектру. Если  $|2\rangle$  принадлежит ионизац. континууму атома или молекулы, то результатом М. п. является *многофотонная ионизация*; если же  $|2\rangle$  относится к непрерывному спектру колебат.

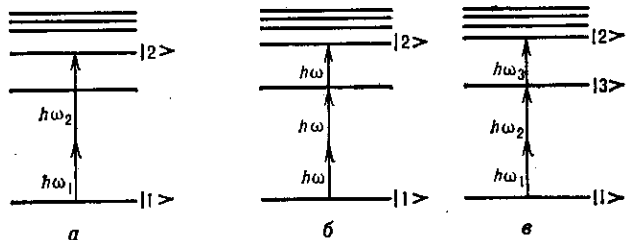


Рис. 1. Примеры процессов многофотонного поглощения: а — двухфотонное поглощение; б — вырожденное по частоте трёхфотонное поглощение; в — трёхфотонное поглощение при наличии промежуточного двухфотонного резонанса.

состояний молекулы, то следствием М. п. является *инфракрасная многофотонная диссоциация*.

Для описания процессов М. п. используют квантовомеханическую *возмущенной теории*. Если падающее излучение содержит монохроматич. компоненты на частотах  $\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_m$  с интенсивностями  $I_1, I_2, \dots, I_m$  соответственно, то для вероятности  $m$ -фотонного перехода из состояния  $|1\rangle$  в состояние  $|2\rangle$  теория возмущений даёт:

$$W_{12}^{(m)}(\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_m) \propto \left| Q_{12}^{(m)} \right|^2 I_1 I_2 \dots I_m g(\Delta). \quad (1)$$

Здесь  $\Delta = \omega_{21} - \sum_{i=1}^m \omega_i$  — разность собств. частоты  $\omega_{21} = (E_2 - E_1)/\hbar$  и суммы частот поглощаемых фотонов; ф-ция  $g(\Delta)$  отражает резонансный характер М. п. Для переходов между дискретными уровнями часто применима аппроксимация:  $g(\Delta) = \gamma_{21}/(\Delta^2 + \gamma_{21}^2)$ , где  $\gamma_{21}$  — однородная полуширина перехода. Т. н. составной матричный элемент  $Q_{12}^{(m)}$  в теории многофотонных процессов аналогичен матричным элементам переходов для однофотонного поглощения и испускания. Наиб. простой вид  $Q_{12}^{(m)}$  принимает для низшего из процессов М. п. — двухфотонного поглощения ( $m = 2$ ); в электродипольном приближении

$$Q_{12}^{(2)} = \frac{1}{\hbar} \sum_n \left[ \frac{(d_{1n} \cdot e_1)(d_{n2} \cdot e_2)}{\omega_{n1} - \omega_1} + \frac{(d_{1n} \cdot e_2)(d_{n2} \cdot e_1)}{\omega_{n1} - \omega_2} \right]. \quad (2)$$

где  $d_{ij}$  — матричные элементы оператора дипольного момента,  $e_i$  — орт-вектор поляризации полей на частотах  $\omega_i$ . Суммирование в (2) производится по всем промежуточным состояниям  $n$ .

Ф-лы типа (1) и (2) для двухфотонного поглощения были получены М. Гёпперт-Майер (М. Goerpert-Mayer) ещё в 1931, однако экспериментально этот эффект был обнаружен только после создания лазеров, т. к. интенсивности обычных источников излучения недостаточны для его регистрации.

Из (1), (2) следуют осн. особенности М. п. 1) Правила отбора для М. п. определяются составным матричным элементом  $Q_{12}^{(m)}$  и отличаются от таковых для однофотонного поглощения. Так, в дипольном приближении двухфотонные переходы разрешены между состояниями одинаковой чётности, тогда как однофотонные — между состояниями разной чётности (см. *Отбора правила*).

Для атомов с одним валентным электроном правила отбора по орбитальному ( $L$ ) и магнитному ( $M$ ) квантовым числам имеют вид:

$$\Delta L = -m, -m + 2, \dots, m - 2, m;$$

$$\Delta M = q_1 + q_2 + \dots + q_m,$$

где  $q_i = 0, \pm 1$  для линейной (0)  $\pi$ , правой (+) и левой (−) круговой  $\sigma^\pm$  поляризации излучения. Благодаря иным правилам отбора спектры М. п. содержат новую информацию о веществе, отсутствующую в спектрах однофотонного поглощения (рис. 2).

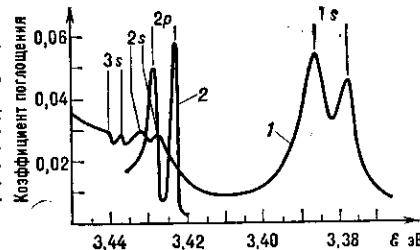


Рис. 2. Спектры однофотонного (кривая 1) и двухфотонного (2) поглощений в ZnO. Согласно правилам отбора, в однофотонном спектре возникают только  $s$ -экзитонные линии, в двухфотонном — только  $p$ -экзитонные линии.

2) Мощность, поглощаемая на частоте  $\omega_i$  единицей объёма, равна  $P_i = \hbar \omega_i W_{12}^{(m)} (N_1 - N_2)$  ( $N_{1,2}$  — плотность числа частиц в ниж. и верх. состояниях) и является нелинейной ф-цией интенсивности падающего излучения. В частности, если имеет место  $m$ -фотонное поглощение из одного монохроматич. пучка с интенсивностью  $I$  и изменением населённостей  $N_i$  можно пренебречь, то  $P \propto I^m$ .

3) М. п. существенно зависит от поляризации излучения. Эта зависимость полностью определяется составным матричным элементом  $Q_{12}^{(m)}$  и имеет место даже в изотропных средах и в средах с кубич. симметрией (индуциров. анизотропия).

4) Скорость М. п. резко возрастает, если хотя бы одна из частот излучения приближается к резонансу с переходом в промежуточное состояние или осуществляется промежуточный многофотонный резонанс.

5) В газовых средах, когда существует вклад в уширение линий даёт *Доплера эффект*, М. п. зависит от взаимной ориентации волновых векторов  $k_i$  падающего излучения. Атом (или молекула), движущийся со скоростью  $v$ , воспринимает частоту падающей световой волны, изменённую за счёт линейного эффекта Доплера на величину  $-k_i v$ . Суммарный доплеровский сдвиг для всех волн, участвующих в М. п., равен  $-\sum_{i=1}^m k_i v$ , т. е. пропорционален длине суммарного волнового вектора падающих волн  $\sum_{i=1}^m k_i$ . Очевидно, что соответствующим подбором направлений распространения световых потоков можно существенно уменьшить влияние эффекта Доплера либо полностью его исключить, если  $\sum_{i=1}^m k_i = 0$ .

Для двухфотонного поглощения это достигается в случае встречных световых потоков с одинаковой частотой и используется в *нелинейной спектроскопии* сверхвысокого разрешения атомов и молекул.

Эффекты распространения монохроматич. эл.-магн. волн в условиях М. п. удобно описывать с помощью тензора *нелинейной восприимчивости*  $\chi^{(2m-1)}(\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_m)$  (ранг тензора —  $2m$ ; см. *Нелинейная оптика*). Мнимая часть этого тензора  $\text{Im} \chi^{(2m-1)}$  ответственна за затухание волн в условиях  $m$ -фотонного поглощения; соответственно  $\text{Re} \chi^{(2m-1)}$  характеризует нелинейное изменение показателей преломления под действием падающих полей.