

Ю.Н. Пономарев, С.К. Потапов

**ЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА РЕЗОНАНСНЫХ ГАЗОВЫХ СРЕД**

В работе рассматриваются основные закономерности поведения статической поляризации газа в поле резонансного лазерного излучения. Для случая двухуровневых свободно ориентирующихся молекул проведен расчет спектральной зависимости наведенной поляризации. Обсуждаются возможности спектроскопических приложений эффекта.

**Введение**

Нелинейные эффекты, сопровождающие прохождение мощного резонансного излучения через поглощающие среды, многообразны. Они влияют на изменение характеристик проходящего мощного излучения, пробного излучения и поглощающей среды в канале распространения [1]. Прохождение импульса резонансного излучения через среду может вызывать изменения электрических характеристик среды, которые можно использовать в спектроскопии. Так, в [2, 3] лазерный луч пропусклся через газ, находящийся внутри катушки индуктивности, которая подключалась к высокочувствительному осциллографу. Наблюдалась эдс, индуцированная светом, причем величина сигнала зависела от расстройки частоты лазерного излучения относительно частоты линии поглощения. В работе теоретически и экспериментально было изучено влияние резонансного излучения CO<sub>2</sub>-лазера на электрические характеристики газа OsO<sub>4</sub>. Излучение лазера пропусклось через газ, помещенный в конденсатор; на обкладки последнего подавалось постоянное напряжение. Амплитуда излучения модулировалась с частотой 300 Гц, и с обкладок конденсатора фиксировался электрический сигнал такой же частоты. Амплитуда регистрируемого электрического сигнала была пропорциональна давлению газа и интенсивности лазерного излучения и достигала ~10<sup>-5</sup> В/см при резонансе частоты излучения и частоты поглощения газа.

Эти эксперименты показывают, что регистрацию изменения электрических характеристик поглощающей газовой среды под действием оптического излучения с перестраиваемой частотой можно использовать для исследования без необходимой в традиционных методах спектральной аппаратуры.

Совершенствование методики измерения квазистатических характеристик среды под действием лазерного излучения позволит, на наш взгляд, создать достаточно простые спектральные приборы наподобие широко распространенных в настоящее время оптико-акустических и оптико-термических спектрометров.

В настоящей статье в модели двухуровневых свободно ориентирующихся частиц газовой среды рассматриваются основные особенности поведения статической поляризации газа в поле резонансного излучения и обсуждаются возможности спектроскопических приложений эффекта.

**Модель релаксации и формулировка основных уравнений**

Рассмотрим полуклассическую двухуровневую систему, для которой изменение ориентации молекулы описывается классическим образом. Для описания релаксации в такой модели введем следующие релаксационные параметры:  $W_{i\Omega, i\Omega'}$  — скорость релаксации на уровне  $i$  с изменением угла  $\Omega \rightarrow \Omega'$ ;  $W_{i\Omega, j\Omega'}$  — скорость безызлучательного перехода между уровнями с возможным изменением ориентации.

Будем считать, что наиболее вероятны переходы без изменения угла. В этом случае

$$W_{i\Omega, j\Omega'} = \bar{W}_{ij}(\Omega) \delta(\Omega - \Omega'). \quad (1)$$

В присутствии постоянного электрического поля между обкладками конденсатора с напряженностью  $E$  молекулы газа в состоянии равновесия имеют следующее распределение по углу ориентации:

$$\rho_{ii}^{(e)}(\Omega) = C_i e^{a_i \cos^2 \Theta}, \quad a_i = p_i E / kT. \quad (2)$$

Система молекул будет стремиться к такому распределению лишь при действии принципа детального равновесия с учетом статистического поля:

$$e^{a_i \cos \Theta} W_{i\Omega, i\Omega'} = e^{a_i \cos \Theta'} W_{i\Omega', i\Omega} \quad (3)$$

для фиксированного уровня  $i$  и

$$W_{ij} e^{a_i \cos \Theta} = W_{ji} e^{\left( a_j \cos \Theta + \frac{\hbar \omega_{ij}}{\kappa T} \right)} \quad (4)$$

для перехода между уровнями  $i \rightarrow j$ . Здесь  $p_i$  — дипольный момент в  $i$ -м возбужденном состоянии;  $\Theta$  — угол между направлением вектора напряженности постоянного поля  $E$  и осью молекулы.

