

УДК 535-14

ОСОБЕННОСТИ МЕТОДА ЧАСТОТНОЙ МОДУЛЯЦИИ ПРИ ИССЛЕДОВАНИИ ФОРМЫ СПЕКТРАЛЬНЫХ ЛИНИЙ НЕЛИНЕЙНОГО ПОГЛОЩЕНИЯ

Г. Ю. Голубятников*, С. П. Белов, А. В. Лапинов

Институт прикладной физики РАН, г. Нижний Новгород, Россия

В работе кратко рассмотрен метод частотной (фазовой) модуляции и детектирования сигнала на второй гармонике частоты модуляции для записи и анализа формы спектральных линий. В измерениях использовался прецизионный субдоплеровский спектрометр миллиметрового и субмиллиметрового диапазонов длин волн, работающий в режиме нелинейного насыщения спектральных переходов в стоячей волне (метод провала Лэмба). Продемонстрировано влияние степени насыщения на величину и форму регистрируемых частотно-модулированных сигналов в квадратурных каналах при синхронном детектировании. Наблюдалось изменение отношения между сигналами, определяемыми дисперсией и поглощением. Экспериментально показана необходимость учёта влияния дисперсии групповой скорости и когерентных эффектов на форму регистрируемых спектральных линий.

ВВЕДЕНИЕ

Для получения прецизионных лабораторных значений частот молекулярных переходов и наблюдения их сверхтонкой структуры используются методы нелинейного поглощения мощности излучения, которые позволяют существенно повысить разрешение, ограниченное доплеровским уширением. Метод провала Лэмба (см. работу [1] и ссылки в ней) позволяет получить узкий нелинейный резонанс строго в центре спектральной линии в результате насыщения населённости уровней молекулярного перехода встречными волнами излучения. При этом существенно повышается точность измерений центральных частот молекулярных переходов [2] и открывается возможность изучения сверхтонкой структуры внутри доплеровской линии, что представляет интерес для наземной и космической радиоастрономии [3].

Контраст провала Лэмба (т. е. отношение уменьшения амплитуды в центре линии к общей амплитуде) на контуре линии, уширенной в результате эффекта Доплера, обычно не превышает 13 % [4]. Для повышения контраста и, соответственно, отношения сигнал/шум применяется частотная модуляция, проходящего через газ излучения [5, 6]. Обычно используется синусоидальное изменение частоты излучения $\nu(t) = \nu + \Delta \sin(2\pi\nu_m t)$, где ν — частота излучения, ν_m — частота модуляции, $\Delta = \delta \nu_m$ — девиация частоты, δ — индекс модуляции. Метод частотной модуляции также широко используется в обычной линейной спектроскопии прямого поглощения с целью увеличения отношения сигнал/шум, улучшения частотного разрешения и уменьшения влияния базовой линии. Кроме того, метод частотной модуляции очень чувствителен к изменениям формы линии по сравнению, например, с амплитудной модуляцией, поскольку связанный с линией сигнал на второй гармонике частоты модуляции $2\nu_m$ пропорционален второй производной от контура линии.

Количественная информация из экспериментальных записей контуров спектральных линий извлекается путём анализа теоретической модели контура. Нелинейный резонанс при низких давлениях газа в простейшем случае можно описать как уменьшение поглощения в центре уширенной

* glb@appl.sci-nnov.ru

эффектом Доплера линии. Данное уменьшение имеет форму контура Лоренца с шириной, определяемой столкновениями молекул. Результаты работ [7–9] свидетельствуют о сильном различии столкновительных коэффициентов уширения нелинейного резонанса при малых давлениях в CO_2 и CH_4 по сравнению с линией линейного поглощения при больших давлениях. Такое различие в коэффициентах уширений объясняется вкладом в интеграл столкновений частиц с рассеянием на малые углы и дифракционным рассеянием [9]. Это делает привлекательным метод провала Лэмба для исследований влияний различного типа молекулярных столкновений на форму нелинейного резонанса по сравнению с линейным случаем, где вариации формы линии составляют всего несколько процентов [10].

С другой стороны, при низких давлениях время взаимодействия частиц с полем может определяться не столкновениями, а пролётным временем $\tau = a/V_0$, где a — радиус пучка, $V_0 = \sqrt{2k_B T_0/M_m}$ — скорость молекулы с массой M_m , k_B — постоянная Больцмана, T_0 — температура газа в ячейке. При условии $\Gamma\tau \ll 1$ (Γ — однородная полуширина линии, определяемая столкновениями) и малом параметре насыщения $G < 1$ (т. е. отношении мощности излучения к насыщающей мощности) ширина нелинейного резонанса определяется выражением $\gamma = 1,51(\Gamma/\tau)^{0,5}$, отличным от выражения $\gamma = \Gamma(1 + G)^{0,5}$ [11–13], справедливого в случае $\Gamma\tau > 1$. При указанных условиях взаимодействовать с полем излучения будут только очень медленные частицы с эффективной температурой $T_{\text{eff}} = (\Gamma\tau)^2 T_0$, что позволяет получить очень узкие резонансы (с шириной линии меньше 100 Гц) [14, 15]. Но, поскольку интенсивность резонанса сильно падает при низких давлениях (пропорционально p^3 [12]), реализовать данный режим на обычном спектрометре достаточно сложно.

Когда ширина нелинейного резонанса сравнима с обратным временем перестройки частоты через линию (Δ или $\nu_m \gg \gamma$), необходимо учитывать не только модуляционные искажения спектра частотно модулированного сигнала, но и влияние нестационарных эффектов, таких как временное биение частотных компонент. Если при этом время осцилляций населённостей между уровнями с номерами n и m , определяемое частотой Раби $g = d_{nm}E/\hbar$, меньше времени релаксации ($g > \Gamma$), то необходимо принимать во внимание когерентные переходные эффекты, такие как индуцированное излучение молекул (здесь d_{nm} — дипольный момент спектрального перехода, E — напряжённость электрического поля излучения, \hbar — постоянная Планка). Для импульсного излучения данное явление в нелинейном случае известно как эффект самоиндуцированной прозрачности для 2π -импульсов [16, 17], при этом наблюдается сильное замедление распространения импульса возмущения через поглощающую среду.

Необходимо отметить, что в миллиметровом и субмиллиметровом диапазонах длин волн указанные выше эффекты могут проявляться одновременно, поскольку из-за относительно небольшого доплеровского уширения (0,1÷1,0 МГц) по сравнению с однородным столкновительным уширением (типичный коэффициент уширения составляет 3÷20 кГц/мторр) метод провала Лэмба ограничен низкими давлениями $p \leq 1\div 3$ мторр. При интенсивности источника излучения порядка 1 мВт/см² частота Раби даже для слабых переходов (для молекулы СО дипольный момент $d \approx 0,1$ Д) будет примерно 30 кГц, что накладывает определённые ограничения на мощность излучения и параметры частотной модуляции при исследовании тех или иных физических процессов.

