

**А.В. Еньшин**

**РАСПРОСТРАНЕНИЕ БИГАРМОНИЧЕСКОГО ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ,  
РЕЗОНАНСНОГО СПИНОВЫМ ЧАСТОТАМ,  
ЧЕРЕЗ АТМОСФЕРНЫЕ И ИНЕРТНЫЕ ГАЗЫ. Ч. 1**

Проведено описание эксперимента на стенде для исследования процесса рассеяния резонансной бигармоники атмосферными и инертными газами. Представлена спектрограмма частотно-углового спектра комбинационного рассеяния света на магннных поляритонах в атмосфере. По результатам ее обработки найдены значения частот и волновых векторов магннных поляритонов, участвующих в процессе. Показано, что в диапазоне давлений  $760 - 10^{-4}$  мм рт.ст. при заполнении рабочей камеры воздухом значения регистрируемых сигналов не изменяются. Приведены результаты исследований степени участия в процессе кислорода.

**Введение**

Известно, что применение активной спектроскопии комбинационного рассеяния света (АСКР) в газовом анализе позволяет значительно увеличить уровень детектируемого сигнала по сравнению со спонтанным рассеянием [1]. Однако ее использование для дистанционного зондирования атмосферы ограничено трассами протяженностью несколько десятков метров из-за невозможности выполнения условий фазового синхронизма при коллинеарном распространении спектральных компонент бигармоники. Поскольку длина когерентного взаимодействия лучей определяется соотношением  $l_{\text{ког}} = \pi / \Delta k$ , то естественно, что для ее увеличения необходимо уменьшать фазовую расстройку  $\Delta k$ , т.е. разностную частоту бигармоники. Данная работа посвящена исследованию такой возможности для бигармонического излучения с разностной частотой, резонансной спиновым частотам парамагнитных атмосферных газов, и составляющей в экспериментах около 500 МГц, что на три порядка величин меньше ранее использованных при решении задач атмосферной оптики методами АСКР.

**Постановка эксперимента**

Эксперимент проводился на специальном стенде, в котором применялась дифференциальная схема измерений, позволяющая достигать точности не менее одного процента [2]. Изучаемый спектр процесса рассеяния бигармоники на элементарных возбуждениях среды, связанных с движением ядер и электронов, предварительно фотографируется на высокочувствительную фотопленку и далее исследуется по фотоэлектрической методике. Дифференциальная схема измерений реализована следующим образом. Излучение бимодального лазера с помощью полупрозрачного зеркала разделяется на два луча, один из которых проходит через рабочую камеру, окно в модуляторе и далее объективом направляется на входную щель спектрального прибора, а другой – опорный, через систему поворотных и полупрозрачных зеркал проходит известный путь в воздухе и также направляется объективом на входную щель прибора, где совмещается с рабочим лучом. Модулятор света, вращаясь с заданной частотой, пропускает последовательно на входную щель спектрального прибора световые сигналы с рабочей и опорной ветвей схемы, которые после прохождения зеркальных объективов и диспергирующего элемента попадают на световоды, расположенные в фокальной плоскости камерного объектива прибора, и далее на блок фотоэлектронных умножителей. С ФЭУ сигналы поступают в блок обработки информации, в котором запоминаются и сравниваются по амплитуде. Разностный сигнал усиливается и регистрируется на осциллографе.

При изменении плотности или химического состава газа в рабочей камере соответственно изменяется и амплитуда регистрируемого разностного сигнала. По результатам обработки

данных удается получить зависимость сечения рассеяния исследуемого процесса от варьируемых параметров газовой среды в рабочей камере.

