## Варианты спектроскопии насыщения поглощения (продолжение).

3). Внутрирезонаторная спектроскопия насыщения поглощения.

Рассмотрим оптическую схему, в которой кювета с газом находится внутри резонатора лазера.



В резонаторе лазера есть две встречные волны, которые просветляют кювету друг для друга.

Зависимость мощности генерации такого лазера от частоты имеет примерно следующий вид:



Здесь широкий выпуклый контур с центром на частоте  $\omega_{10}$  — это контур линии усиления среды уширенный эффектом Доплера. В центре контура линии усиления на рисунке изображен провал Лэмба.

Провал Лэмба имеет ту же природу, что и резонанс насыщения поглощения, только провал Лэмба — это резонанс в мощности генерации лазера, который определяется резонансом насыщения усиления среды. Если частота света не совпадает с центром линии усиления, то встречные волны в резонаторе лазера усиливаются двумя разными наборами молекул с противоположными значениями проекции скорости на направление одной из двух волн. Когда частота света совпадает с центром линии усиления, то обе встречные волны усиливаются одним и тем же набором молекул с нулевой лучевой скоростью. Один набор молекул вместо двух означает меньше усиливающих свет молекул — меньше усиление среды — меньше мощность генерации.

На правом склоне контура усиления изображен широкий провал поглощения с центром на частоте  $\omega_{20}$ , который уменьшает мощность генерации лазера. Контур линии поглощения уширен эффектом Доплера. В центре контура линии поглощения на частоте  $\omega_{20}$  наблюдается узкий резонанс насыщения поглощения встречными световыми волнами. Это насыщение

поглощения приводит к резонансному увеличению мощности генерации на частоте  $\omega_{20}$ .

\_\_\_\_\_

Основное преимущество внутрирезонаторной спектроскопии насыщения поглощения состоит в высоком контрасте резонансов. И действительно. Если считать, что по оси *у* графика отложена не мощность генерации, а усиление среды с учетом потерь в поглощающей кювете, то график почти не изменится. Если же уровень потерь резонатора поднять до пунктирной горизонтальной линии, то генерация останется только на тех частотах, где усиление выше потерь. То есть новый график зависимости мощности генерации лазера от его частоты — это график над пунктирной горизонтальной линией.

Как видно из рисунка, резонанс насыщения поглощения при этом может иметь практически стопроцентный контраст. Постоянная подложка под резонансом может быть гораздо меньше самого резонанса.

Недостаток внутрирезонаторной спектроскопии насыщения поглощения — большое уширение мощностью лазерного луча. Ширина резонанса насыщения поглощения слабой пробной волны сильной встречной волной равна  $\Delta \omega = \Gamma \left(1 + \sqrt{1 + G_1}\right)$ , а в рассматриваемом внутрирезонаторном варианте примерно одинаковой мощности встречных волн ширина резонанса примерно равна  $\Delta \omega = 2\Gamma \sqrt{1+G}$ . Мощность луча внутри резонатора лазера в  $\frac{1}{1-R}$  раз больше мощности излучения лазера, где R — коэффициент отражения по мощности для выходного зеркала лазера. Например, если R = 0.97, то мощность света внутри лазера в 30 раз выше мощности излучения лазера.

Большое уширение резонансов означает низкое спектральное разрешение. Чтобы уменьшить уширение резонансов мощностью света можно применить внутрирезонаторный телескопический расширитель луча. Телескопический расширитель луча — это две линзы с общим фокусом. Коэффициент расширения равен отношению фокусных расстояний двух линз.



Расширение пучка лучей в резонаторе лазера уменьшает интенсивность света и уменьшает уширение резонанса насыщения поглощения.

<u>4). Однонаправленные световые волны и резонанс насыщения</u> поглощения (двойной оптический резонанс).

Рассмотрим принципиальную схему экспериментальной установки для наблюдения резонансов насыщения поглощения в однонаправленных световых волнах:



Здесь излучение лазера 1 модулируется прерывателем с частотой  $f_1$ , а излучение лазера 2 модулируется с частотой  $f_2$ . Излучение обоих лазеров направляется через кювету в один и тот же приемник света. Сигнал с приемника через конденсатор подается на вход 1 аналогового перемножителя для синхронного детектирования.

На второй вход перемножителя подается опорный сигнал с частотой  $f_1 - f_2$ .

Для формирования опорного сигнала около каждого из двух прерывателей установлена лампа накаливания и приемник ее излучения. Излучение лампы попадает на приемник через прерыватель, который модулирует свет лампы с той же частотой, с которой модулируется и излучение соответствующего лазера. После каждого из двух приемников электрический сигнал проходит через конденсатор, который отсекает постоянное напряжение. За конденсатором получаются прямоугольники с частотой  $f_1$  для одного прерывателя и  $f_2$  для второго прерывателя.

