

ВНУТРИДОПЛЕРОВСКАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ ТРЕХУРОВНЕВОГО ГАЗА В ПОЛЕ ЧАСТОТНО-МОДУЛИРОВАННОЙ БЕГУЩЕЙ ВОЛНЫ

М.В.Данилейко, А.М.Фаль, В.П.Федин, Л.П.Яценко,

Предложен и экспериментально осуществлен новый метод частотно-модуляционной спектроскопии трехуровневого газа, разрешающая способность которого практически не ограничивается пролетными эффектами и техническими флуктуациями частоты излучения. Используя среду с поглощением $3 \cdot 10^{-4} \text{ см}^{-1}$ и длиной 15 см достигнута разрешающая способность $3 \cdot 10^9$.

1. В работах ¹⁻³ продемонстрирован новый высокочувствительный метод лазерной спектроскопии — частотно-модуляционная спектроскопия насыщенного поглощения. Сущность метода состоит в регистрации сигнала амплитудной модуляции, возникшей в результате взаимодействия частотно-модулированного излучения с двухуровневым газом, в котором распространяется встречный насыщающий луч. Поскольку частота модуляции может быть достаточно большой (вплоть до СВЧ диапазона), минимальный регистрируемый сигнал определяется только фотонным шумом. Однако разрешающая способность метода ¹⁻³, как и традиционных методов нелинейной лазерной спектроскопии, ограничивается в конечном счете пролетным уширением исследуемой линии и уширением спектра лазерного излучения, связанным прежде всего с техническими флуктуациями его частоты.

В настоящей работе предложен и экспериментально осуществлен новый метод частотно-модуляционной спектроскопии трехуровневого газа, разрешающая способность которого практически не ограничивается пролетным уширением и техническими флуктуациями частоты излучения.

Рассмотрим взаимодействие частотно-модулированной бегущей волны $\epsilon(z, t) = \epsilon_0 \exp \times \left[i 2\pi \left(t - \frac{z}{c} \right) \nu - i \Delta \cos 2\pi f t \right]$ + к.с. с трехуровневой системой, причем частотное расстояние ν_{12} между уровнями 1 и 2 будем считать значительно меньшим доплеровской ширины разрешенных оптических переходов 1 – 3 и 2 – 3. Для простоты ограничимся случаем $\Delta \ll \ll 1$. Поле $\epsilon(z, t)$ можно тогда считать суперпозицией трех бегущих волн: сильной насыщающей волны с амплитудой ϵ_0 и частотой ν и двух слабых пробных волн с частотами $\nu \pm f$ с амплитудами $\epsilon_{\pm} = \epsilon_{-} = -i \frac{\Delta}{2} \epsilon_0$. Переменная часть мощности волны P по прохождению слабопоглощающей среды длиной L есть

$$\Delta P / P = \delta_{\text{disp}} \cos 2\pi f t + \delta_{\text{abs}} \sin 2\pi f t, \quad (1)$$

где $\delta_{\text{disp}} = 4\pi^2 \frac{\nu}{c} L \Delta (\kappa'_+ + \kappa'_- - 2\kappa'_0)$, $\delta_{\text{abs}} = 4\pi^2 \frac{\nu}{c} L \Delta (\kappa''_+ - \kappa''_-)$; $\kappa_{\pm} = \kappa'_{\pm} + i\kappa''_{\pm}$ – поляризуемость среды для слабой волны ϵ_{\pm} в присутствии сильной волны ϵ_0 ; κ'_0 – вещественная часть поляризуемости среды в поле ϵ_0 . Вычисление κ с помощью хорошо известной методики решения уравнений для матрицы плотности в поле трех волн $\epsilon_0, \epsilon_{\pm}$ (см., например, ⁴) показывает, что при неравных дипольных моментах переходов 1 – 3 и 2 – 3 $d_{13}^2 \neq d_{23}^2$ величины κ_+ и κ_-^* различны и, следовательно, по прохождению среды частотно-модулированная волна становится амплитудно-модулированной ($\delta_{\text{abs}}, \delta_{\text{disp}} \neq 0$). Не вдаваясь в детали анализа, которые будут приведены в более подробной публикации, дадим лишь окончательный результат в двух наиболее интересных случаях. Для колебательно-вращательных переходов в молекулярных газах низкого давления, когда релаксацию матрицы плотности можно с достаточной точностью описывать одной релаксационной константой γ , имеем в доплеровском пределе и при $\gamma \ll \omega_{12}$:

$$\delta_{\text{abs}} + i\delta_{\text{disp}} = \alpha_0 L \frac{\Delta}{2} \left\{ L_{12} \left(\frac{f - \nu_{12}}{\gamma} \right) - L_{21} \left(\frac{f - \nu_{12}}{\gamma} \right) \right\}, \quad (2)$$

$$\text{где } L_{ij}(x) = a_l \left(1 - \frac{1}{\sqrt{1 + a_l I}} \right) \left/ \left(1 + i \frac{2x}{1 + \sqrt{1 + a_l I}} \right) \right., \quad a_l = \frac{d_{l3}^2}{d_{13}^2 + d_{23}^2}, \quad l, j = 1, 2;$$

α_0 – ненасыщенный коэффициент поглощения, $I = I_1 + I_2$, $I_j = d_{j3}^2 |\epsilon_0|^2 / \hbar^2 \gamma^2$ параметр насыщения перехода $j - 3$. В случае электронных переходов с основного или метастабильного уровня в верхний короткоживущий для $\delta_{\text{abs}} + i\delta_{\text{disp}}$ имеем (2), где γ – константа релаксации недиагонального элемента ρ_{12} матрицы плотности.

Как видно из (2), сигнал амплитудной модуляции при изменении f или ν_{12} изменяется резонансным образом. Противофазная компонента δ_{abs} представляет собой разность двух уширенных полей лоренцовских контуров с различными амплитудами. Результирующий контур при слабом насыщении имеет близкую к лоренцовской форму с максимумом при $f = \nu_{12}$ и шириной $\sim \gamma$. Аналогично δ_{disp} имеет близкую к дисперсионной форму с нулем при $f = \nu_{12}$ и шириной $\sim \gamma$. Отметим, что с помощью синхронного детектирования можно регистрировать отдельно δ_{disp} или δ_{abs} .

Выражение (2) получено для случая монохроматической плоской волны. Учет пролетных эффектов и флуктуаций несущей частоты ν требует специального рассмотрения, которое также будет проведено в будущей публикации. Здесь же отметим, что, как видно из (2), сигнал амплитудной модуляции при слабом насыщении $I \ll 1$ возникает только во втором порядке по интенсивности насыщающего поля. Это указывает на то, что пролетные эффекты не приводят к уширению резонанса (2), поскольку вследствие аномального вклада медленных молекул в поляризацию среды нелинейные резонансы второго и более порядка

не подвержены пролетному уширению⁵. Влияние флуктуаций частоты лазерного излучения на ширину резонанса (2) также существенно ослаблено, поскольку частота ν в (2) не входит. Вклад флуктуаций частоты ν в ширину резонанса (2) зависит от вида их спектра. Так, например, медленные технические флуктуации при условии $\gamma\tau \gg 1$, где τ – время корреляции частотных флуктуаций, практически не уширяют резонанс (2).

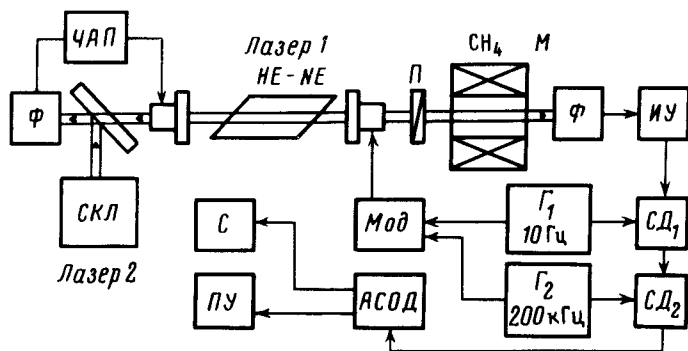


Рис. 1. Схема экспериментальной установки: ЧАП – частотная автоподстройка, Ф – фотоприемник, П – четвертьволновая пластина, М – соленоид, СН₄ – метановая ячейка, ИУ – избирательный усилитель, СД – синхронный детектор, Г – звуковой генератор, АСОД – автоматическая система накопления и обработки данных, С – самописец, ПУ – цифровое печатающее устройство, Мод – модулятор