Освещение входной щели прибора как при фотографической, так и фотоэлектрической регистрации осуществляется одинаковым образом: щель спектрографа с высокой точностью устанавливается в фокальной плоскости приемного объектива, расположенного соосно с лучом лазера. В этом случае по высоте щели спектрографа получается развертка по углу рассеяния, а середина щели соответствует рассеянию точно вперед [3]. В качестве источника бимодального света использовался He – Ne-лазер с длиной резонатора около 30 см, в котором для подавления поперечных мод высших порядков использовались диафрагмы как внутри резонатора, так и вне его. Рабочая камера – кварцевая трубка диаметром 5 см и длиной 170 см – заполнялась воздухом при комнатной температуре. Давление в камере варьировалось в диапазоне  $760 \div 10^{-4}$  мм рт.ст.

Контроль спектрального состава лазерного излучения осуществлялся с помощью интерферометра Фабри – Перо типа ИТ-51 с кольцом толщиной 3 см, что обеспечивало разрешение спектральных линий  $\delta \lambda = 0,002 \text{ \AA}$ , достаточное для надежного разделения на спектрограмме контролируемых лазерных линий. Для обеспечения требуемого температурного режима эксплуатации интерферометра (колебания температуры помещения по времени измерений не должны превышать  $0,25^\circ\text{C}$ ) принимались специальные меры.

Контроль давления в рабочей камере осуществлялся в диапазоне давлений 760-1 мм рт.ст. – вакуумметром класса точности 1; в диапазонах  $1 - 10^{-2}$  мм рт.ст. и  $10^{-2} - 10^{-5}$  мм рт.ст. – вакуумметром ионизационно-термопарным типа ВИТ-2 и преобразователями манометрическими – термопарным ПМТ-2 и ионизационным ПМИ-2 соответственно. Световоды имели диаметр около 3 мм, что позволяло надежно перекрывать центральную зону спектра, состоящую из пяти линий. Измерения проводились как в стоксовой, так и антистоксовой частях регистрируемого спектра на расстояниях 7 см от линии излучения лазера, что соответствовало в длинах волн примерно  $500 \text{ \AA}$ . Спектральная ширина регистрируемого участка спектра составляла  $10 \text{ \AA}$ . Для уменьшения шума от паразитных засветок применялись специально изготовленные световые ловушки. В экспериментах регистрировались изменения величин электрических сигналов в рабочей ветви измерительной схемы в зависимости от плотности газа в рабочей камере и его химического состава. Для регистрации изменений сигналов использовался микроамперметр типа М-1400 со шкалой (50 – 0 – 50), класса точности 1,5, который ставился на выходе дифференциального усилителя. Его измерительный механизм – магнитоэлектрический, время успокоения подвижной части 4 с. Использование данного прибора в качестве интегрирующего элемента позволяет сгладить случайные высокочастотные флуктуации сигнала и повысить надежность результатов эксперимента. Поскольку эксперименты воспроизводились многократно и требовали длительного времени, осуществлялся постоянный контроль дрейфа нуля стрелки прибора М-1400. Его максимальная величина в экспериментах не превышала одного деления за несколько часов работы. Цена одного деления в нашей схеме составляла 50 мВ. С учетом скважности импульсов и коэффициента усиления схемы это соответствует изменению входного сигнала на 15 мВ. Величины регистрируемых сигналов контролировались до и после эксперимента с помощью осциллографа С1-91 и составляли для опорной и рабочей ветвей установки 320 и 640 мВ соответственно. Выравнивание сигналов осуществлялось потенциометрами во входных цепях дифференциального усилителя и с помощью светофильтров.

Обработка спектрограмм проводилась с помощью микроскопа типа ММИ-2, обеспечивающего нормы точности при измерениях длин и углов не хуже  $\pm 3$  мкм и  $\pm 1'$  соответственно.

## Результаты эксперимента

1. В диапазоне  $200 \div 850$  нм зарегистрирован спектр излучения, образующийся в процессе рассеяния лазерной бигармоники, резонансной спиновым частотам, при распространении ее через атмосферные газы. Результат иллюстрируется типичной для исследованного диапазона длин волн спектрограммой на рис. 1, на которой отчетливо видны девять горизонтальных линий, расположенных симметрично относительно наиболее яркой центральной линии и соответственно пронумерованных. При обработке спектрограммы установлено, что расположение линий относительно друг друга и оптической оси прибора характеризуется следующими линейными и угловыми размерами.