Прямоугольные напряжения с этими двумя частотами складываются на резисторе в левом нижнем углу схемы. После резистора напряжение проходит через диод и другой резистор на параллельный колебательный контур.

Резонансная частота контура настроена на частоту  $f_1 - f_2$ , то есть

 $\frac{1}{\sqrt{LC}} = 2\pi \left( f_1 - f_2 \right).$ 

На диоде, как на нелинейном элементе, формируются все возможные комбинационные частоты  $m_1 f_1 \pm m_2 f_2$  из частот  $f_1$  и  $f_2$ , где  $m_1$  и  $m_2$  — целые числа. Колебательный контур выделяет из всех комбинационных частот синусоиду со своей резонансной частотой  $f_1 - f_2$ .

Перемножитель умножает эту синусоиду на сигнал с приемника лазерного излучения, расположенного в правом верхнем углу схемы. Произведение напряжений после усреднения RC-цепочкой равно Фурье образу напряжения с приемника лазерного излучения на частоте опорного сигнала  $f_1 - f_2$ . То есть на выходе схемы, обозначенном как "Y-координата сигнала", формируется постоянное напряжение пропорциональное амплитуде сигнала на частоте  $f_1 - f_2$  в интенсивности света прошедшего кювету с исследуемым газом.

Если кювета пустая и приемник лазерного излучения линейный, то в напряжении с приемника присутствуют только частоты  $f_1$ ,  $f_2$  и их гармоники, других комбинационных частот в сигнале с приемника быть не должно. Если кювета заполнена исследуемым газом, то в напряжении с приемника появляется составляющая на частоте  $f_1 - f_2$  только в результате нелинейного взаимодействия световых волн в кювете с исследуемым газом. Рассматриваемое нелинейное взаимодействие — это просветление среды друг для друга двумя однонаправленными световыми волнами.

Рассмотрим подробнее, как формируется сигнал на частоте  $f_1 - f_2$  в мощности световой волны прошедшей кювету с исследуемым газом.

Пусть интенсивность на выходе из кюветы  $I_{6blx}$  произвольным образом зависит от интенсивностей волн  $I_{1ex}$ ,  $I_{2ex}$  обоих лазеров на входе в кювету. Ограничимся аппроксимацией этой произвольной зависимости в виде суммы линейной зависимости и квадратичной нелинейности в виде произвольной квадратичной формы. Тогда получим:

 $I_{6blx} = aI_{1ex} + bI_{2ex} + \alpha I_{1ex}^2 + \beta I_{1ex}I_{2ex} + \gamma I_{2ex}^2.$ 

Нас будет интересовать только одно слагаемое  $\beta I_{1ex}I_{2ex}$  в правой части равенства, которое, как окажется, и содержит интересующую нас зависимость с частотой  $f_1 - f_2$ .

Для простоты рассуждений будем считать, что интенсивность каждого лазера модулируется не прямоугольниками, а гармонически. Тогда интенсивность излучения первого лазера на входе в кювету следующим образом зависит от времени:

 $I_{1ex} = I_0 (1 + \cos(2\pi f_1 t))$ , где единица добавлена, так как интенсивность не может быть отрицательной величиной.

Аналогично, интенсивность второго лазера на входе в кювету имеет вид:  $I_{2ex} = I_0 (1 + \cos(2\pi f_2 t)).$ 

Тогда интересующее нас слагаемое в интенсивности на выходе из кюветы будет равно:

$$\beta I_{1ex}I_{2ex} = \beta \cdot I_0 \left(1 + \cos\left(2\pi f_1 t\right)\right) \cdot I_0 \left(1 + \cos\left(2\pi f_2 t\right)\right).$$

Если раскрыть произведение сумм в правой части равенства, то нас будет интересовать только слагаемое с произведением косинусов:

$$\beta I_0^2 \cdot \cos(2\pi f_1 t) \cdot \cos(2\pi f_2 t) = \frac{\beta I_0^2}{2} \cos(2\pi (f_1 + f_2)t) + \frac{\beta I_0^2}{2} \cos(2\pi (f_1 - f_2)t).$$

Нас интересует только второе слагаемое  $\frac{\beta I_0^2}{2} \cos(2\pi (f_1 - f_2)t)$  в правой части равенства. Это слагаемое представляет собой колебания интенсивности с

части равенства. Это слагаемое представляет сооби колеоания интенсивности с частотой  $f_1 - f_2$  на выходе из кюветы, которое возникает в результате нелинейного взаимодействия однонаправленных световых волн в кювете с исследуемым газом.