В англоязычной литературе спектроскопия при частотной модуляции разделяется на два типа по способу модуляции лазерного излучения. Критерием разделения является отношение частоты модуляции к ширине исследуемой спектральной линии ($2\Delta\nu$) [18]. Частотная модуляция (frequency modulation, FM) соответствует случаю, когда частота модуляции много больше ширины линии [19, 20], при этом индекс модуляции выбирается обычно $\delta < 1$, т. е. в спектре излучения имеются только две боковые частоты. Данный метод модуляции применяется для достижения

максимальной чувствительности (частота модуляции превышает область низкочастотных шумов, в том числе дробовых), когда поглощающая ячейка сочетается с высокочастотным резонатором [21, 22] и спектр боковых частот совпадает с частотным интервалом мод резонатора.

Модуляция длины волны излучения (wavelength modulation, WM) соответствует случаю, когда частота модуляции не превышает ширину линии [23, 24]. При этом девиация частоты чаще всего выбирается близкой к ширине линии, когда связанный с линией сигнал максимален, а искажения формы линии за счёт модуляционного уширения не слишком велики. При частоте модуляции существенно меньше ширины линии можно пренебречь влиянием частоты модуляции на форму линии. Это так называемый случай «замороженной» модуляции [5, 25]. Для ненасыщенной лоренцевской линии ($\nu_m \ll \Delta\nu_L$) существуют аналитические модели контура как для первых двух гармоник модуляции [26–27], так и для более высоких гармоник ($n\nu_m$, $n > 2$) [5, 23], при произвольной девиации частоты. Для доплеровского контура аналитические выражения усложняются [24, 29], а для профиля Фойгта обычно используются численные расчёты [29] или приближённые выражения [31].

Когда частота модуляции сравнима с шириной линии ($\nu_m \sim \Delta\nu$) при синхронном детектировании демодулированный частотно-модулированный связанный с линией сигнал определяется не только поглощением, но и дисперсией, а результирующий профиль линии будет зависеть также и от разности фаз частот модуляции и опорного сигнала.

В условиях оптического насыщения спектральных переходов стандартные доплеровский, лоренцевский и фойгтовский профили изменяются под действием падающего излучения. При малом параметре насыщения $G < 1$, как отмечено ранее, контур Лэмба можно представить с хорошим приближением в виде суммы доплеровского и лоренцевского контуров. При большом параметре насыщения ($G > 1$) анализ и выбор адекватной модели, описывающей контур линии, усложняются. Как отмечено в работах [32–34], для линии насыщения отношение между дисперсией и поглощением перестаёт описываться соотношениями Крамерса—Кронига. Происходит увеличение контраста дисперсионной части (или фазы) провала Лэмба до 0,45 при $G \gg 1$ по сравнению с максимальным контрастом для коэффициента поглощения, равным 0,13 при $G = 1,4$.

Несмотря на сложность и неоднозначность анализа формы линии при низких давлениях ($\Gamma\tau \ll 1$) и $G > 1$, метод частотной модуляции остаётся вне конкуренции для исследования физических процессов взаимодействия излучения с веществом.

Ниже приведены примеры измерений спектральных линий, демонстрирующих влияние нелинейного поглощения на их форму и фазу сигналов в квадратурных каналах при синхронном детектировании. Рассмотрено возможное влияние на профиль линий когерентных эффектов и дисперсии групповой скорости излучения. В узких спектральных линиях наблюдается значительное снижение групповой скорости излучения, (см. например, эксперименты с «медленным светом» [35]), поэтому в статье приведены оценки изменения групповой скорости для перехода $J = 3 \leftarrow 2$ молекулы CO.

1. ФОРМА СИГНАЛА, СВЯЗАННОГО СО СПЕКТРАЛЬНОЙ ЛИНИЕЙ, ПРИ ЧАСТОТНОЙ МОДУЛЯЦИИ

Спектр поля частотно модулированного излучения можно представить в виде ряда по гармоникам частоты модуляции $\nu \pm n\nu_m$:

$$E(t) = E_0 \exp\{i[\omega t + \delta \sin(2\pi\nu_m t)]\} = E_0 \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n(\delta) \exp[i(\omega + n2\pi\nu_m)t], \quad (1)$$

где $\omega = 2\pi\nu$ — круговая частота излучения, J_n — функции Бесселя. Чётные ($\nu \pm 2n\nu_m$, $\nu \pm 4n\nu_m, \dots$) и нечётные ($\nu \pm n\nu_m$, $\nu \pm 3n\nu_m, \dots$) гармоники боковых частот находятся в квадратуре (разность фаз $\pi/2$). Демодуляция сигнала и запись линии осуществляется с помощью синхронного усилителя (в англоязычной литературе используется термин — lock-in amplifier). Данный усилитель представляет собой фазовый детектор, на один вход которого подаётся сигнал излучения с фотоприёмника, на второй — опорный сигнал на частоте модуляции. Выходной сигнал пропорционален величине $I(\omega) \cos(\Delta\phi)$ где $I(\omega)$ — прошедший через образец сигнал, $\Delta\phi$ — разность фаз между модулирующим и опорным сигналами. Частотным дискриминатором служит сама линия поглощения. Чтобы не терять информацию о прошедшем сигнале, применяется квадратурный приём: используются два фазовых детектора, у которых фазы опорных сигналов сдвинуты между собой на $\pi/2$, а записываемые сигналы пропорциональны $I(\omega) \cos(\Delta\phi)$ и $I(\omega) \sin(\Delta\phi)$.

В наших измерениях использовался метод модуляции длины волны излучения (WM), т. е. расщепления линии на отдельные спектральные компоненты не происходило ($\nu_m/\Delta\nu < 1$). В приближении низкой частоты модуляции («замороженной» модуляции), когда расстояние между боковыми частотами меньше ширины линии, $\nu_m/\Delta\nu \ll 1$, контур Лоренца на второй гармонике модуляции в линейном случае можно записать в следующем виде [5]:

$$K_2(\Omega) = \frac{S}{\pi} \operatorname{Re} \left\{ [\Delta^2 + (\Delta\nu_L + i\Omega)^2]^{-1/2} - 2 / \left[\Delta\nu_L + i\Omega + \sqrt{\Delta^2 + (\Delta\nu_L + i\Omega)^2} + \Delta^2 / (\Delta\nu_L + i\Omega) \right] \right\}^{-1}. \quad (2)$$

Здесь S — амплитуда в центре линии ν_0 , $\Omega = \nu - \nu_0$ — отстройка частоты от центра линии, полуширина линии $\Delta\nu_L = \Gamma$. Данное выражение справедливо для произвольной девиации частоты, и его можно использовать с хорошим приближением для частот модуляции $\nu_m/\Delta\nu_L < 0,2$. Зависимость амплитуды сигнала на второй гармонике от девиации частоты Δ имеет немонотонный характер [27, 28]. С увеличением девиации сигнал растёт и достигает максимума при $\Delta/\Delta\nu_L \approx 2,2$, полуширина регистрируемой линии при этом $\Delta\nu \approx \Delta\nu_L$, и далее амплитуда с увеличением девиации медленно падает, а ширина линии продолжает расти. Формулы, приведённые в более ранних работах [27–29], несколько отличаются по форме записи от (2), но все они дают одинаковый результат.