В простейшем случае (3), (4) выполняются для

$$\left. \begin{aligned} W_{i\Omega, i\Omega'} &= W_i e^{\frac{a_i}{2} (\cos \Theta' - \cos \Theta)} \\ W_{ij}(\Omega) &= W_{ij} e^{-a_i \cos \Theta} \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

где  $W_i, W_{ij}$  не зависят от ориентации.

Поглощение средой резонансного излучения будем описывать в предположении справедливости балансных уравнений, критерии применимости которых хорошо известны [1].

$$\dot{\rho}_{ii} = - (W_{ij}/l_i + W_E + W_i I_i/l_i) \rho_{ii} + W_i R_i/l_i + (W_{ji}/l_j^2 + W_E) \rho_{jj}, \quad (6)$$

где  $i, j = 1, 2, i \neq j$ ;

$$l_i = \exp \left( \frac{a_i}{2} \cos \Theta \right); \quad (7)$$

$$I_i = \int l_i d\Omega; \quad (8)$$

$$R_i = \int \rho_{ii}(\Omega) l_i^{-1} a \Omega. \quad (9)$$

В (8), (9) интегрирование проводится по полному телесному углу.

$$W_E = \frac{\sigma_0 \cos^2 \Theta_\omega I_\omega}{(\omega - \omega_{0E})^2 + \Gamma^2}, \quad (10)$$

$W_E$  — вероятность поглощения излучения на частоте  $\omega$  с интенсивностью  $I_\omega$  в присутствии статического поля  $E$ ;  $\sigma_0$  — сечение поглощения в максимуме линии поглощения;  $\Theta_\omega$  — угол между осью молекулы и вектором напряженности  $E_\omega$  светового поля;  $\Gamma$  — полуширина линии поглощения;  $\omega_{0E}$  — частота перехода в молекуле, зависящая от напряженности статического поля  $E$ :

$$\omega_{0E} = \omega_{21} - \frac{\Delta p E}{\hbar} \cos \Theta, \quad \Delta p = p_2 - p_1.$$

Систему уравнений (6) необходимо решать с учетом условия нормировки

$$\int [\rho_{11}(\Omega) + \rho_{22}(\Omega)] d\Omega = 1. \quad (11)$$

Система уравнений (6) является системой интегро-дифференциальных уравнений, и ее полный анализ затруднителен. Однако в стационарном случае ( $\dot{\rho}_{ii} = 0$ ), разрешая получившуюся систему алгебраических уравнений относительно  $\rho_{ii}$ , получим

$$\rho_{ii} = \Delta_i / \Delta, \quad (12)$$

где

$$\Delta = W_1 W_2 I_1 I_2 + (W_{12}/l_1^2 + W_E) W_2 I_2/l_2 + (W_{21}/l_2^2 + W_E) W_1 I_1/l_1, \quad (13)$$

$$\Delta_i = (W_{ji}/l_j^2 + W_E + W_j I_j/l_j) W_i R_i l_i + (W_{ji}/l_j^2 + W_E) W_j R_j l_j, j \neq i. \quad (14)$$

Умножая (12) на  $l_i^{-1}$  и интегрируя по телесному углу, получим систему уравнений для  $R_i$ :

$$R_i = \left( W_{ji} W_i \int \frac{d\Omega}{l_j^2 \Delta} + W_i \int \frac{W_E d\Omega}{\Delta} + W_i W_j I_j \int \frac{d\Omega}{l_j \Delta} \right) R_i + \left( W_{ji} W_j \int \frac{d\Omega}{l_i l_j \Delta} + W_j \int \frac{W_E l_j d\Omega}{l_i \Delta} \right) R_j, \quad (15)$$

$$i, j = 1, 2, i \neq j.$$

Все интегралы в (15) являются известными функциями дипольных моментов  $p_i$ , температуры  $T$ , релаксационных параметров, расстройки  $\delta = \omega - \omega_0$  (в нулевом статическом поле), интенсивности излучения  $I$  и угла  $\Theta_0$  между векторами напряженности статического поля  $\mathbf{E}$  и поля световой волны  $\mathbf{E}_\omega$ .