Синхронный детектор, роль которого играет аналоговый перемножитель, формирует на выходе схемы постоянное напряжение пропорциональное амплитуде  $\frac{\beta I_0^2}{2}$  колебаний интенсивности на выходе из кюветы с частотой  $f_1 - f_2$ . Это напряжение представляет собой Y-координату экспериментальной кривой.

Х-координата экспериментальной кривой формируется из показаний частотомера и представляет собой частоту биений двух лазеров.

Двухуровневая схема.

\_\_\_\_\_

Рассмотрим две однонаправленные световые волны, которые взаимодействуют со средой в двухуровневом приближении.



Пусть обе волны взаимодействуют с одним и тем же набором молекул с лучевой скоростью  $V_{z}$  такой, что

$$\begin{cases} \omega_1 - kV_z = \omega_{21} \\ \omega_2 - kV_z = \omega_{21} \end{cases} \implies \omega_1 = \omega_2.$$

Если в пределах доплеровской ширины линии поглощения находится несколько поглощающих переходов, то их резонансы совпадают, что удобно

для изучения ширины и формы резонансов насыщения поглощения. Форма резонансов не искажается неразрешенной структурой спектральной линии.

<u>V-схема уровней энергии.</u>

Рассмотрим два связанных перехода с общим нижним уровнем энергии.



Пусть разность частот  $\omega_{32} = \frac{E_3 - E_2}{\hbar}$  двух оптических переходов  $\omega_{31}$  и  $\omega_{21}$  имеет порядок доплеровской ширины спектральной линии  $\omega_{32} \approx kU \ll \omega_{21}$ , где  $k = \frac{2\pi}{\lambda}$  — волновое число,  $U = \sqrt{\frac{2k_BT}{m}}$  — наиболее вероятная скорость молекул,  $k_B$  — постоянная Больцмана.

Из неравенства  $\omega_{32} \ll \omega_{21}$  следует, что для двух световых волн  $k_1 \approx k_2$ .

Пусть первая волна резонансно взаимодействует с переходом  $\omega_{21}$ , а вторая волна — с переходом  $\omega_{31}$ . Тогда первая волна обедняет уровень 1 (уменьшает заселенность  $N_1$ ), а поглощение второй волны пропорционально разности заселенностей  $(N_1 - N_3)$ . То есть поглощение второй волны уменьшается. Аналогично, вторая волна обедняет уровень 1, уменьшая поглощение первой волны. То есть волны просветляют среду друг для друга.

$$\begin{cases} \omega_1 - kV_z = \omega_{21} \\ \omega_2 - kV_z = \omega_{31} \end{cases} \implies \qquad \omega_2 - \omega_1 = \omega_{32}.$$

Пусть теперь первая волна резонансно взаимодействует с переходом  $\omega_{31}$ , а вторая волна — с переходом  $\omega_{21}$ . Тогда

$$\begin{cases} \omega_1 - kV_z = \omega_{31} \\ \omega_2 - kV_z = \omega_{21} \end{cases} \implies \omega_1 - \omega_2 = \omega_{32}.$$

Оба рассмотренных случая — это варианты формирования двойного оптического резонанса, так как две световые волны находятся в резонансе с двумя поглощающими переходами для одних и тех же молекул.

Кроме двойных оптических резонансов в V-схеме уровней наблюдаются резонансы, в которых две световые волны резонансно взаимодействуют с одним и тем же переходом:

Рассмотрим, как выглядят результаты эксперимента по наблюдению резонансов насыщения поглощения однонаправленных световых волн. Пусть *S* — сигнал синхронного детектирования в представленной ранее принципиальной схеме экспериментальной установки. Тогда сигнал *S*, как функция частоты генерации одного из двух лазеров будет иметь следующий вид:



Обычно строится график зависимости сигнала *S* от показаний частотомера, регистрирующего модуль разности частот двух лазеров. В таком случае экспериментальная кривая будет иметь следующий вид:



Λ<u>-схема уровней энергии.</u>

Рассмотрим два связанных перехода с общим верхним уровнем энергии.



Пусть разность частот  $\omega_{21} = \frac{E_2 - E_1}{\hbar}$  двух оптических переходов  $\omega_{31}$  и  $\omega_{32}$  имеет порядок доплеровской ширины спектральной линии

 $\omega_{21} \approx kU \ll \omega_{31}$ , где  $k = \frac{2\pi}{\lambda}$  — волновое число,  $U = \sqrt{\frac{2k_E T}{m}}$  — наиболее

вероятная скорость молекул,  $k_{E}$  — постоянная Больцмана.