В выражение (2) частота модуляции не входит, но при произвольном отношении $\nu_m/\Delta\nu$ сигналы при частотной модуляции определяются как коэффициентом поглощения S_l , так и коэффициентом преломления среды (дисперсией) D_l . Сигналы в квадратурных каналах, назовём их косинусным, $I_{\cos l}(\Omega, \varphi)$, и синусным, $I_{\sin l}(\Omega, \varphi)$, сигналами, запишутся как

$$I_{\cos l}(\Omega, \varphi) = -S_l(\Omega) \cos \varphi + D_l(\Omega) \sin \varphi, \quad I_{\sin l}(\Omega, \varphi) = S_l(\Omega) \sin \varphi + D_l(\Omega) \cos \varphi, \quad (3)$$

где $\varphi = \Delta\phi + \Phi$ — разность фаз между опорным сигналом модуляции и сигналом с детектора, Φ — случайная фаза, l — номер гармоники частоты модуляции. Для контура Лоренца выражения для S_l и D_l можно представить в виде рядов (см. [5])

$$S_l(\Omega) \propto - \sum_{n=-M+1}^{M-1} J_n(\delta) J_{n-l}(\delta) (\alpha_n + \alpha_{n-l}), \quad D_l(\Omega) \propto \sum_{n=-M+1}^{M-1} J_n(\delta) J_{n-l}(\delta) (\beta_{n-l} - \beta_n). \quad (4)$$

Коэффициенты α_n и β_n определяются формулами

$$\alpha_n = \frac{1}{1 + (\Omega + n\nu_m)^2 / \Delta\nu_L^2}, \quad \beta_n = \frac{(\Omega + n\nu_m) / \Delta\nu_L}{1 + (\Omega + n\nu_m)^2 / \Delta\nu_L^2}. \quad (5)$$

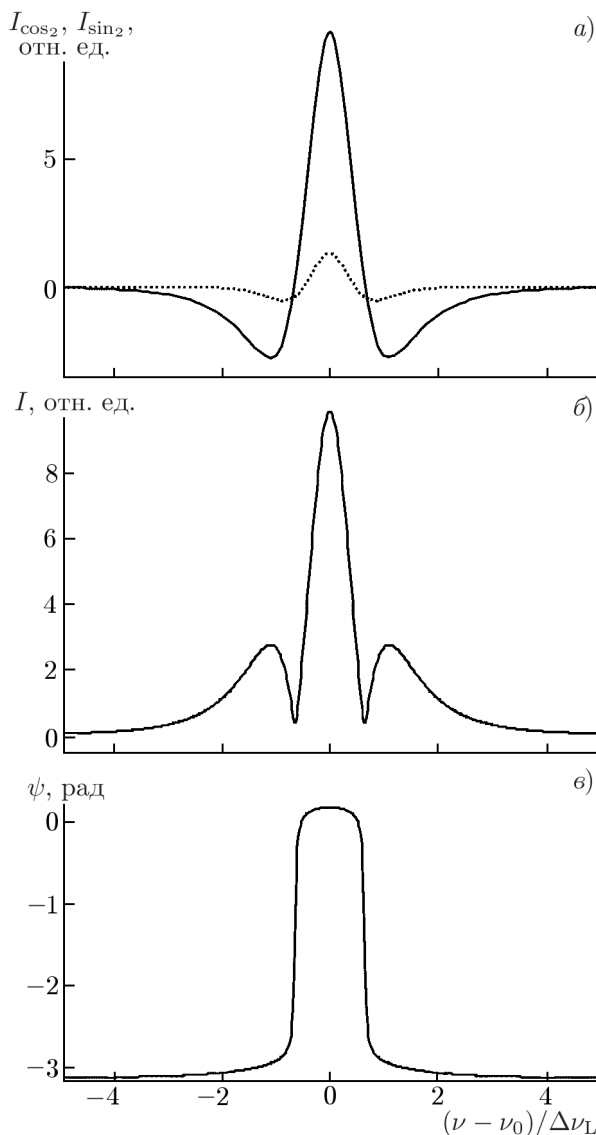


Рис. 1. Расчётные профили линии Лоренца на 2-й гармонике частоты модуляции при $\nu_m/\Gamma = 0,05$, $\delta = 10$: амплитуда $I_{\cos_2}(\Omega, \varphi = 0)$, дисперсия $I_{\sin_2}(\Omega, \varphi = 0)$ (а, сплошная и пунктирная линии соответственно); модуль амплитуды сигнала (б) и фаза $\psi(\Omega)$ (в)

сто только сигнал поглощения $S_2(\Omega)$, а в другом — $D_2(\Omega)$. При произвольном отношении $\nu_m/\Delta\nu_L$ вместо выражения (2) нужно пользоваться формулами (3)–(5).

Вышеприведённый анализ для контура Лоренца качественно справедлив и для других профилей линии (контуров Доплера, Фойгта) с провалом Лэмба, однако формулы становятся более громоздкими. Для провала Лэмба выражение для формы линии в зависимости от коэффициента насыщения дано в нашей предыдущей работе [5], формула (20). Как видно из рис. 3 и 4 в этой работе, для случая, когда ширина провала Лэмба не сильно отличается от ширины доплеровского контура (порядка $0,1 \Delta\nu$), искажение контура Доплера проявляется уже при относительно

Выражение (4) даёт точность приближения порядка 10^{-4} при $M = [1,8\delta + 3,4]$, где квадратные скобки обозначают целую часть. Количество членов разложения пропорционально индексу модуляции $M \propto \delta$.

Сигнал, связанный со спектральной линией, можно регистрировать также в виде комплексной амплитуды $I(\Omega) = \sqrt{[I_{\cos}(\Omega, \varphi)]^2 + [I_{\sin}(\Omega, \varphi)]^2}$ и аргумента $\psi(\Omega, \varphi) = \arctg[I_{\sin}(\Omega, \varphi)/I_{\cos}(\Omega, \varphi)]$. Для величины $\psi(\Omega, \varphi)$ далее будет использоваться термин линия фазы. Форма функции $\psi(\Omega)$ не зависит от фазы модуляции φ . Линия фазы несёт также информацию о соотношении между сигналами поглощения $S_l(\Omega)$ и дисперсии $D_l(\Omega)$.

Характерные профили лоренцевской линии на второй гармонике модуляции для $I_{\sin_2}(\Omega, 0)$, $I_{\cos_2}(\Omega, 0)$ и $I(\Omega)$, $\psi(\Omega)$ представлены на рис. 1. Форма $\psi(\Omega)$ (рис. 1в) при малых по сравнению с шириной линии частотах модуляции имеет П-образный профиль; разность значений фаз на крыльях линии и в центре (т. е. размах линии) примерно равен π . При увеличении частоты модуляции и мощности излучения склоны линии $\psi(\Omega)$ становятся более пологими, как это видно для доплеровского контура на соответствующих панелях рис. 2 и 3, а размах линии фазы увеличивается (становится больше π).