Крайние линии с номерами  $\pm 4$ , верхняя и нижняя на спектрограмме, расположены на расстоянии 3,2 мм от центральной (с номером 0), что при увеличении прибора  $1^x$ , фокусном расстоянии коллиматорного объектива в один метр соответствует углу наблюдения этих линий относительно направления возбуждающего излучения из центра щели, равному  $3,2 \cdot 10^{-3}$  рад. Две линии с номерами  $\pm 1$ , расположенные к центральной наиболее близко, находятся от нее на расстоянии 0,35 мм и наблюдаются из щели под углом  $3,5 \cdot 10^{-4}$  рад. Линии с номерами  $\pm 2$  и  $\pm 3$  расположены на расстояниях  $\pm 0,7$  и  $\pm 1,8$  мм от центральной, что соответствует углам наблюдения  $\pm 0,7 \cdot 10^{-3}$  и  $\pm 1,8 \cdot 10^{-3}$  рад. Соответствующие измеренным углам рассчитанные значения резонансных волновых чисел  $\kappa_{\text{рез}}$  ( $\text{см}^{-1}$ ) и частот  $\nu = \kappa_{\text{рез}}/2\pi$  ( $\text{см}^{-1}$ ) соответственно равны:  $\pm 1$ ;  $\pm 35$ ;  $\pm 70$ ;  $\pm 180$ ;  $\pm 320$  и  $\pm 0,016$ ; 5,6; 11,1; 28,7 и 50,95. Центральная линия, наиболее яркая, имеет толщину около 0,05 мм, что с точностью до 5 мкм совпадает с контролируемым в эксперименте размером фокального пятна на щели прибора. Толщины остальных линий, измеренные по спектрограмме, характеризуются значениями  $0,1 \pm 0,25$  мм. С учетом изложенного естественно предположить, что такие значения обусловлены наложением нескольких неразрешенных прибором линий, которые характеризуются углами наблюдения, различающимися примерно на  $10^{-6}$  рад. Зарегистрированные угловые размеры для всех наблюдаемых линий спектра характеризуются диапазоном значений  $10^{-6} \div 3,2 \cdot 10^{-3}$  рад.

Что касается яркости линий, то заметим следующее. Во всем наблюдаемом спектральном диапазоне ее изменение незначительно для всех линий спектра. Наиболее яркая линия – центральная. Яркости других восьми линий примерно равны между собой.

2. Установлено пороговое значение напряженности электрического поля в фокусе приемного объектива прибора, при котором еще регистрировался спектр на фотопленку. Оно оказалось равным примерно 100 В/см, что соответствует плотности потока фотонов около  $10^{19} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ .

3. При исследовании зависимости интенсивности рассеянного света от плотности и химического состава газа в рабочей камере установлено, что изменение амплитуды регистрируемого электрического сигнала в рабочей ветви установки при изменении давления в камере с воздухом в диапазоне  $760 \div 10^{-4}$  мм рт.ст. не превосходит возможную величину дрейфа нуля измерительного прибора, т.е. первоначальная величина сигнала 640 мВ оставалась неизменной в течение всего времени проведения эксперимента.

4. При заполнении рабочей камеры кислородом зарегистрировано четкое отклонение стрелки микроамперметра М-1400 на одно деление вправо от нуля, что соответствовало при выбранных характеристиках схемы уменьшению сигнала в рабочей ветви на 15 мВ, т.е. от первоначальной величины 640 до 625 мВ. При откачке кислорода из камеры и заполнении ее снова воздухом стрелка прибора возвращалась в первоначальное положение.