Рассмотрим только двойные оптические резонансы:

$$\left.\begin{array}{c} \omega_1 - kV_z = \omega_{31} \\ \omega_2 - kV_z = \omega_{32} \end{array}\right\} \implies \omega_1 - \omega_2 = \omega_{21} \qquad --- \qquad$$
условие формирования

резонанса

 $\left. \begin{array}{c} \omega_1 - kV_z = \omega_{32} \\ \omega_2 - kV_z = \omega_{31} \end{array} \right\} \implies \omega_2 - \omega_1 = \omega_{21} \qquad -$ условие формирования

резонанса.

Кроме того, присутствуют резонансы насыщения поглощения  $\omega_1 = \omega_2$ , когда обе волны взаимодействуют с одним и тем же переходом.

Сигнал *S* синхронного детектирования, как функция частоты  $\omega_2$  имеет следующий вид:



Если измеряется зависимость сигнала синхронного детектирования S от частоты биений двух лазеров  $\Delta \omega$ , то экспериментальный сигнал примет следующий вид:



Каскадная схема уровней энергии.



В каскадной схеме уровней энергии кроме резонансов  $\omega_1 = \omega_2$ , соответствующих каждому из переходов  $\omega_{21}$  и  $\omega_{32}$ , должны быть двойные резонансы затемнения среды.

Рассмотрим только двойные резонансы:

$$\left. \begin{array}{c} \omega_1 - kV_z = \omega_{21} \\ \omega_2 - kV_z = \omega_{32} \end{array} \right\} \implies \omega_1 - \omega_2 = \omega_{21} - \omega_{32} \quad - \text{ условие формирования}$$

резонанса

И

$$\omega_1 - kV_z = \omega_{32}$$
  
 $\omega_2 - kV_z = \omega_{21}$  =>  $\omega_2 - \omega_1 = \omega_{21} - \omega_{32}$  — условие формирования

резонанса.

Сигнал синхронного детектирования, как функция частоты  $\omega_2$  имеет следующий вид:



Если измеряется зависимость сигнала синхронного детектирования от частоты биений двух лазеров, то



5). <u>Перекрестные резонансы насыщения поглощения во встречных</u> световых волнах.

Это тот же двойной оптический резонанс, что и в однонаправленных световых волнах, только во встречных волнах одинаковой частоты.

Как уже рассматривалось выше для регистрации резонансов насыщения поглощения во встречных световых волнах одинаковой частоты возможно использование следующей оптической схемы:



Варианты уровней энергии те же, что и в случае однонаправленных световых волн:

а). V -схема:



резонанса.

Экспериментальная зависимость мощности световой волны на приемнике, как функция частоты генерации лазера будет иметь следующий вид:



б). Л -схема.



резонанса.

в). Каскадная схема с резонансами затемнения.



Поглощение на переходе  $\omega_{32}$  включается только при заселении уровня 2, а заселение уровня 2 происходит при поглощении на переходе  $\omega_{21}$ .

резонанса.

Экспериментальная зависимость мощности световой волны на приемнике, как функция частоты генерации лазера будет иметь следующий вид:



Во всех схемах уровней энергии перекрестный резонанс находится ровно посередине между родительскими резонансами.

6). <u>Столкновительные резонансы во встречных и однонаправленных</u> световых волнах.

∧ <u>-схема и V -схема уровней энергии.</u>

Для столкновительных резонансов насыщения поглощения  $\Lambda$ -схема и Vсхема уровней энергии как бы совмещаются в одну схему из 4-х уровней:



а). Рассмотрим сначала, что происходит в однонаправленных световых волнах.

Если первая световая волна взаимодействует с переходом  $\omega_{31}$ , а вторая — с переходом  $\omega_{42}$ , то

 $\begin{cases} \omega_1 - kV_z = \omega_{31} \\ \omega_2 - kV_z = \omega_{42} \end{cases} \implies \qquad \omega_2 - \omega_1 = \omega_{42} - \omega_{31} \qquad \text{условие формирования}$ 

резонанса.

Если же первая световая волна взаимодействует с переходом  $\omega_{42}$ , а вторая — с переходом  $\omega_{31}$ , то

$$\begin{cases} \omega_1 - kV_z = \omega_{42} \\ \omega_2 - kV_z = \omega_{31} \end{cases} \implies \qquad \omega_2 - \omega_1 = -(\omega_{42} - \omega_{31})$$
— условие формирования

резонанса.

Когда обе волны взаимодействуют с одним из двух переходов, резонанс просветления образуется при условии  $\omega_2 = \omega_1$ .