Отметим, что при $\nu_m/\Delta\nu_L < 0,01$ отношение между максимальными сигналами дисперсии и поглощения на второй гармонике модуляции $D_2(0)/S_2(0) < 0,03$, т. е. влияние дисперсионного члена можно не принимать во внимание. Но уже при $\nu_m/\Delta\nu_L = 0,1$ это отношение перестаёт быть малым ($D_2(0)/S_2(0) = 0,3$). Поэтому, чтобы использовать аналитическое выражение (2), необходимо подстраивать фазу модуляции φ таким образом, чтобы в одном из каналов (3) имел место

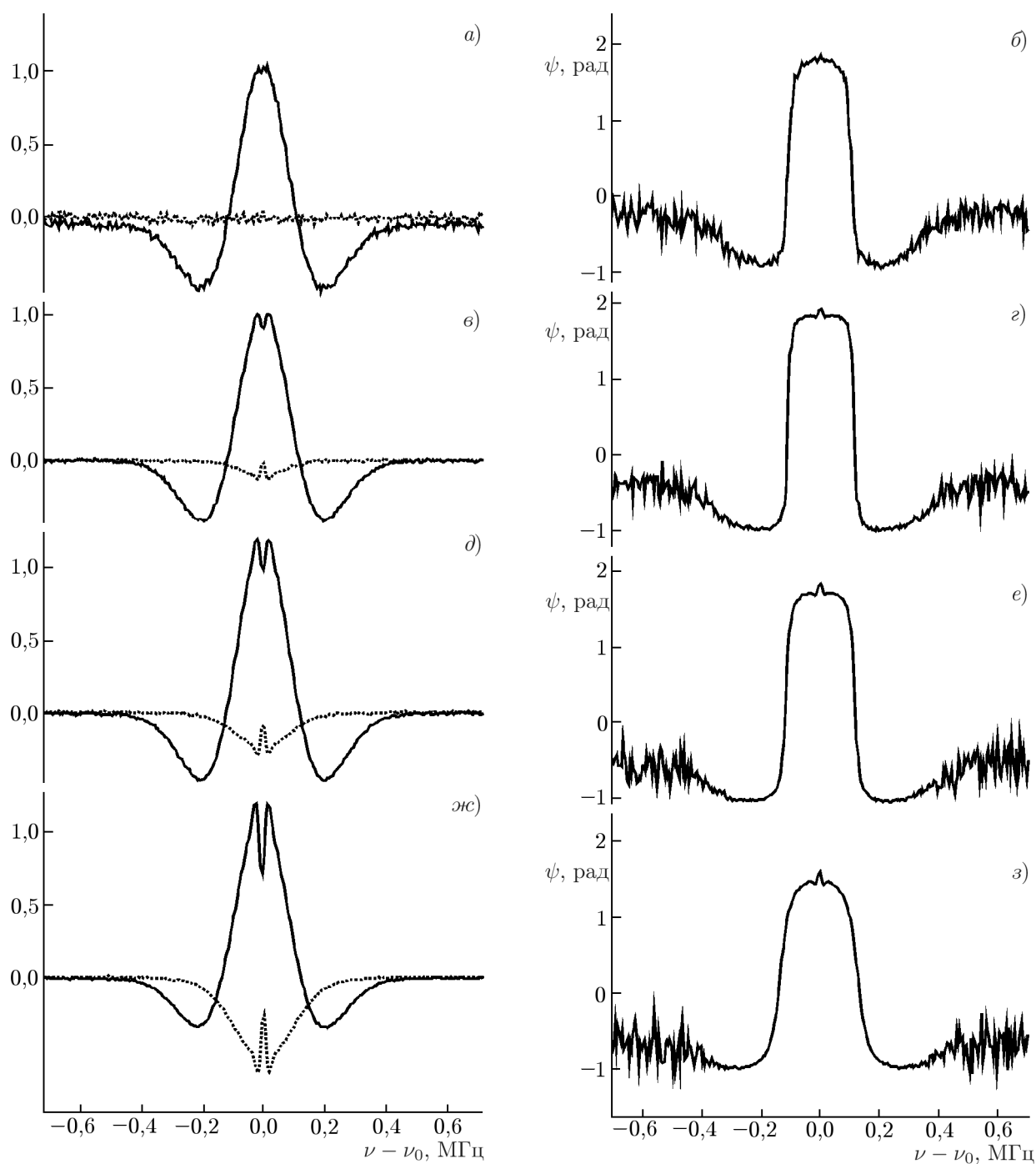


Рис. 2. Частотная зависимость амплитуды (а, б, д, жс, сплошные линии соответствуют каналу $I_{\cos 2}$, пунктирные — $I_{\sin 2}$) и фазы ψ (б, з, е, з) сигнала, связанного с линией молекулы СО на частоте 115 ГГц, ($J = 0 \leftarrow 1$) при мощности излучения $P = P_0$ (а, б), P_1 (б, з), P_2 (д, е), P_3 (жс, з), $P_3 > P_2 > P_1 > P_0$; $\nu_m = 3,3$ кГц, $p \approx 2,5$ мторр, $\Delta = 15$ кГц. Амплитуды линий нормированы к единице; размах изменения линий фаз для этого диапазона мощностей практически не менялся и составлял примерно 2,5 рад