## Обсуждение результатов

При регистрации спектра на рис. 1 нами использовалась фотографическая методика, применяемая обычно для исследования комбинационного рассеяния света на поляритонах в кристаллах [3]. Рассмотрим подробнее условия наблюдения КР-света на поляритонах. Особо подчеркнем, что для этого необходимо, во-первых, чтобы в среде существовали фононы одновременно дипольно-активные (что необходимо для возникновения поляритонов в среде) и комбинационно-активные. Установлено, что такими свойствами обладают оптические фононы в кристаллах без центра симметрии [3]. В нашем случае таковыми могут являться фононы, связанные с колебаниями ядерных и электронных спинов в молекулах азота и кислорода соответственно. Как известно, их величины равны – двум для молекулы азота, и единице – для электронной оболочки молекулы кислорода. Во-вторых, наблюдение рассеяния света на поляритонах необходимо проводить под малыми углами к направлению распространения возбуждающего излучения. Выбор такой геометрии рассеяния обусловлен следующими соображениями. Известно, что при образовании поляритонов в кристаллах смешиваются поперечные колебания решетки с электромагнитными колебаниями, т.е. взаимодействуют оптические фононы с фотонами. При этом законы сохранения энергии и импульса для частотно-углового спектра комбинационного рассеяния света на поляритонах выражаются соотношениями:

$$\omega_l = \omega_s + \omega; \quad \kappa_l = \kappa_s + \kappa, \quad (1)$$

где  $\mathbf{k}_l, \mathbf{k}_s, \mathbf{k}, \omega_l, \omega_s, \omega$  – волновые вектора и частоты возбуждающего  $l$ , рассеянного  $s$  излучений и поляритона соответственно. Из (1) и рис. 2 следует, что при наблюдении под углом  $90^\circ$  к направлению возбуждающего излучения величина волнового вектора поляритона по порядку величины равна волновому вектору возбуждающего фотона  $k \sim \sqrt{2} k_l \cdot 10^5 \text{ см}^{-1}$ . Обычно наблюдаемая в АСКР частота оптических фононов  $\omega$  равна примерно  $10^{13} \text{ с}^{-1}$ , соответствующий этой частоте  $k_{\text{рез}} = \omega/c \cdot \sqrt{\epsilon_l}$  составляет примерно  $10^3 \text{ см}^{-1}$ , что на два порядка меньше наблюдаемого под углом  $90^\circ$ . Естественно, что при таких больших значениях волнового вектора  $\mathbf{k}$  частота поляритона слабо зависит от его величины, и фактически рассеяние происходит на фононах, т.е. в области, где поляритонный характер дисперсии возбуждений практически не сказывается. Поэтому для наблюдения рассеяния света на поляритонах – возбуждениях среды с  $k_{\text{рез}} \sim 10^3 \text{ см}^{-1}$ , необходимо проводить наблюдения под малыми углами,  $\phi \sim k/k_l \sim 10^{-2}$  рад и менее, к направлению возбуждающего излучения, как показано на рис. 2. Диапазон зарегистрированных углов наблюдения  $\phi$  имеет границы  $10^{-6} \div 3,2 \cdot 10^{-3}$  рад, что соответствует этому условию и свидетельствует о поляритонном характере зарегистрированного спектра. Для объяснения соответствующих значений частот рассмотрим подробнее механизм взаимодействия бигармоники с электронной оболочкой молекул азота и кислорода.