Тогда экспериментальная зависимость сигнала синхронного детектирования S от частоты второго лазера  $\omega_2$  будет иметь следующий вид:



Если регистрировать сигнал *S*, как функцию модуля разности частот лазеров, то экспериментальная кривая будет иметь следующий вид:



б). Рассмотрим теперь резонансы во встречных световых волнах одинаковой частоты.

Пусть одна из встречных волн резонансно поглощается переходом  $\omega_{31}$ , а другая — переходом  $\omega_{42}$ . Частоты обеих волн одинаковы и равны  $\omega$ . Тогда

резонанса.

Столкновительный перекрестный резонанс, как и обычный перекрестный резонанс, расположен ровно посередине двух родительских резонансов.



Слабые молекулярные столкновения переносят провал и пик Беннетта с одного уровня энергии на другой. При этом связанные столкновениями уровни энергии становятся как бы одним уровнем.

Столкновительный резонанс должен быть несколько меньшей амплитуды и несколько большей ширины по сравнению с обычным перекрестным резонансом. Это связано с тем, что столкновение молекул несколько изменяет лучевую скорость молекулы и уширяет провал и пик Беннетта.

## Каскадная схема уровней энергии.

Столкновительные резонансы могут быть и в каскадной схеме уровней энергии.



Слабые молекулярные столкновения могут переносить пик Беннетта с уровня 2 на уровень 3. В таком случае возникает резонансное затемнение среды на переходе  $\omega_{43}$ .

Как и в случае однонаправленных световых волн в каскадной схеме уровней энергии должны наблюдаться резонансы затемнения среды, а не резонансы просветления.



7). Встречные волны с фиксированной разностью частот.

Световые волны с фиксированной разностью частот получают при дифракции света на бегущей ультразвуковой волне — волне плотности среды. Устройство, в котором происходит дифракция света на ультразвуковой волне, называют акустооптическим модулятором (AOM).

Ультразвуковая волна формируется в твердой прозрачной изотропной среде. Например, для излучения CO<sub>2</sub>-лазера с длиной волны  $\lambda = 10$  мкм ультразвуковую волну возбуждают в германии Ge, который прозрачен для излучения  $\lambda = 10$  мкм.

Возбудителем ультразвуковой волны обычно является тонкая кварцевая пластинка. К пластинке прикладывают переменное электрическое напряжение,

и в результате пьезоэлектрического эффекта толщина пластинки изменяется с частотой напряжения Ω. Изменение толщины пластинки ничтожно мало, но если на толщине пластинки укладывается целое число полуволн ультразвуковой волны на частоте электрического напряжения, то колебания ультразвуковые резонансно раскачиваются пластинки ДО значительной В амплитуды. нашей лаборатории использовался акустооптический модулятор с частотой модуляции  $\Omega = 35$  МГц.

Кварцевый возбудитель приклеен и плотно прижат к куску германия. Колебания кварцевой пластинки передаются в германий, в котором возбуждается бегущая ультразвуковая волна плотности, направленная от кварцевой пластинки.



Чтобы волна была бегущей, а не стоячей, отраженную от дальнего края германия волну стараются погасить. С этой целью задний край германия срезан под углом к фронту ультразвуковой волны, и к этому краю прижата мягкая пластинка, в которой ультразвуковая волна должна эффективно затухать.

Ультразвуковая волна в германии представляет собой плоскости большей и меньшей плотности вещества. Плоскости — это поверхности равной фазы ультразвуковой волны, они параллельны кварцевой пластинке. В плоскости с большей плотностью показатель преломления среды тоже оказывается больше.



Пусть световая волна с частотой  $\omega$  падает на акустооптический модулятор справа налево. Плоскости с большим и меньшим показателем преломления вещества представляют собой фазовую дифракционную решетку

для световой волны. Условие дифракции в направлении первого главного дифракционного максимума имеет следующий вид:

 $\Lambda \cdot \left( \sin(\alpha_1) + \sin(\alpha_2) \right) = \lambda \, .$ 

Здесь  $\Lambda$  — длина ультразвуковой волны в германии или шаг дифракционной решетки,  $\alpha_1$  — угол между нормалью к решетке и падающим лучом или угол падения,  $\alpha_2$  — угол дифракции,  $\lambda$  — длина световой волны в германии.

Это уравнение определяет направление дифракции световой волны.

Обычно амплитуда дифрагирующей световой волны очень мала, так как размах изменения показателя преломления в ультразвуковой волне мал. Однако поворотом акустооптического модулятора в плоскости рисунка можно так подобрать значение угла падения  $\alpha_1$ , чтобы угол дифракции  $\alpha_2$  был бы равен углу падения  $\alpha_1$ :

 $\alpha_1 = \alpha_2$ .