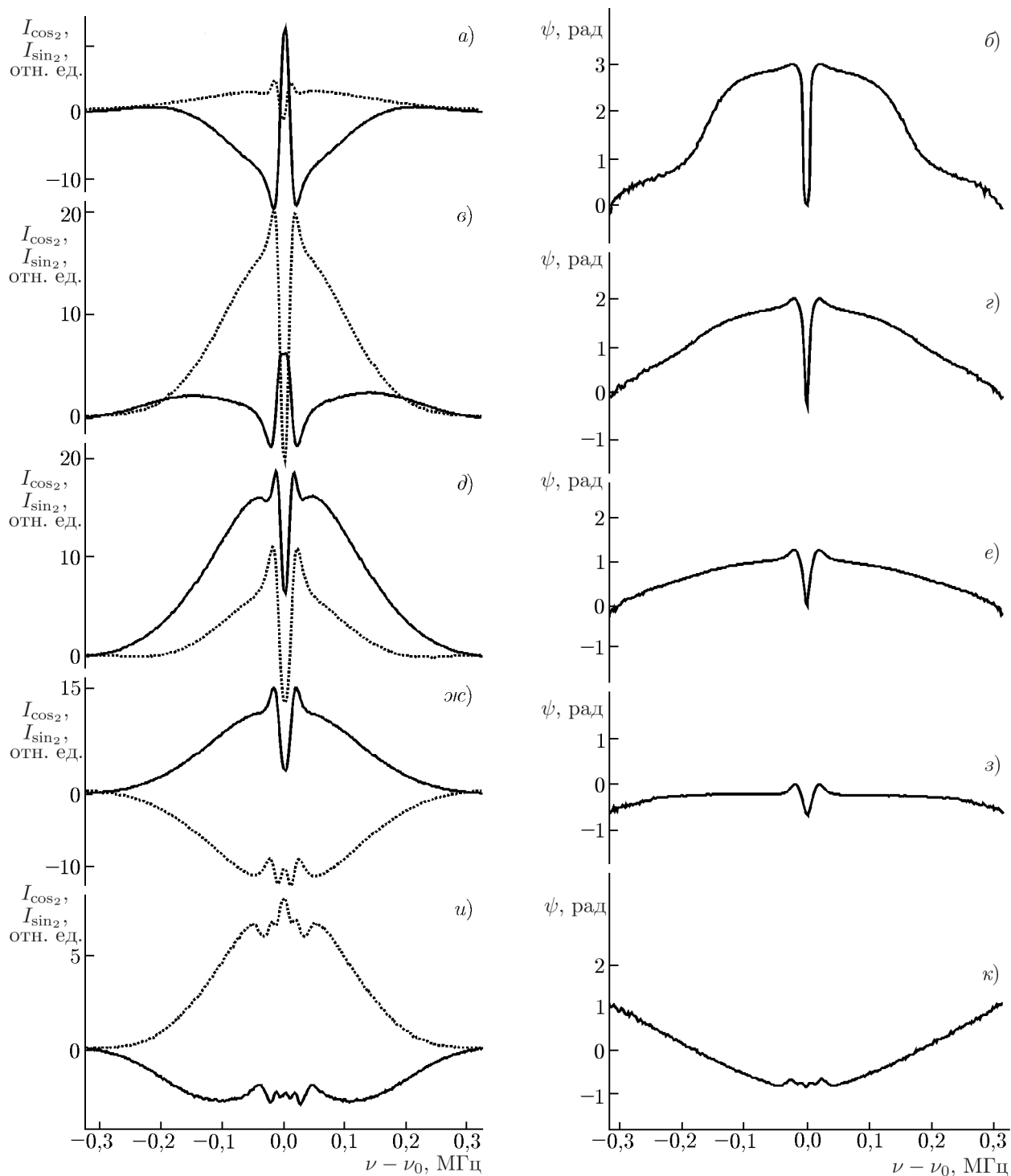


Рис. 3. Запись амплитуды (*а, в, д, жс, и*, сплошные линии соответствуют каналу $I_{\cos 2}$, пунктирные — $I_{\sin 2}$) и фазы ψ (*б, г, е, з, к*) сигнала, связанного с линией молекулы OCS на частоте 145 ГГц ($J = 12 \leftarrow 11$), при различных частотах модуляции: $\nu_m = 2,5$ кГц (*а, б*), 5 кГц (*в, г*), 7,5 кГц (*д, е*), 10 кГц (*жс, з*), 20 кГц (*и, к*). Давление $p \approx 1$ мторр, $\Delta = 10$ кГц

небольшом параметре насыщения $G \approx 0,2$, поскольку с увеличением G глубина провала Лэмба растёт, а амплитуда доплеровской линии падает. При большом доплеровском уширении ($\Delta\nu_D \gg \gg \gamma$) провал Лэмба можно рассматривать как линию Лоренца на параболическом профиле.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

В данной работе нами использовался субдоплеровский микроволновой спектрометр прямого поглощения [1]. По мере прохождения излучения через поглощающий слой газа с толщиной L (длина ячейки в эксперименте $L_0 = 200$ см, диаметр 11 см), интенсивность излучения уменьшается по экспоненциальному закону (закон Бугера—Ламберта—Бера) $I(\Omega) = I_0(\Omega) \exp[-\alpha(\Omega)L]$, где $I_0(\Omega)$ — интенсивность падающего излучения, $\alpha(\Omega)$ — показатель поглощения в спектральной линии. В качестве источника излучения использовалась лампа обратной волны (ЛОВ). Абсолютная точность и стабильность частоты ЛОВ определяется параметрами сигнала опорного стандарта с частотой 10 МГц. Долговременная стабильность рубидиевого стандарта в нашем случае была порядка $3 \cdot 10^{-12}$, а спектральная ширина излучения ЛОВ была меньше 10 Гц, что позволяло проводить измерения узких спектральных линий.

Прошедшее через образец частотно-модулированное излучение отражается уголковым отражателем, образует в ячейке стоячую волну и направляется с помощью проволочного поляризатора на квадратичный детектор или охлаждаемый болометр (температура 4,2 К). Для демодуляции сигнала использовался синхронный усилитель с квадратурным приёмом, двуканальная запись линии осуществлялась на второй гармонике модуляции частоты излучения.

В случае малой девиации частоты ($\Delta/\Delta\nu \ll 1$ и $\nu_m/\Delta\nu \ll 1$) и при небольшом насыщении ($G < 1$) для подгонки линий к модельному профилю можно было использовать простую модель второй производной от контура провала Лэмба на доплеровской линии. Однако уже при $G \sim \sim 1$ наблюдалось отклонение от модельного профиля не только для лэмбовских линий, но и для доплеровского контура. При этом сильнее изменялась форма линии, записанная в виде линии фазы $\psi(\Omega)$.

При измерениях линий при $G \geq 1$ обнаружили следующие эффекты, не объясняющиеся представленной выше моделью профиля линии на второй гармонике частоты модуляции:

- 1) фазы демодуляции доплеровского контура и провала Лэмба не совпадают; разница между этими фазами зависит от давления и мощности;
- 2) частотный характер изменения линии фазы $\psi(\Omega)$ отличается от теоретического: наблюдается дополнительный набег фазы сигнала в центральной части линии и запаздывание сигнала зависит от частоты модуляции;
- 3) при малых давлениях форма доплеровского контура имеет гауссовскую форму, а не форму второй производной от этого профиля; линия провала Лэмба при низких давлениях (в области пролётных эффектов) перестаёт быть лоренцевской и становится подобной форме самого контура, а не его второй производной;
- 4) при частотах модуляции, сравнимых с шириной линии насыщения и превышающих её, наблюдаются биения на доплеровском контуре в окрестности провала Лэмба, амплитуда этих биений зависит от мощности.

На рис. 2 показана нелинейная зависимость контраста провала Лэмба на доплеровском контуре для амплитуд и линий фаз $\psi(\Omega)$. Для линейного случая фаза подобрана так (рис. 2а), что синусный сигнал (пунктирная линия) равен нулю, $I_{\sin 2}(\Omega, \varphi) = 0$. С увеличением мощности наблюдается изменение фазы модуляции, которое проявляется как увеличение сигнала в синусном канале; фаза лэмбовской линии меняется сильнее, чем фаза доплеровской линии. Форма линий фаз $\psi(\Omega)$ с увеличением мощности становится более полой для доплеровского контура, при

этом лэмбовская линия наблюдается как увеличение, а не уменьшение сигнала на доплеровском контуре.