Рис. 1. Частотно-угловой спектр комбинационного рассеяния света на магнанных поляритонах в атмосфере

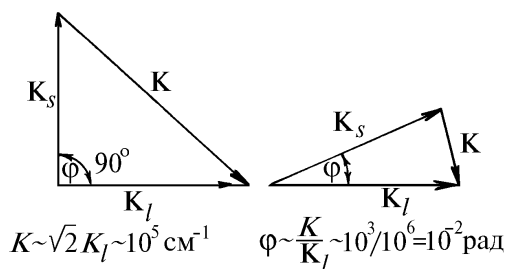


Рис. 2. Схема иллюстрации закона сохранения импульса при выборе геометрии эксперимента по наблюдению рассеяния света на поляритонах

Как показано в [4, 5], воздействие двух лазерных волн (бигармоники) на нелинейную среду может оказаться весьма эффективным в тех случаях, когда какая-либо из частот элементарных возбуждений совпадает с комбинированными (низкой кратности) частотами воздействующих волн. Идея, призванная сделать бигармонику усилителем, достаточно проста. Поле оптической частоты, взаимодействуя с «быстрыми» электронами системы, наводит дипольный момент, который, продолжая взаимодействовать с полем, приводит к квадратичной по полю энергии. Поле – бигармоника, поэтому в энергии появляется разностная частота, и если она близка к частоте какого-либо собственного колебания системы, то стандартный резонанс системы и станет средством усиления.

Таким образом, для описания механизмов взаимодействия двухмодового когерентного света с газовой средой необходимо знать спектры элементарных возбуждений газа и их проявления в законах дисперсии – частотных зависимостях электрической и магнитной проницаемостей. В наших экспериментах разность частот бигармоники составляет 500 МГц, что соответствует волновому числу  $\nu = 0,016 \text{ см}^{-1} (0,2 \cdot 10^{-5} \text{ эВ})$  и соответственно волновому вектору  $\mathbf{K} = 2\pi\nu = 0,1 \text{ см}^{-1}$ . Зарегистрированные частоты соответствуют диапазону энергий  $2 \cdot 10^{-5} \div 6,2 \cdot 10^{-3} \text{ эВ}$ , который характерен для сверхтонкого взаимодействия оптического электрона с ядром и для вращений молекул. Известно, что сверхтонкое взаимодействие приводит к <смешиванию> оптических и <микроволновых> переходов и возникновению тонкой структуры у оптических спектральных линий [7, 8]. Сверхтонкое взаимодействие позволяет за счет возбуждения оптического электрона кругополяризованным светом осуществлять ориентацию ядер (оптическая накачка) [6]. Особо подчеркнем, что все обсуждаемые эффекты основаны на том, что лазерный свет может взаимодействовать с электронной оболочкой атома, а уже через ее связь с ядром можно получать информацию о характеристиках ядра и влиять на процессы с их участием. Например, для поляризации (или ориентации) атомных ядер циркулярно-поляризованным оптическим излучением необходимо, чтобы монохроматическое поляризованное излучение поглощалось на определенном переходе сверхтонкой структуры. Тогда взаимодействие момента электрона со спином ядра приводит к тому, что момент поглощаемого фотона распределяется между электроном и ядром, и в результате в ансамбле атомов возникает ориентация ядер в выбранном направлении [6].

Энергия компоненты сверхтонкой структуры с полным угловым моментом  $F = I + J$ , обусловленная взаимодействием электронной оболочки с ядром, представлена выражением [7]:

$$W_F = \frac{1}{2} K A + \frac{(3/4) K (K + 1) - I (I + 1) J (J + 1)}{2 I (2 I - 1) J (2 J - 1)} B, \quad (2)$$

где  $K = F(F + 1) - I(I + 1) - J(J + 1)$ .

Из (2) видно, что эта энергия зависит от ядерного спина  $I$ , константы магнитного дипольного взаимодействия

$$A = \mu_I H_e(0) (J I)^{-1} \quad (3)$$

и константы электрического квадрупольного взаимодействия

$$B = e Q_S \frac{\partial^2 \psi(0)}{\partial z^2} = e Q_S \varphi_{II}(0). \quad (4)$$

Ядерные моменты  $\mu$  и  $Q_S$  могут быть получены путем измерения сверхтонкой структуры спектральных линий, которые дают значения констант  $A$  и  $B$  с помощью эмпирических или теоретических величин для магнитного сверхтонкого поля  $H_e(0)$  и градиента электрического поля  $\varphi_{II}(0)$  на ядре.