2. Для экспериментальной реализации метода использовался эффект Зеемана на $F_2^{(2)}$ -компоненте колебательно-вращательного перехода линии метана ($\lambda = 3,39$ мкм). При наличии магнитного поля переход $J_1 - J_2$ представляет собой суперпозицию целого ряда трехуровневых систем: например, два магнитных подуровня $m + 1$ и $m - 1$ нижнего состояния J_1 и магнитный подуровень m верхнего состояния J_2 и т. д. Необходимое для существования сигнала частотно-модуляционной спектроскопии различие дипольных моментов переходов $\Delta m = +1$ и $\Delta m = -1$ можно получить, используя эллиптически поляризованный лазерный луч. Решая систему уравнений для матрицы плотности молекулы в поле плоских волн $\epsilon_0, \epsilon_{\pm}$, резонансном переходе $J_1 - J_2$, при наличии аксиального магнитного поля в пятом порядке по полю ϵ_0 и первом по ϵ_{\pm} , сигнал $\delta_{abs} + i\delta_{disp}$ при $J_1, J_2 \gg 1$ можно с достаточной точностью представить в виде

$$\delta_{abs} + i\delta_{disp} \sim \alpha_0 L \cdot \Delta \cdot I^2 \frac{\epsilon(1 - \epsilon^2)^2}{(1 + \epsilon^2)^3} \left[\frac{2}{1 + i \frac{2\Omega - f}{2\gamma}} + \frac{1}{\left(1 + i \frac{2\Omega - f}{2\gamma}\right)^2} - \frac{2}{1 - i \frac{2\Omega + f}{2\gamma}} - \frac{1}{\left(1 + i \frac{2\Omega + f}{2\gamma}\right)^2} \right], \quad (3)$$

где ϵ – отношение главных осей эллипса поляризации лазерного поля, Ω – зеемановское расщепление.

Схема экспериментальной установки приведена на рис. 1. Использовался одномодовый He – Ne-лазер 1 с выходной мощностью 250 мкВт. Радиус луча в шейке каустики 0,1 см. Частота излучения лазера модулировалась путем подачи синусоидального напряжения частотой $f = 200$ кГц на пьезокерамику, на которой укреплено одно из зеркал резонатора. Для устранения паразитного сигнала амплитудной модуляции, возникающего из-за несовпадения частоты излучения лазера с вершиной линии усиления, частота лазера 1 привязывалась с помощью системы частотной автоподстройки к частоте стабилизированного по линии метана кольцевого лазера 2, описанного в⁶. Требуемая эллиптичность излучения задавалась соответствующей установкой четвертьволновой пластины. Метановая поглощающая ячейка длиной 15 см помещалась в аксиальное магнитное поле. Сигнал с выхода фотодетектора после

синхронного детектирования поступал в автоматизированную систему накопления и обработки данных. Для повышения отношения сигнал/шум использовалось прерывание высокочастотной модуляции с частотой 10 Гц с последующим синхронным детектированием.

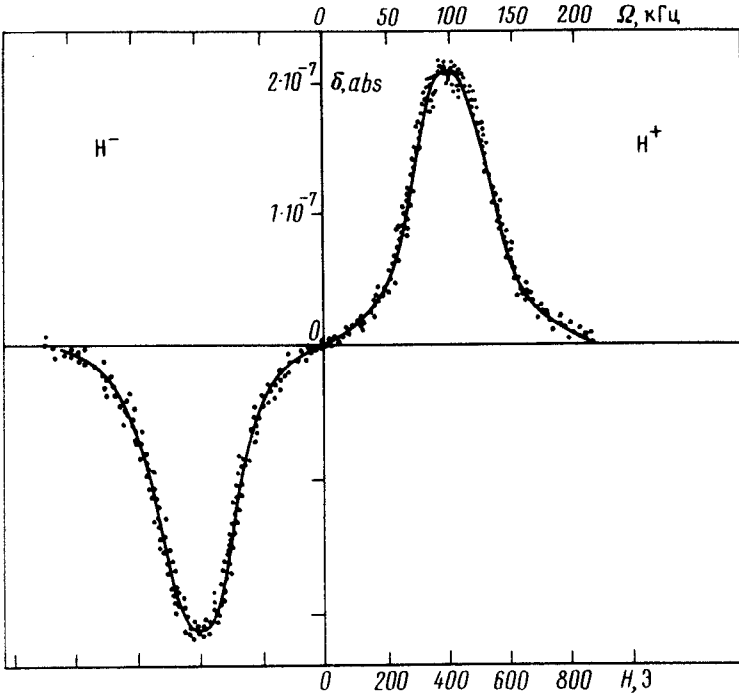


Рис. 2. Сигнал амплитудной модуляции δ_{abs} в зависимости от магнитного поля. При переходе через $H = 0$ направление магнитного поля изменялось на противоположное. Сплошная линия – зависимость, построенная по формуле (3) при $\gamma = 41$ кГц