На рис. 3 представлена серия зависимостей амплитуд и фаз $\psi(\Omega)$ от частоты модуляции. Наблюдается изменение знака фазы линий $\psi(\Omega)$ с увеличением частоты модуляции. Сигнал, связанный с лэмбовской линией наблюдается здесь в виде провала, а не увеличения сигнала в линии (см. рис. 2). При этом можно подобрать фазу модуляции так, что для амплитуды вместо провала происходит увеличение сигнала на доплеровском контуре (например, рис. 3*и*, пунктирная линия). Расщепление линии Лэмба (рис. 3*жс–к*) согласуется с рассматриваемой теоретической моделью (формулы (3)–(5), см. также рис. 7 в работе [5]). Частотная зависимость линии поглощения для доплеровской линии имеет форму, близкую к гауссовой (вместо её второй производной). Что может быть связано с искажением доплеровской линии, обусловленным зависимостью частоты столкновений от скорости движения частиц, и разным влиянием пролётных эффектов на центр и крылья линии.

Наблюдаемые зависимости $I_{\cos_2}(\Omega, \varphi)$, $I_{\sin_2}(\Omega, \varphi)$ и $\psi(\Omega)$ часто трудно объяснимы в рамках используемой нами теоретической модели. Например, изменение формы линии фазы $\psi(\Omega)$ при разных условиях эксперимента можно объяснить тем, что в нелинейном режиме изменяется отношение между поглощением и дисперсией, которые в линейном случае связаны соотношениями Крамерса–Кронига. Другим объяснением может быть изменение фазы φ вдоль контура линии, т. е. наличие частотной зависимости фазы модуляции $\varphi(\Omega)$, что, в свою очередь, может быть обусловлено изменением групповой скорости излучения на частоте спектрального перехода.

Таким образом, существует неоднозначность интерпретации причин изменения амплитуд и форм сигналов от провала Лэмба $I_{\cos_2}(\Omega, \varphi)$ и $I_{\sin_2}(\Omega, \varphi)$ на доплеровском контуре. Либо наблюдаемые зависимости связаны с изменениями относительной ширины линий и степенью насыщения, которые определяются давлением и абсолютной мощностью (частотой Раби), либо они связаны с вариацией фазы модуляции $\varphi(\Omega)$. Анализ линии фазы $\psi(\Omega)$ даёт дополнительную информацию, т. к. абсолютное значение φ не влияет на форму и относительное изменение $\Delta\psi(\Omega)$ вдоль контура линии. Вклад в погрешность определения абсолютных значений сигналов $I_{\cos_2}(\Omega, \varphi)$ и $I_{\sin_2}(\Omega, \varphi)$, а значит и знака изменения $\psi(\Omega)$, может также вносить сигнал от базовой линии, не связанный с поглощением [2]. Поэтому полный анализ формы линий в нелинейном режиме требует адекватной теоретической модели, знания параметров излучения и исследуемых спектральных переходов и получения экспериментальных зависимостей от мощности излучения, частоты модуляции и давления газа.

Рассмотрим возможное влияние дисперсии групповой скорости на форму линии. Излучение с частотой ω распространяется в среде с фазовой скоростью $V_p = \omega/k$, где $k = n\omega/c_0$ — волновое число, n — показатель преломления среды, c_0 — скорость света. Групповая скорость $V_g = \partial\omega/\partial k$ есть скорость распространения волнового пакета (в случае импульсного излучения это скорость распространения импульса в среде). Она обычно ниже фазовой, т. е. фронт (или модуляция) световой волны перемещается медленнее, чем несущая частота колебаний, и запаздывание фазы для модулированного излучения будет максимальным в центре спектральной линии. При этом чем уже линия, тем сильнее запаздывание. Вышесказанное относится к нормальной дисперсии. Для спектральных линий поглощения дисперсия в центре линии, как правило, аномальная [36]. В случае провала Лэмба дисперсия в центре линии нормальная. Поскольку изменение фазы модуляции вдоль контура линии в случае нелинейного поглощения может носить сложный характер, оценим максимальное изменение групповой скорости и фазы модуляции для областей с нормальной дисперсией.

Как пример рассмотрим линию $J = 3 \leftarrow 2$ молекулы CO с частотой 345 ГГц при давлении $p = 250$ торр ($\Delta\nu_L \approx 780$ МГц), для которой в работе [36] были измерены не только показатель

поглощения, но и показатель преломления: $\Delta\alpha \approx 7 \cdot 10^{-3} \text{ см}^{-1}$; $\Delta k \approx 4 \cdot 10^{-3} \text{ см}^{-1}$. Таким образом, $\Delta k \approx \Delta\alpha$, что согласуется с соотношением Крамерса–Кронига $\Delta n \sim (c_0/\omega) \Delta\alpha$. Набег фазы излучения при этом (в нашем случае $2L_0 = 400 \text{ см}$) будет порядка $\Delta\Phi \approx 1 \text{ рад}$; групповая скорость $V_g \sim 0,98c_0$, а набег фазы модуляции для $\nu_m = 10 \text{ кГц}$ составит $\Delta\varphi \approx 10^{-3} \text{ рад}$.

В доплеровском пределе при давлении $p = 1 \text{ мторр}$ ($\Delta\nu \approx 400 \text{ кГц}$) из оценки показателя преломления через известное поглощение получим $\Delta\alpha \approx \Delta k \approx 10^{-4} \text{ см}^{-1}$. Набег фазы излучения $\Delta\Phi \approx 4 \cdot 10^{-2} \text{ рад}$; групповая скорость $V_g \sim 0,3c_0$; набег фазы модуляции ($\nu_m = 10 \text{ кГц}$) $\Delta\varphi \approx 3 \cdot 10^{-3} \text{ рад}$.

Для провала Лэмба $\Delta k \approx \Delta\alpha = [(1+G)^{-1/2} - (1+2G)^{-1/2}]\alpha_0$ (α_0 — коэффициент поглощения в центре доплеровской линии). Максимальный контраст достигается при $G = 1,4$ и составляет $\Delta\alpha \approx 0,13\alpha_0$. Хотя изменение поглощения меньше, но ширина линии провала Лэмба (в наших измерениях типичная полуширина $\gamma \approx 10 \text{ кГц}$) существенно меньше доплеровской, поэтому групповая скорость по оценкам будет порядка $V_g \approx 0,1c_0$, фаза модуляции $\Delta\varphi \approx 10^{-2} \text{ рад}$, фаза излучения $\Delta\Phi \approx 5 \cdot 10^{-3} \text{ рад}$.

Заметим, что величины фазового набег модуляции порядка $\Delta\varphi \approx 10^{-3} \text{ рад}$ уже хорошо регистрируются. При отношениях сигнал/шум порядка 10^4 изменение групповой скорости в центре линии при модуляционном способе приёма может проявляться как искажение профиля линии. Кроме того, в режиме нелинейного насыщения линии в доплеровском пределе при $G > 1$, как показано в работе [32], происходит уменьшение амплитуды линии поглощения $\Delta\alpha = \alpha_0(1+G)^{-1/2}$, а амплитуда линии дисперсии не меняется, т. е. соотношения Крамерса–Кронига не выполняются. Для провала Лэмба дисперсия изменяется сильнее, чем поглощение: $\Delta k(G) \approx 0,45[G/(1+G)]\alpha_0$ [34]. Таким образом, в режиме насыщения линии возможно ещё большее замедление групповой скорости и возрастание задержки фазы модуляции в её центре.