Находя  $R_i$  из (15) и подставляя в (12), можно найти  $\rho_{ii}$ . Можно проверить, что полученное решение при выбранном способе интегрирования удовлетворяет условию нормировки (11).

### Статическая поляризация среды, индуцированная лазерным излучением

Рассмотрим параллельную и перпендикулярную составляющие наведенной поляризации при векторе  $\mathbf{E}$  статического поля, совпадающем с осью  $z$  (рис. 1). Для  $i$ -й компоненты поляризации ( $i = z, x$ ) имеем

$$P_i = \frac{p_1 + p_2}{2} \langle \cos \Theta_i (\rho_{11} + \rho_{22}) \rangle_{\Theta, \varphi} + \frac{p_1 - p_2}{2} \langle \cos \Theta_i (\rho_{11} - \rho_{22}) \rangle_{\Theta, \varphi}, \quad (16)$$

$\langle \dots \rangle_{\Theta, \varphi}$  означает усреднение по ориентациям,  $\cos \Theta_z = \cos \Theta$  для параллельной составляющей, а  $\cos \Theta_x = \sin \Theta \cos \varphi$  для перпендикулярной составляющей.

При взаимодействии квазимонохроматического оптического излучения интенсивностью менее  $10^6 \dots 10^7$  Вт/см<sup>2</sup> с колебательно-вращательными переходами малых молекул реализуется, как правило, случай слабого насыщения [5]. Для этого случая возможно провести анализ различных механизмов поляризации.

Соответствующие выражения для  $P_i$  можно получить непосредственно из формул (13)–(16) разложением в ряд по степеням  $W_E$ .

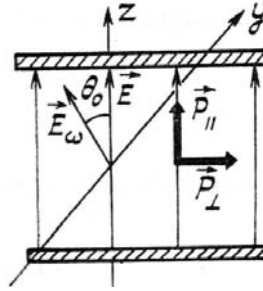


Рис. 1. Схема прохождения излучения через газ с конденсатором

Можно этот же результат получить, полагая

$$\rho_{ii} = \rho_{ii}^{(e)} + \delta \rho_{ii}, \quad (17)$$

где  $\rho_{ii}^{(e)}$  – равновесная заселенность в присутствии статического электрического поля, определяемая выражением (2). Подставляя (17) в (6) и линеаризуя систему (6), получим:

$$\left. \begin{aligned} (W_{12}/l_1^2 + W_1 I_1/l_1) \delta \rho_{11} - (W_{12}/l_2^2) \delta \rho_{22} &= -W_E d_0 + W_1 \delta R_1 l_1 \\ - (W_{12}/l_1^2) \delta \rho_{11} + (W_{21}/l_1^2 + W_2 I_2/l_2) \delta \rho_{22} &= W_E d_0 + W_2 \delta R_2 l_2 \end{aligned} \right\}. \quad (18)$$

Здесь по аналогии с (9)

$$\delta R_i = \int \delta \rho_{ii}(\Omega) l_i^{-1} d\Omega. \quad (19)$$

Интегрируя (18), получим систему уравнений для

$$\delta R_i \text{ и } \delta N_i = \int \delta \rho_{ii}(\Omega) d\Omega.$$

Используя вытекающие из условия нормировки соотношение  $\delta N_1 = -\delta N_2$ , находим из полученной системы  $\delta R_1$  и  $\delta R_2$ , а затем из (18)  $\delta \rho_{11}$  и  $\delta \rho_{22}$ . Подставляя результаты в формулу (16), для  $P_i$  получим с учетом обычно выполняемых соотношений:

$$a_i \ll 1, \left| \frac{p_2 - p_1}{p_2 + p_1} \right| \ll 1 \rightarrow a_1 \approx a_2, l_i \approx 1 + \frac{a_i}{2} \cos \Theta,$$