При этом условии свет зеркально отражается от плоскости штриха дифракционной решетки, которая совпадает с плоскостью фронта ультразвуковой волны.

Мощность дифрагирующей светового волны достигает 10 % от мощности падающей световой волны при условии, что направление зеркального отражения от каждого штриха совпадает с направлением главного дифракционного максимума решетки.

Световая волна в первом порядке дифракции оказывается сдвинутой по частоте на частоту ультразвуковой волны.

На рисунке, приведенном выше, световая волна отражается от набегающего фронта ультразвуковой волны. Энергия отраженной волны больше, чем энергия падающей волны, и частота больше.

На следующем рисунке показана дифракция световой волны с понижением ее частоты. Световая волна отражается от убегающего фронта ультразвуковой волны.



Можно перейти в систему отсчета, где бегущая ультразвуковая волна стоит на месте. В этой системе отсчета свет дифрагирует на неподвижной решетке. В таком случае, падающая, прошедшая и дифрагирующая световые волны имеют одинаковую частоту. При переходе в неподвижную систему отсчета световые волны, идущие в разных направлениях, испытывают различный доплеровский сдвиг частоты. Это различие в доплеровском сдвиге и приводит к тому, что световая волна, дифрагирующая на движущейся дифракционной решетке, сдвигается по частоте на частоту ультразвуковой волны.

Оптическая схема экспериментальной установки регистрации резонансов насыщения поглощения при фиксированной разности частот встречных световых волн приведена ниже:



Пусть встречные световые волны просветляют среду друг для друга на одном и том же переходе с частотой  $\omega_{21}$ . Тогда

То есть резонанс формируется молекулами с лучевой скоростью  $V_z$ , величина которой пропорциональна фиксированной разности частот встречных волн  $\Omega$ .

Это позволяет исследовать зависимость ширины резонанса от разности частот встречных волн и, следовательно, от лучевой скорости молекул.

Ширина резонанса  $\Delta \omega = \Gamma \left( 1 + \sqrt{1+G} \right)$ , где скорость затухания Г недиагонального элемента матрицы плотности зависит от лучевой скорости молекул  $V_z$ .

На опыте измеряется зависимость ширины резонанса  $\Delta \omega$  от разности частот встречных волн  $\Omega$ . По этой зависимости определяется зависимость скорости затухания  $\Gamma(V_z)$  недиагонального элемента матрицы плотности от

лучевой скорости молекул  $V_z$ . Зависимость  $\Gamma(V_z)$  позволяет исследовать молекулярные столкновения.

8). Интерференционная спектроскопия насыщения поглощения.

Рассмотрим оптическую схему эксперимента:



Преимущество интерференционной спектроскопии над традиционным методом встречных волн одинаковой частоты состоит в том, что резонанс насыщения поглощения оказывается без постоянной подложки. В традиционном варианте обычно резонанс находится на подложке, которая на два - три порядка больше величины резонанса. В таком случае резонанс тонет в шумах подложки. В интерференционной спектроскопии удается убрать подложку и ее шумы.

Для начала рассмотрим пустую кювету. При отражении от передней и задней граней левой плоскопараллельной пластинки образуются два луча, которые пространственно разнесены. Эти два луча проходят кювету и собираются в один луч при отражении от задней и передней граней правой плоскопараллельной пластинки. Этот суммарный луч попадает на приемник света.

При идеальной юстировке оптической схемы два луча на приемнике света окажутся синфазными и будут иметь одинаковую амплитуду.

Если теперь правую плоскопараллельную пластинку слегка повернуть в плоскости рисунка, то изменится длина оптического пути луча внутри этой пластинки. Соответственно изменится разность фаз двух лучей на приемнике света. Подберем угол поворота правой пластинки так, чтобы два луча на приемнике света оказались бы в противофазе и погасили бы друг друга.

В таком случае света на приемнике нет. Если теперь кювету заполнить исследуемым газом, но убрать встречную световую волну, то два луча на приемнике будут по-прежнему гасить друг друга.

Ситуация изменится, если включить встречную световую волну.

