

дении системы судят либо по уменьшению интенсивности одного (обоих, неск.) пучка накачки на выходе из исследуемой среды, либо по вторичным эффектам: люминесценции возбуждённых атомов, локальному нагреву среды в области взаимодействия пучков за счёт безызлучательного перехода энергии электронного возбуждения атома в колебат. и поступат. энергию, генерации акустич. колебаний при поглощении модулиров. излучения, изменению транспортного сечения атомов при возбуждении и т. п. При воздействии на газ из исследуемых частиц двух

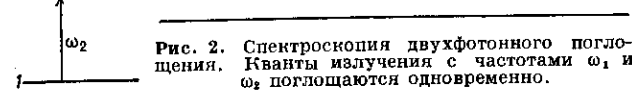


Рис. 2. Спектроскопия двухфотонного поглощения. Кванты излучения с частотами ω_1 и ω_2 поглощаются одновременно.

встречных световых волн одинаковой частоты доплеровского уширения двухфотонного перехода полностью подавляется: доплеровские смещения частот поглощаемых атомом одинаковых фотонов, движущихся в противоположных направлениях, компенсируются; форма линии двухфотонного поглощения при сканировании частоты встречных волн совпадает с формой однородно уширенной линии одиночного атома; этот метод наз. бездоплеровской двухфотонной спектроскопией. Спектроскопия двухфотонного поглощения позволяет изучать разл. поляризац. эффекты, определяемые состоянием поляризации взаимодействующих волн и свойствами симметрии многофотонного перехода (см. Многофотонное поглощение).

Спектроскопия двойного резонанса реализуется при резонансном взаимодействии двух достаточно интенсивных монохроматич. световых полей с одной и той же квантовой системой (атомом, молекулой и т. п.; рис. 3). Резонансное лазерное излучение с частотой ω_1 изменяет распределение населённости энергетич. состояний поглощающей системы, а лазерное излучение с частотой ω_2 вызывает переходы между возбуждёнными (ранее не заселёнными) состояниями кван-

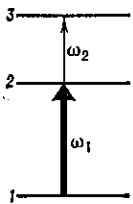


Рис. 3. Спектроскопия двойного резонанса. Сильное поле с частотой ω_1 возбуждает квантовую систему (переход 1—2), а слабое поле с частотой ω_2 регистрирует наличие резонансного поглощения на частоте перехода 2—3.

товой системы. При этом спектры поглощения из возбуждённого состояния оказываются свободными от доплеровского уширения. Возможна также Н. с. тройного и более высокой кратности резонанса. В отличие от спектроскопии двух- или многофотонного поглощения, в спектроскопии двойного резонанса происходит реальное заселение промежуточных энергетич. состояний исследуемой квантовой системы, так что возбуждённые промежуточных уровней и их зондирование могут быть разнесены во времени. В зависимости от того, в каком диапазоне длин волн лежат ω_1 и ω_2 , наблюдаются двойные резонансы: в видимом диапазоне (ω_1 и ω_2 — в видимом диапазоне), ИК—видимый, УФ—видимый, ИК—ИК, ИК—СВЧ, ИК—УФ и т. п. Переходы из возбуждённых состояний в более высоколежащие можно зондировать не только по поглощению, но и изучать по вторичным эффектам: люминесценции из высоковозбуждённого состояния (уровень 3 на рис. 3); дополнит. локальному нагреву среды, вызываемому поглощением фотонов с частотами ω_1 , ω_2 и последующей безызлучательной передачей энергии возбуждения в поступат. кинетич. энергию частиц; генерации акустич. колебаний при поглощении модулиров. световых волн и т. п. Возможна также регистрация спектров по схеме когерентной активной спектроскопии из возбуждённых состояний и по др. схемам четырёхволнового смещения (см. ниже).

Когерентная нелинейная спектроскопия нестационарных процессов включает спектроскопию оптических нутаций, спектроскопию затухания свободной поляризации и оптич. эхо-спектроскопию. Эти виды Н. с. — аналоги нестационарных вариантов спектроскопии ядерного магн. резонанса. С их помощью получают информацию об уединённых оптич. резонансах в обычных спектрах, либо скрытую неоднородным уширением спектральных линий, либо вовсе не проявляющуюся в линейных спектрах (рис. 4). Когерентные переходные процессы возникают при ступенчатом изменении

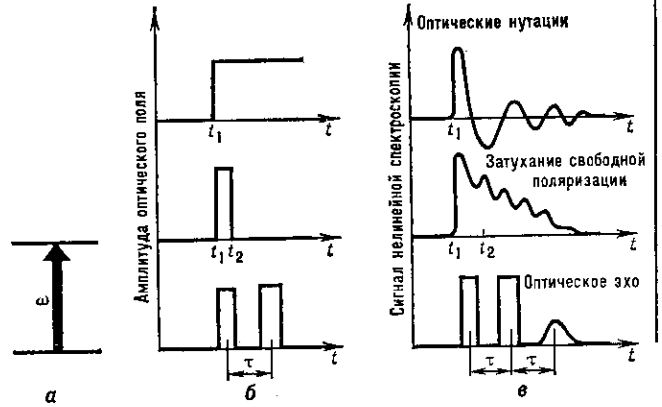


Рис. 4. Схемы когерентной нелинейной спектроскопии нестационарных процессов: а — двухуровневая система, с которой нестационарно взаимодействует резонансное оптическое поле; б — зависимости от времени амплитуды оптического поля в трёх различных схемах нелинейной когерентной спектроскопии: вверху — ступенчатое включение резонансного оптического поля в момент времени t_1 ; средняя диаграмма — импульсное резонансное воздействие оптического поля на двухуровневую систему (t_1 , t_2 — моменты начала и конца оптического импульса); внизу — резонансное воздействие оптического поля на двухуровневую систему в виде двух последовательных коротких импульсов, разделённых интервалом t ; в — временные диаграммы сигналов нелинейной спектроскопии, соответствующих амплитудам оптического поля на рис. б: вверху — сигнал оптических нутаций в амплитуде резонансной оптической волны, прошедшей сквозь образец; средняя кривая — сигнал затухания свободной поляризации излучения, прошедшего через образец; внизу — сигнал оптического эха в виде импульса излучения спустя время t после воздействия второго импульса.

(включении, выключении) резонансного взаимодействия между оптич. излучением и исследуемой квантовой системой. Часто удобнее осуществлять быстрое «штарковское переключение» частоты перехода в атоме (молекуле) т. о., чтобы она вступила в резонанс с частотой оптич. поля. Изменение частоты перехода происходит в результате Штарка эффекта, возникающего при наложении ступенчатого электрич. поля, напряжённость к-рого перпендикулярна лазерному лучу; величина напряжённости поля выбирается такой, чтобы вызванный им штарковский сдвиг атомного (молекулярного) уровня скомпенсировал расстройку между частотами лазерного излучения и исследуемого перехода.

Оптич. нутации — затухающие осцилляции интенсивности излучения на выходе из исследуемой среды — возникают сразу после включения (выключения) резонансного взаимодействия волны с частицами среды. Для всех частиц, вступивших в резонанс с возбуждающим излучением, возникает синфазные колебания населённости возбуждённого уровня энергии, что и определяет осцилляции интенсивности излучения. Время затухания оптич. нутаций определяется временем жизни возбуждённого уровня энергии, а период нутаций — обратной величиной частоты Раби Ω_R (в точном резонансе $\Omega_R = d_{12} E/\hbar$, где d_{12} — дипольный момент перехода 1—2, E — амплитуда электрич. поля резонансной эл.-магн. волны). Спектроскопия оптич. нутаций по-