следующие выражения для составляющих поляризации:

а) параллельной статическому полю

$$\begin{aligned} \langle \delta P_{\parallel} \rangle = & \frac{d_0(p_1 - p_2)}{2B} \left\{ - (W_1 + W_2) \left[ C_1 + \frac{a}{2} C_2 \left( 4 - \frac{W_1 W_2}{B} \right) \right] + \right. \\ & + \frac{a C_0}{3(W_{21} + W_{12})} \left[ V \left( 1 - \frac{W_1 W_2}{2B} \right) + W_1 W_2 \left( \frac{W_1 W_2}{B} - 3 \right) \right] + \frac{d_0(p_1 + p_2)}{2B} (W_1 - W_2) \times \\ & \times \left. \left\{ C_1 + \frac{a}{2} \left( 4 - \frac{W_1 W_2}{2} \right) C_2 + \frac{a C_0}{3} \left( 1 - \frac{W_1 W_2}{2B} \right) \right\} \right\}, \end{aligned} \quad (20)$$

где

$$\begin{aligned} B &= W_1 W_2 + W_2 W_{12} + W_1 W_{21}; \quad V = (W_1 - W_2)(W_{12} - W_{21}); \\ d_0 &= (W_{21} - W_{12}) / (W_{21} + W_{12}); \\ C_n &= \int \cos^n \Theta W_E d\Omega; \end{aligned}$$

б) перпендикулярной статическому полю

$$\begin{aligned} \langle \delta P_{\perp} \rangle = & \frac{d_0(p_1 - p_2)}{2B} \left\{ - S_0 (W_1 + W_2) + \frac{a}{2} (W_1 + W_2) S_1 V_1 \right\} + \\ & + \frac{d_0(p_1 + p_2)}{2B} \left\{ (W_1 - W_2) \left( S_0 - \frac{a}{2} S_1 W_1 \right) \right\}, \end{aligned} \quad (21)$$

где  $V_1 = \frac{W_1 W_2}{B} - 4$ , а  $S_n = \int \cos^n \Theta \sin \Theta \cos \Phi W_E d\Omega$ .

Отметим, что интегралы  $C_n$  и  $S_n$  существенно зависят от параметра штарковского сдвига  $b = \frac{(p_1 - p_2)E}{\hbar \Gamma}$ . При малых  $b$   $C_0, S_0 \rightarrow 0$ , а  $C_1, S_1 \neq 0$ .

Выражения (20), (21) позволяют выделить различные механизмы влияния резонансного оптического излучения на статическую поляризуемость поглощающего газа:

1) Изменение поляризуемости при возбуждении из-за различия дипольных моментов основного и возбужденного состояния, характерный параметр  $\frac{p_1 - p_2}{p_1 + p_2}$ . Для колебательно-вращательных переходов

в молекуле  $H_2O$  этот параметр может достигать величины 5–6% [5].

2) Выжигание «дырки» в ориентациях из-за зависимости частоты перехода от ориентации, параметр —  $b$ ; , характеризующий штарковский сдвиг в поле  $E$ .