Для верхнего луча, идущего слева направо, встречная волна изменяет поглощение, а, следовательно, и показатель преломления. Каждое из этих двух изменений нарушает компенсацию двух световых волн на приемнике, и они перестают полностью гасить друг друга. Напомним, как изменяются коэффициент поглощения  $\aleph$  и показатель преломления *n* под влиянием встречной световой волны.

$$\begin{cases} \aleph = \frac{4\pi\omega}{cn_0} \chi'' \\ n = n_0 + \frac{2\pi}{n_0} \chi' \\ \chi'' = \int_{-\infty}^{+\infty} \chi'_{V_z} dV_z \\ \chi'' = \int_{-\infty}^{+\infty} \chi''_{V_z} dV_z \\ \chi'' = \int_{-\infty}^{+\infty} \chi''_{V_z} dV_z \\ \chi''_{V_z} = -\frac{p^2 N_{0_{V_z}} \left(\rho_{11}(V_z) - \rho_{22}(V_z)\right)}{\hbar} \cdot \frac{\Omega}{\Gamma^2 + \Omega^2}, \text{ где} \\ \chi''_{V_z} = \frac{p^2 N_{0_{V_z}} \left(\rho_{11}(V_z) - \rho_{22}(V_z)\right)}{\hbar} \cdot \frac{\Gamma}{\Gamma^2 + \Omega^2} \\ \rho_{11}(V_z) - \rho_{22}(V_z) = \left(\rho_{11}^0 - \rho_{22}^0\right) \cdot \left(1 - \frac{G_1}{1 + G_1} \mathscr{L}\left(\frac{\Omega_1}{\Gamma\sqrt{1 + G_1}}\right)\right), \text{ где} \\ - \frac{G_1}{1 + G_1} \mathscr{L}\left(\frac{\Omega_1}{\Gamma\sqrt{1 + G_1}}\right) - \text{ провал Беннетта, где} \\ G_1 = \left(\frac{1}{\gamma_1} + \frac{1}{\gamma_2}\right) \cdot \frac{R_1^2}{2\Gamma} - \phi$$
актор насыщения или безразмерная мощность

насыщающей волны, где

$$R_1 = \frac{p \mathcal{E}_{01}}{\hbar} -$$
частота Раби.

Схематически влияние встречной световой волны на показатель преломления *n* и коэффициент поглощения *N* можно выразить следующим образом:

$$G_1 \to \left(\rho_{11} - \rho_{22}\right) \to \begin{cases} \chi'_{V_z} \to \chi' \to n \\ \chi'_{V_z} \to \chi'' \to \aleph \end{cases}.$$

## 9). Поляризационная спектроскопия насыщения поглощения.

Поляризационная спектроскопия насыщения поглощения похожа на интерференционную спектроскопию по своей основной идее. Оптическая схема опыта построена таким образом, что без просветления среды встречной световой волной мощность света на приемнике равна нулю. Нет постоянной засветки приемника, следовательно, нет подложки резонанса, и нет шумов подложки, маскирующих резонанс.

Рассмотрим следующую оптическую схему эксперимента:



Свет лазера проходит через поляризатор. Линейно поляризованный свет отражается от полупрозрачной пластинки и от зеркала и проходит кювету с исследуемым газом слева направо. Встречная световая волна, распространяющаяся справа налево, имеет круговую поляризацию, которая получается из линейной поляризации с помощью фазовой пластинки  $\frac{\lambda}{4}$ .

Если кювета пустая, то волна, прошедшая кювету слева направо, не проходит через скрещенный поляризатор, расположенный перед приемником излучения. Если кювета заполнена газом, но нет встречной световой волны, то скрещенный поляризатор по-прежнему не пускает свет на приемник.

Свет на приемнике возникает только в результате разного просветления среды для двух круговых поляризаций встречной световой волной. Приемник не имеет постоянной засветки, резонанс не имеет подложки, и ее шумы не маскируют резонанс.

Рассмотрим подробнее, как циркулярно поляризованный свет просветляет среду для линейно поляризованной волны.

С этой целью нужно вспомнить, что такое  $\sigma^+$ ,  $\sigma^-$  и  $\pi$  компоненты света.

## \_\_\_\_\_

Произвольную световую волну в некоторой точке пространства можно разложить на свет  $\sigma^+$ ,  $\sigma^-$  и  $\pi$  компонент. Разложение зависит от выбора направления оси квантования. Исторически такое разложение впервые производилось при рассмотрении эффекта Зеемана — расщепления спектральных линий в постоянном магнитном поле.

Нужно рассмотреть свет, как излучение некоторого диполя.

Будем считать, что свет монохроматический. Наиболее общее изменение диполя, которое вызывает излучение монохроматического света — это гармонические колебания диполя вдоль трех декартовых осей координат с разными амплитудами и начальными фазами, но с одинаковой частотой.

Излучение диполя, совершающего колебания вдоль оси квантования, называют  $\pi$  компонентой света. Название связано с тем, что значок  $\pi$  похож на символ параллельности. Это намек на параллельность колебаний диполя и оси квантования.

Пусть ось z направлена вдоль оси квантования. Тогда  $\pi$  компонента света — это излучение света в любом направлении диполем, совершающим колебания вдоль оси z. Колебания диполя по осям x и y можно представить, как сумму двух встречных вращений в плоскости перпендикулярной оси z, вращений с разными амплитудами и начальными фазами.