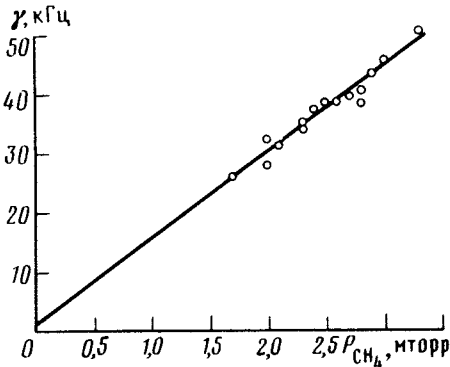


Рис. 3. Зависимость однородной ширины линии от давления метана. Сплошная линия – прямая $\gamma = (2,5 + 14,2 P_{CH_4})$ кГц

На рис. 2 представлен типичный сигнал δ_{abs} амплитудной модуляции в зависимости от напряженности магнитного поля. Каждая точка получена усреднением по ста измерениям, давление метана $P_{CH_4} = 2,8$ торр эллиптичность луча $\epsilon = 0,3$. Минимальная регистрируемая амплитуда резонансов (при сигнал/шум = 2) составляла $5 \cdot 10^{-8}$ и определялась остаточной амплитудной модуляцией выходного излучения. Резонансы с амплитудой выше $5 \cdot 10^{-8}$ наблюдались в области давлений метана 1,7 – 3,3 мторр; максимальная амплитуда $3 \cdot 10^{-7}$ достигалась при 2,5 мторр. Уменьшение амплитуды при $P_{CH_4} > 2,5$ мторр обусловлено уширением линии и уменьшением параметра насыщения $I \sim (P_{CH_4})^{-2}$, а падение при низких давлениях связано с уменьшением линейного поглощения $\alpha_0 \sim P_{CH_4}$ и количества медленных молекул $\sim (P_{CH_4})^2$, дающих определяющий вклад в резонанс.

Сигнал $\delta_{abs}(H)$ представляет собой резонанс, вершина которого, согласно (3), фиксирует зеемановское расщепление $\Omega = g \mu_N(H)$, равное $f/2$. Это соотношение дает величину g -фактора для компоненты $F_2^{(2)}$: $g = 0,31 \pm 0,01$, что согласуется с данными ⁷. На рис.3

представлена зависимость однородной ширины линии γ от давления метана, полученная обработкой экспериментальных результатов по формуле (3) методом наименьших квадратов. Зависимость хорошо описывается выражением $\gamma = \gamma_0 + kP_{\text{CН}_4}$ с коэффициентом пропорциональности $k \approx 14$ кГц/мторр, совпадающим с известной константой столкновительного уширения линии метана⁴, и константой $\gamma_0 \approx 2,5$ кГц. Такой вид зависимости $\gamma(P_{\text{CН}_4})$ указывает на то, что определяющей причиной уширения резонанса является столкновительное уширение, а пролетные эффекты, несмотря на большое значение пролетной ширины ~ 100 кГц, и флуктуации частоты лазера (ширина спектра ~ 10 кГц) практически не уширяют резонанс.

Таким образом, в работе предложен и осуществлен новый метод частотно-модуляционной спектроскопии, обладающий высокой чувствительностью и разрешающей способностью. Используя внрезонаторную поглощающую ячейку с линейным поглощением $3 \cdot 10^{-4}$ см⁻¹ и длиной 15 см без расширения лазерного пучка достигнута разрешающая способность $3 \cdot 10^9$.

Литература

1. Bjorklund G.C. Opt. Lett., 1980, 5, 15.
2. Bjorklund G.C. Levenson M.D. Phys. Rev., 1981, A24, 166.
3. Hall J.L., Hollberg L., Baer T., Robinson H.G. Appl. Phys. Lett., 1981, 39, 680.
4. Летохов В.С., Чеботаев В.П. Принципы нелинейной лазерной спектроскопии. М. : Наука, 1975.
5. Шалагин А.М. Письма в ЖЭТФ, 1981, 34, 193.
6. Данилейко М.В., Фаль А.М., Федин В.П., Яценко Л.П., Шнак М.Т. Квантовая электроника, 1982, 9, 2013.
7. Anderson C.H., Ramsey N.F. Phys. Rev., 1966, 149, 14.

Институт физики
Академии наук Украинской ССР

Поступила в редакцию
26 октября 1983 г.