Отметим немонотонную зависимость величины амплитуды и фазы $\Delta\psi(\Omega)$ провала Лэмба от давления газа. С уменьшением давления примерно до 1 мторр сигнал, связанный с провалом Лэмба, на второй гармонике частоты модуляции (например, линия $J = 1 \leftarrow 2$ молекулы СО) увеличивается, что обусловлено уменьшением полуширины Γ и увеличением степени насыщения ($G = (g/\Gamma)^2$). При дальнейшем падении давления (что в нашем случае совпадает с переходом в область пролётных эффектов) ширина линии γ практически не менялась, а сигнал, связанный с линией начинал уменьшаться. При этом с уменьшением давления до $1,0 \div 1,5 \text{ мторр}$ величина сигнала $\Delta\psi(\Omega)$ также растёт, но более быстро, а затем уменьшается. При давлении порядка 1,3 мторр происходит смена знака фазы провала Лэмба. Относительное увеличение $\Delta\psi(\Omega)$ связано с изменением отношения ν_m/Γ , но не исключена также его зависимость и от степени насыщения, как было показано в работе [34].

Рассмотрим влияние когерентных эффектов на форму линии. На рис. 4 приведена запись линии при частотах модуляции, превышающих ширину резонанса ($\nu_m/\gamma > 1$) при двух значениях мощности излучения $P_1 > P_0$. Увеличение интенсивности излучения приводит к росту интенсивности биений в центре доплеровского контура, что связано с увеличением частоты Раби и вероятности обратного индуцированного перехода частиц на нижний уровень. Линия фаз $\psi(\Omega)$ при увеличении мощности (см. рис. 4б) демонстрирует, помимо увеличения интенсивности биений, также и сильное уменьшение фазы в центре линии, аналогичное наблюдаемому на рис. 3.

В заключение необходимо сказать, что для субдоплеровской спектроскопии насыщения в случае большой частоты модуляции ($\nu_m/\gamma \geq 1$) линия поглощения становится более сложной [37, 38], резонансы наблюдаются на частотах $\nu_0 \pm m\nu_m/2$. Это также может объяснять биения, наблюдаемые на рис. 4.

Вследствие неоднозначности интерпретации многих экспериментальных зависимостей и отсутствия исчерпывающей теоретической модели, в данной работе авторы только обозначили круг

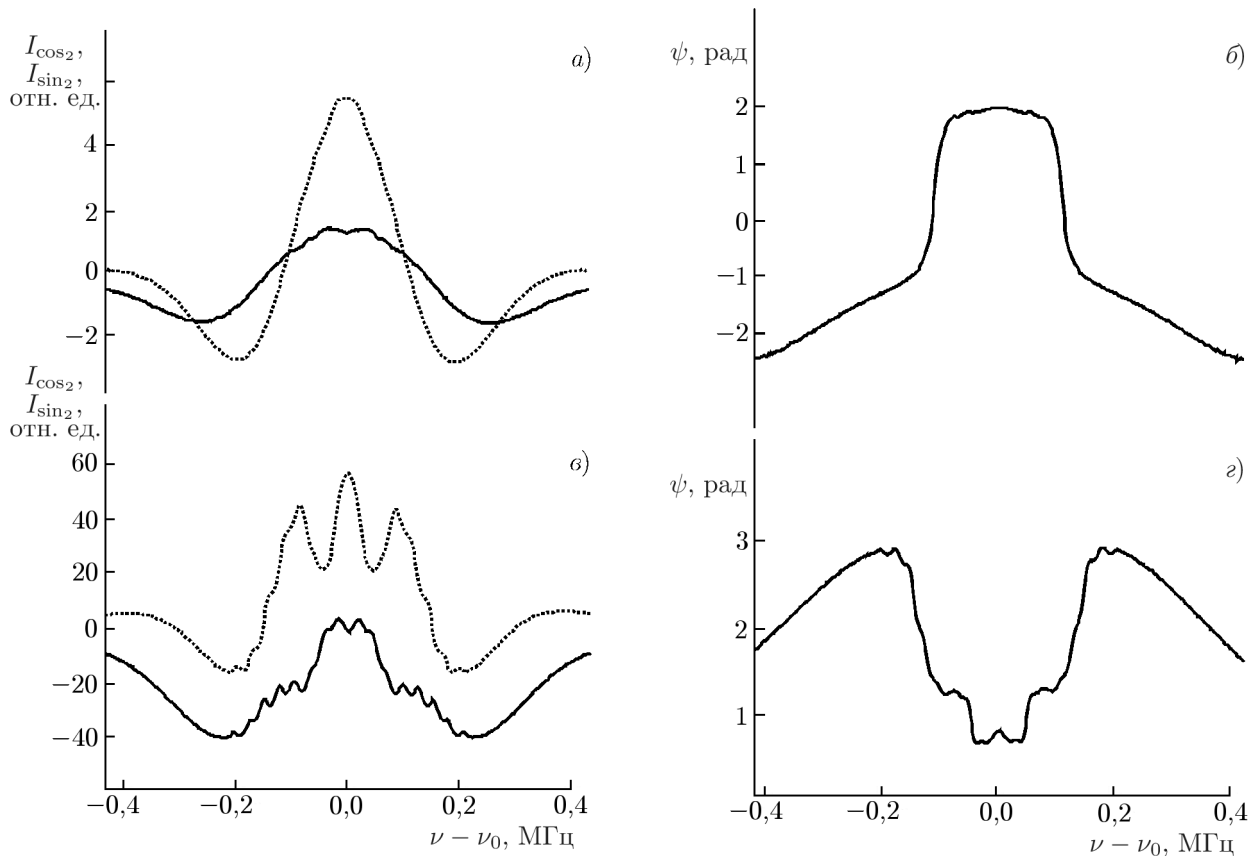


Рис. 4. Зависимость формы амплитуды (а, в, сплошные линии соответствуют каналу $I_{\cos 2}$, пунктирные — $I_{\sin 2}$) и фазы (б, г) сигнала, связанного с линией молекулы OCS (145 ГГц, $J = 12 \leftarrow 11$), для случая $\nu_m/\gamma > 1$ при частоте модуляции $\nu_m = 50$ кГц для двух значений мощности излучения $P = P_0$ (а, б) и $P = P_1$ (в, г), $P_1 > P_0$; $\Delta = 120$ кГц, $p \approx 0,5$ мторр

возможных физических эффектов, которые могут приводить к рассмотренным выше результатам наблюдений. Исследование нелинейного резонанса насыщения при произвольной частоте модуляции по отношению к ширине линии требует дальнейшего продолжения.

3. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе экспериментально показано влияние эффектов насыщения спектральных линий на величину и форму регистрируемых частотно-модулированных сигналов в квадратурных каналах при синхронном детектировании. В нелинейном режиме наблюдалось изменение отношения между дисперсией и поглощением, в линейном случае связанными между собой соотношениями Крамерса—Кронига. Показана необходимость учёта в режиме насыщения влияния дисперсии групповой скорости и когерентных эффектов на форму регистрируемых спектральных линий. Насколько известно авторам, рассмотрение возможного влияния снижения групповой скорости на форму линии при модуляционном способе приёма и анализ разности фаз между сигналами в квадратурных каналах в данной работе проведены впервые.