3) Различный вклад обоих эффектов из-за различной ориентационной релаксации нижнего и верхнего состояний, параметр

$$W = (W_1 - W_2) / (W_1 + W_2).$$

Расчет переменной составляющей напряжения, возникающей на обкладках конденсатора, когда через поглощающий газ внутри конденсатора проходит модулированное резонансное излучение, проводился при следующих значениях параметров:  $\Theta_0 = 45^\circ$ ;  $W_1 = 10^8 \text{ c}^{-1}$ ;  $W_2 = (1,02 \div 1,06) \cdot 10^8 \text{ c}^{-1}$ ,  $\Gamma = (3,2 \div 0,8) \cdot 10^9 \text{ c}^{-1}$ ;  $p_1 = 1,0 \text{ D}$ ;  $p_2 = 1,05 \text{ D}$ ;  $W_{21} \approx 10^7 \text{ c}^{-1}$ ;  $W_{12} = 0$ ;  $E = 3 \cdot 10^3 \text{ В/см}$ ;  $I = 0,1 \text{ I}_s$ ,

плотность поглощающих молекул  $N \sim 10^{19} \text{ см}^{-3}$ . Амплитуда напряжения на обкладках конденсатора определяется выражением

$$U_{(\parallel, \perp)} = -4\pi N \langle P_{\parallel, \perp} \rangle \hbar, \quad (22)$$

где  $h$  — расстояние между обкладками конденсатора. В расчетах было принято  $h = 1 \text{ см}$ .

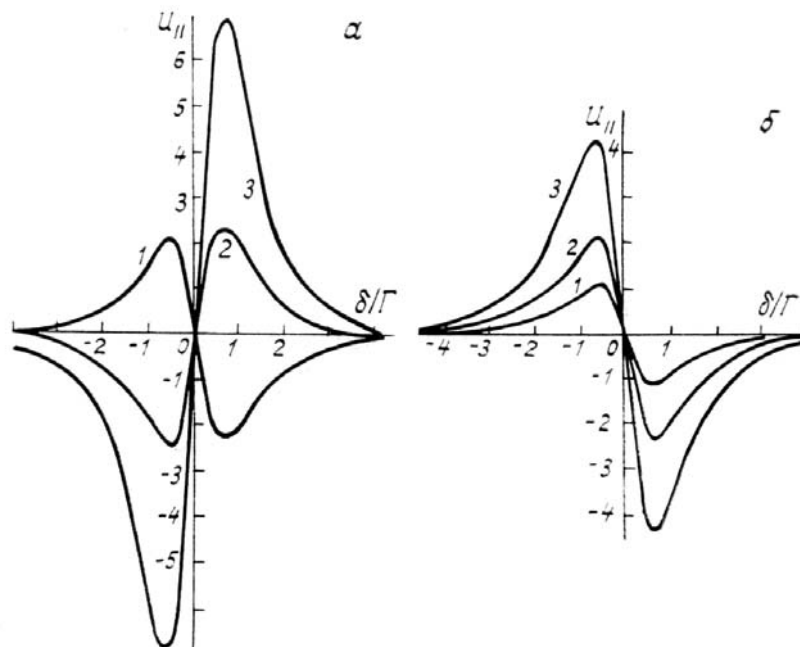


Рис. 2. Спектральная зависимость амплитуд сигналов  $U_{\parallel}$ : а) от параметра ориентации  $W$ : 1)  $W = -0,0991$ ; 2)  $W = -0,0196$ ; 3)  $W = -0,0291$ ;  $\Gamma = 1,6 \cdot 10^9 \text{ с}^{-1}$ ; б) от ширины линии  $\Gamma$ : 1)  $\Gamma = 3,2 \cdot 10^9 \text{ с}^{-1}$  ( $b = 0,14$ ); 2)  $\Gamma = 1,6 \cdot 10^9 \text{ с}^{-1}$  ( $b = 0,28$ ); 3)  $\Gamma = 0,8 \cdot 10^9 \text{ с}^{-1}$  ( $b = 0,56$ )

Графики зависимостей  $U_{\parallel, \perp}$  от параметров  $b$ ,  $W$  и  $\delta$  ( $\delta$  — расстройка лазерной частоты от резонанса) приведены на рис. 2, 3. Для всех зависимостей от  $\delta$  характерна почти точная антисимметрия при замене  $\delta$  на  $-\delta$ . Это свидетельствует о преобладании «штарковского» механизма с выжиганием «дырки» в ориентациях. Как видно из рис. 2, величина эффекта поляризации газа пропорциональна  $b$ ; вариации параметров  $p_1$ ,  $p_2$ ,  $E$ ,  $\Gamma$  при фиксированном значении параметра  $b$  слабо сказываются на поведении  $U_{\parallel, \perp}$ .