И действительно. Колебания, направленные вдоль оси *x*, можно разложить на два вращения вокруг оси *z* во встречных направлениях с равными амплитудами и начальными фазами такими, что в начальный момент оба вращающихся вектора направлены вдоль оси *x*.

Аналогично на два вращения можно разложить колебания вдоль оси *y*. Тогда и произвольную сумму колебаний по осям *x* и *y* можно разложить на два вращения с некоторыми начальными фазами и разными амплитудами.



Вращение диполя, которое образует правый винт с направлением оси квантования, излучает так называемую  $\sigma^+$  компоненту света. Вращение диполя, которое образует левый винт с осью квантования, излучает  $\sigma^-$  компоненту света. Первоначально  $\sigma^+$  и  $\sigma^-$  компоненты определялись наоборот. На рисунке для наглядности вращения смещены по оси *z* вверх и вниз.

Рассмотрим, как  $\sigma^+$ ,  $\sigma^-$  и  $\pi$  компоненты света связывают различные магнитные подуровни энергии поглощающего свет перехода.



Рассмотрим схему уровней энергии в простом случае, когда квантовое число полного момента импульса J нижнего уровня энергии равно нулю, а верхнего уровня равно единице. Полный момент импульса равен  $\sqrt{J(J+1)}\hbar$  и

складывается из орбитального момента импульса электронов и их спинового момента импульса.

Проекция момента импульса на ось квантования может принимать только дискретные значения  $m\hbar$ , где m — квантовое число проекции полного момента импульса на ось квантования. Квантовое число m может принимать значения от -J до +J с шагом 1.

В рассматриваемом нами случае нижний уровень энергии J = 0 имеет единственный магнитный подуровень m = 0, а верхний уровень энергии J = 1имеет три магнитных подуровня m = -1, m = 0 и m = +1, которые в нулевом магнитном поле имеют одинаковую энергию.

При рассмотрении атома в постоянном магнитном поле ось квантования обычно направляют вдоль магнитного поля. Подуровень m = +1 имеет положительную проекцию полного момента импульса на ось квантования и на направление магнитного поля. Электрон имеет отрицательный заряд, поэтому магнитный момент электрона направлен противоположно его механическому моменту. Магнитный момент электрона имеет отрицательную проекцию на ось квантования в состоянии m = +1. Энергия магнитного диполя в постоянном магнитном поле  $W = -(\vec{m}, \vec{B}) = -(\vec{m})_z B = -m\hbar\gamma B$  положительна в состоянии m = +1. Здесь  $\gamma < 0$  — гиромагнитное отношение. Следовательно, в магнитном поле уровень энергии m = +1 смещается вверх, а уровень энергии m = -1 смещается вниз.

Вернемся к рассмотрению оптической схемы поляризационной спектроскопии насыщения поглощения.

\_\_\_\_\_

Выберем направление оси квантования вдоль луча, идущего в кювете слева направо. Тогда этот линейно поляризованный свет представляет собой  $\sigma^+$  и  $\sigma^-$  компоненты с одинаковыми амплитудами. Встречная световая волна циркулярно поляризована. Будем для определенности считать, что это  $\sigma^+$  компонента.

Эта встречная световая волна перебрасывает атомы с нижнего уровня на правый верхний. При этом на нижнем уровне возникает провал Беннетта, а на правом верхнем уровне — пик Беннетта.

Поглощение света пропорционально разности заселенностей на верхнем и нижнем уровнях энергии, связанных оптическим переходом. Поглощение  $\sigma^+$  компоненты волны, идущей слева направо, уменьшается и благодаря провалу Беннетта и благодаря пику Беннетта. Поглощение  $\sigma^-$  компоненты уменьшается только благодаря провалу Беннетта на нижнем уровне энергии.

В результате просветление среды для  $\sigma^+$  компоненты больше, чем для  $\sigma^-$  компоненты света, идущего слева направо.

Разное поглощение для двух  $\sigma$  компонент  $\aleph^+ \neq \aleph^-$  называется оптическим дихроизмом.

Дисперсионные соотношения Крамерса-Кронига однозначно связывают коэффициент поглощения с показателем преломления среды. Следовательно, неравенство коэффициентов поглощения двух  $\sigma$  компонент означает неравенство их показателей преломления.

Неравенство показателей преломления  $n^+ \neq n^-$  называется двулучепреломлением.

Каждая из двух причин и оптический дихроизм и двулучепреломление приводит к появлению сигнала на приемнике в поляризационной спектроскопии насыщения поглощения.