Авторы выражают глубокую признательность А. П. Шкаеву и А. Ф. Андриянову за техническую поддержку измерений.

Работа выполнена при частичной поддержке РФФИ (проекты 16-02-00761_а, 15-02-07887_а), Программы фундаментальных исследований ОФН РАН «Новые источники миллиметрового и терагерцового излучения и их перспективные приложения» и государственного задания 0035–2014–0009.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Голубятников Г. Ю., Белов С. П., Леонов И. И. и др. // Изв. вузов. Радиофизика. 2013. Т. 56, № 8–9. С. 666.
2. Голубятников Г. Ю., Белов С. П., Лапинов А. В. // Изв. вузов. Радиофизика. 2015. Т. 58, № 8. С. 691.
3. Лапинов А. В., Левшаков С. А., Козлов М. Г., и др. // Вестник РФФИ. 2012. № 1(73). С. 111.
4. Летохов В. С., Чеботаев В. П. // Успехи физ. наук. 1974. Т. 113, № 3. С. 385.
5. Kochanov V. P., Belov S. P., Golubiatnikov G. Yu. // JQSRT. 2014. V. 149. P. 146.
6. Karplus R. // Phys. Rev. 1948. V. 73, No. 9. P. 1027.
7. Багаев С. Н., Бакланов Е. В., Чеботаев В. П. // Письма в ЖЭТФ. 1972. Т. 16, № 1. С. 15.
8. Meyer T. O., Rhodes C. K. // Phys. Rev. A. 1975. V. 12, No. 5. P. 1993.
9. Кочанов В. П., Раутиан С. Г., Шалагин А. М. // Журн. exper. теор. физ. 1977. Т. 72, вып. 4. С. 1358.
10. Кочанов В. П. // Журн. exper. теор. физ. 2014. Т. 145, № 3. С. 387.
11. Багаев С. Н., Чеботаев В. П. // Успехи физ. наук. 1986. Т. 148, № 1. С. 143.
12. Bagayev S. N., Chebotayev V. P., Titov E. A. // Laser Phys. 1994. V. 4, No. 2. P. 224.
13. Borde C. J., Hall J. L., Kunasz C. V., Hummer D. G. // Phys. Rev. A. 1976. V. 14, No. 1. P. 236.
14. Bagayev S. N., Chebotayev V. P., Dmitriyev A. K., et al. // Appl. Phys. B. 1991. V. 52. P. 63.
15. Chardonnet Ch., Guernet F., Charton G., Bord Ch. J. // Appl. Phys. B. 1994. V. 59, No. 3. P. 333.
16. McCall S. L., Hahn E. L. // Phys. Rev. Lett. 1967. V. 18, No. 21. P. 908.
17. Крюков П. Г., Летохов В. С. // Успехи физ. наук. 1969. Т. 99, № 2. С. 169.
18. Supplee J. M., Whittaker E. A., Lenth W. // Appl. Opt. 1994. V. 33, No. 27. P. 6294.
19. Bjorklund G. C., Levenson M. D., Lenth W., Ortiz C. // Appl. Phys. B. 1983. V. 32, No. 3. P. 145.
20. North S. W., Zheng X. S., Fei R., Hall G. E. // J. Chem. Phys. 1996. V. 104, No. 6. P. 2129.
21. Ma L.-S., Ye J., Dube P., Hall J. L. // J. Opt. Soc. Am. B. 1999. V. 16, No. 12. P. 2255.
22. Foltynowicz A., Schmidt F. M., Ma W., Axner O. // Appl. Phys. B. 2008. V. 92, No. 3. P. 313.
23. Kluczynski P., Axner O. // Appl. Opt. 1999. V. 38, No. 27. P. 5803.
24. Kluczynski P., Gustafsson J., Lindberg A. M., Axner O. // Spectrochimica Acta B. 2001. V. 56. P. 1277.
25. De Vreede J. P. M., Mehrotra S. C., Tal A., Dijkerman H. A. // Appl. Spec. 1982. V. 36, No. 3. P. 227.
26. Wahlquist H. // J. Chem. Phys. 1961. V. 35, No. 5. P. 1708.
27. Arndt R. // J. Appl. Phys. 1965. V. 36, No. 8. P. 2522.
28. Reid J., Labrie D. // Appl. Phys. B. 1981. V. 26, No. 3. P. 203.
29. Kluczynski P., Lindberg A. M., Axner O. // JQSRT. 2004. V. 83, No. 3–4. P. 345.
30. Dore L. // J. Mol. Spectrosc. 2003. V. 221. P. 93.
31. De Tommasi E., Castrillo A., Casa G., Gianfrani L. // JQSRT. 2008. V. 109, No. 2. P. 168.
32. Ma W., Foltynowicz A., Axner O. // J. Opt. Soc. Am. B. 2008. V. 25, No. 7. P. 1144.
33. Foltynowicz A., Ma W., Schmidt F. M., Axner O. // J. Opt. Soc. Am. B. 2008. V. 25, No. 7. P. 1156.
34. Axner O., Ma W., Foltynowicz A. // J. Opt. Soc. Am. B. 2008. V. 25, No. 7. P. 1166.

35. Matsko A. V., Kocharovskaya O., Rostovstev Y., et al. // Adv. Atom. Mol. Opt. Phys. 2001. V. 46. P. 191.
36. Afsar M. N., Chi H., Sobhie H. // Proc. SPIE. San Diego, USA, January 10, 1994. V. 2 211. P. 768.
37. Bjorklund G. C., Levenson M. D. // Phys. Rev. A. 1981. V. 24, No. 1. P. 166.
38. Schenzle A., DeVoe R. G., Brewer R. G. // Phys. Rev. A. 1982. V. 25, No. 5. P. 2 606.

Поступила в редакцию 26 апреля 2016 г.; принята в печать 25 июля 2016 г.

THE FEATURES OF THE METHOD OF FREQUENCY MODULATION WHEN STUDYING THE SHAPES OF THE SPECTRAL LINES OF NONLINEAR ABSORPTION

G. Yu. Golubiatnikov, S. P. Belov, and A. V. Lapinov

We briefly consider the method of frequency (phase) modulation and signal detection at the second harmonic of the frequency modulation for recording and analyzing the spectral-line shapes. The precision sub-Doppler spectrometer of the millimeter- and submillimeter-wave ranges, which operated in the regime of nonlinear saturation of the spectral transitions in a standing wave (the Lamb-dip method), was used during the measurements. The influence of the saturation degree on the value and shape of the recorded frequency-modulated signals in the quadrature channels during the synchronous detection is demonstrated. Variation in the relationships among the signals determined by dispersion and absorption was observed. The necessity of allowance for the influence of dispersion of the group velocity and coherent effects on the shape of the recorded spectral lines is experimentally shown.