Энергия вращения молекулы выражается соотношением

$$E = B_e J(J + 1), \quad (5)$$

где  $B_e$  – вращательная постоянная (равна 1,989 и 1,438  $\text{см}^{-1}$  для азота и кислорода соответственно).

Применяя правило отбора для комбинационных вращательных спектров  $\Delta J = 0, \pm 2$ , из (5) получим выражение для частот переходов

$$\nu = 4 B_e (J + 3/2), \quad (6)$$

где  $J$  – начальный вращательный уровень перехода.

Рассчитанные по (6) частоты, наиболее близко расположенные к зарегистрированным, соответствуют указанным ниже переходам и имеют значения для азота:  $0 \rightarrow 2$  ( $\nu = 11,9 \text{ см}^{-1}$ ),  $2 \rightarrow 4$  ( $\nu = 27,8 \text{ см}^{-1}$ ); для кислорода:  $7 \rightarrow 9$  ( $\nu = 48,9 \text{ см}^{-1}$ ).

Сопоставление этих комбинационных вращательных частот для наиболее заселенных при комнатной температуре, как показано в [9], начальных уровней переходов молекул азота и кислорода с зарегистрированными в эксперименте свидетельствует об их расхождении на величину около  $1 \text{ см}^{-1}$ . Для объяснения этого расхождения необходимы дополнительные исследования.

### **Заключение**

Полученные результаты – необычайно высокое сечение и низкий порог процесса рассеяния бигармоники, резонансной спиновым частотам, при прохождении ее через атмосферные газы, на наш взгляд, делают более перспективным применение АСКР для зондирования атмосферы. Естественно, что лишь дальнейшие экспериментальные и теоретические исследования позволят достаточно полно описать динамику наблюдаемого в эксперименте процесса рассеяния.

Автор благодарен профессору С.Д. Творогову за ценные дискуссии и А.А. Козлову и К.А. Тинчуру за помощь при проведении экспериментов.

1. Ахманов С. А., Коротеев Н. И. Методы нелинейной оптики в спектроскопии рассеяния света. Активная спектроскопия рассеяния света. М.:Наука, 1981. 544 с.
2. Еньшин А. В. // Оптика атмосферы и океана. 1994. Т. 7. N 10. С. 1415–1419.
3. Поливанов Ю. Н. // УФН. 1978. Т. 126. В. 2. С. 185–232.
4. Еньшин А. В., Творогов С. Д. // Оптика атмосферы. 1989. Т. 2. N 5. С. 456–461.
5. Еньшин А. В., Творогов С. Д. // ДАН СССР. 1990. Т. 314. N 3. С. 600–603.
6. Летохов В. С. // УФН. 1987. Т. 153. Вып. 2. С. 311–334.
7. Соболевман И. И. Введение в теорию атомных спектров. М.:Наука, 1977. 640 с.
8. Герцберг Г. Спектры и строение двухатомных молекул. М.:ИЛ, 1949. 404 с.
9. Еньшин А. В. // Изв. вузов. Физика. 1977. N 1. С. 116–119.

Томский государственный университет им. В. В. Куйбышева

Поступила в редакцию  
5 марта 1994 г.

### **A. V. En'shin. Propagation of Biharmonic Laser Radiation Resonant to the Spin Frequencies through Atmospheric and Rare Gases.**

The results of experimental study of the resonance biharmonic by scattering atmospheric and rare gases are given. The spectrogram of the frequency – angular spectrum of the Raman scattering on the magnon polaritons in the atmosphere is obtained. As a result of its processing the frequencies and wave vectors of the magnon polaritons involved in the process are found. It is shown that the values of the detected signals do not vary when the operation cell is filled with the air at pressures of  $760 - 10^{-4} \text{ mm Hg}$ . The extent to which the oxygen participates the process is investigated.