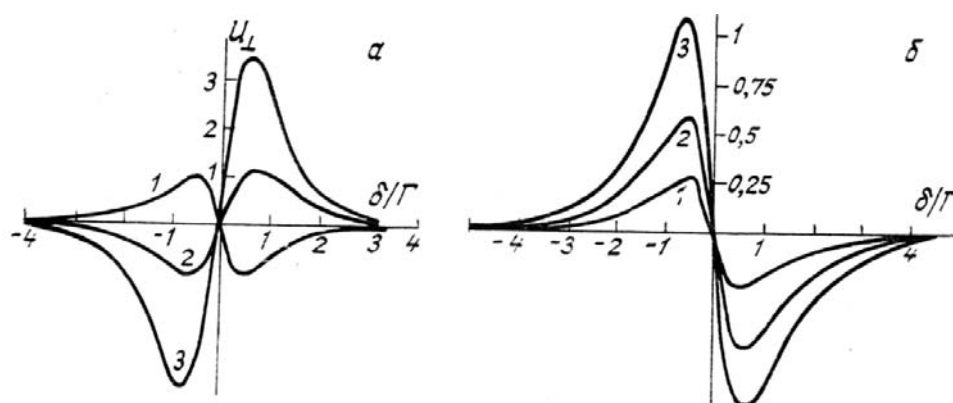


Рис. 3. Спектральная зависимость амплитуд сигналов  $U_{\perp}$ : а и б — см. подрисуночную подпись к рис. 2

Рис. 3 показывает, что величина и даже знак эффекта очень чувствительны к изменению ориентационной релаксации в основном и возбужденном состояниях. Поэтому экспериментальное наблюдение рассмотренного эффекта дает возможность исследования процессов ориентационной релаксации молекул в поле лазерного излучения.

Как видно из рис. 2, 3, величина  $U_{\perp}$  примерно в 2 раза меньше  $U_{\parallel}$  для одинаковых условий эксперимента. Однако регистрировать  $U_{\perp}$  оказывается удобнее, т.к. в этом случае достигается почти полная развязка с целью питания конденсатора, в котором создается статическое поле.

Таким образом, предлагаемая простая экспериментальная методика может быть, наряду с оптико-акустическим детектированием, использована для регистрации изменения оптических характеристик среды в локализованном объеме в зависимости от изменения характеристик лазерного излучения.

1. Апанасевич П. А. Основы теории взаимодействия света с веществом. Минск: Наука и техника, 1977. 496 с.
2. Дабагян А. А., Мовсесян М. Е., Мовсесян Р. Е. // Письма в ЖЭТФ. Т. 29. 1979. С. 586.
3. Бадалян А. И., Дабагян А. А., Мовсесян М. Е. // Изв. АН СССР. Сер. Физич. 1979. Т. 43. С. 304.
4. Базаров Е. Н., Герасимов Г. А., Дербов В. М., Ковнер М. А., Потапов С. К. // Квантовая электроника. 1978. № 5. С. 1083.
5. Антипов А. Б., Капитанов В. П., Пономарев Ю. Н., Сапожникова В. А. Оптико-акустический метод в лазерной спектроскопии. Новосибирск: Наука, 1984. 128 с.

Институт оптики атмосферы СО АН СССР,  
г. Томск  
Саратовский государственный университет

Поступила в редакцию  
23 ноября 1989 г.

Yu. N. Ponomarev, S. K. Potapov. **Electrical Properties of the Resonance Gaseous Media.**

The paper deals with the study of static polarization of a gas in the field of resonance laser radiation. There are presented in the paper the calculational results of spectral behavior of the induced polarization for two-level, freely oriented molecules. Possible spectroscopic applications of the effect are discussed.