«Оптика атмосферы», **2**, № 5 (1989) УДК 535.338.4

**А.В. Еньшин, С.Д. Творогов**

# ЖЕСТКИЙ РОТАТОР В БИГАРМОНИЧЕСКОМ РЕЗОНАНСНОМ ПОЛЕ

В работе приводятся результаты эксперимента по облучению молекул воздуха излучением второй гармоники неодимового лазера одновременно на двух длинах волн двух продольных мод. В результате такого эксперимента в спектре излучения освещаемого объема обнаружено около 750 линий в диапазоне длин волн 198÷394 μm, которые соответствуют переходам между возбужденными электронными состояниями молекул $N_2$, ионов $N_2^+$, $O_2^+$, а также атомарных ионов $N^+$ и $O^+$. В работе показано, что непременными условиями возникновения данного эффекта являются: бигармоничность возбуждающего поля, наличие молекулярной среды с вращательными энергетическими уровнями и резонансная близость разности энергии волн бигармонической накачки и энергии вращательных состояний молекул среды.

Интерпретация результатов эксперимента основана на качественном анализе дифференциальных уравнений движения. В конечном итоге, проведенный анализ позволяет говорить о существовании стационарной точки типа «центр» и предельного цикла с «навинчивающимися» на него траекториями (независимо от их начальных условий), т.е. рассматривать жесткий ротатор в резонансном (для разностной частоты) бигармоническом поле как синергетическую систему.

## §1. Эксперимент [1, 2, 3]; идея его интерпретации

Сфокусированное в воздухе бигармоническое с длинами волн $\lambda_1 = 0,5275$ μ, и $\lambda_2 = 0,5277$ μ поле (вторая гармоника импульсного (длительность $\simeq$ 25 нс) Nd-лазера с селекцией двух продольных мод) порождает очень разнообразный набор частот (рис. 1): в регистрируемой области 0,198 – 0,394 μ оказалось 750 линий.

Непременное условие эффекта — бигармоничность поля и молекулярная среда с вращательными состояниями (эффект исчезает при устранении одной из частот или замене молекулярного газа атомарным). Разность частот поля оказывается между вращательными числами $j = 1$ и 2 молекул $O_2$ и $N_2$, что имеет решающее значение для доследующей интерпретации.

3131,85 Å 2680,65 Å 2354,25 Å

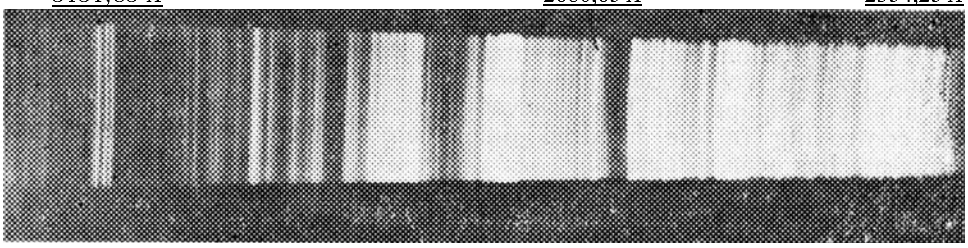

Рис. 1. Спектр возбужденных электронных состояний $N_2$, ионов $N_2^+$, $O_2^+$ и ионизированных атомов $N^+$, $O^+$. Диапазон регистрации 0,198 μ – 0,394 μ. (Иллюстрируется наиболее яркая часть диапазона)

Рис. 1 свидетельствует об исключительно «широкополосном» возбуждении: здесь представлены линии возбужденных электронных состояний $N_2$, ионов $N_2^+$, $O_2^+$ и ионизированных атомов $N^+$, $O^+$ (специальными экспериментами заряженные частицы зафиксированы непосредственно) — речь идет о всех частотах этих образований в интервале 0,198 – 0,394 μ.

Однако «события» эти происходят при весьма низком пороге — напряженность поля в фокусе $\simeq 10^4 - 10^5$ В/см. Например, для ионизации $N_2$ необходимо 10-фотонное поглощение оптической частоты — процесс, вероятность которого в поле с приведенной напряженностью ничтожна.

Еще один существеннейший момент — когерентность возникающего поля: излучение всех приведенных на рис. 1 частот сконцентрировано «вперед» по отношению к направлению распространения внешней волны.

Подобное сочетание вынуждает либо «раскладывать весьма громоздкий пасьянс» из уже известных нелинейных явлений (см. [2]), или же искать версию, основательно «минимизирующую» интерпретацию эффекта. Стартовый элемент ее вполне аналогичен теории АСКР [4]: оптическое поле индуцирует в молекуле электронный дипольный момент (далее $\alpha$ — соответствующая поляризуемость), и он, продолжая взаимодействие с полем, добавит ротатору (обычная вращательная модель двухатомной молекулы) потенциальную энергию (см. также [5]) $V = -\alpha U^2 \sin\Theta \cos\varphi$. Углы $\Theta$, $\varphi$ показаны на рис. 2. Для бигармонического поля ($t$ — время) $U = U_1\exp(-i\omega_1 t) + U_2\exp(-i\omega_2 t)$ + к.с., где $\omega_1$, $\omega_2$ — частоты; $U_1$, $U_2$ — амплитуды составляющих; оба поля линейно и одинаково поляризованы.

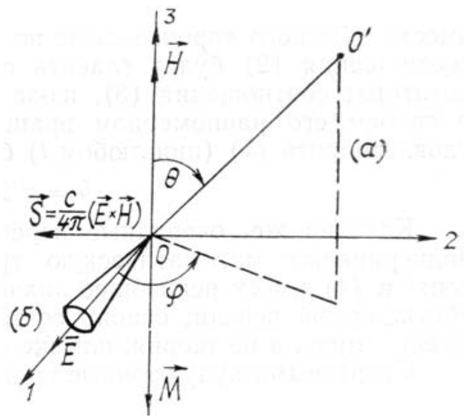


Рис. 2. Состояния жесткого ротатора до и после включения поля 00′ — ось ротатора, (*а*) — произвольное его состояние (до включения поля), (*б*) — соответствует предельному циклу, ***M*** — момент количества движения для (*б*). Лабораторная система (*1*, *2*, *3*) связана с внешним полем: **E**, **H**, **S** — напряженности электрического, магнитного полей и вектор Пойнтинга

Становится понятным, что в $U^2$ появится гармоника на частоте $\omega_1-\omega_2$ и она в уравнениях движения может быть скомпенсирована комбинациями $\exp i[\pm\varphi(t)\pm\Theta(t)]$ которые явно присутствуют в выражении для $V$. Если окажется, что одна из величин $\pm(\omega_1-\omega_2)t\pm\varphi(t)\pm\Theta(t)\simeq 0$, то энергия вращения моментально окажется $\sim t$ со всеми вытекающими отсюда «куммулятивными» последствиями.

Разумеется, картина эта навеяна предпосылками самого появления эффекта (см. описание эксперимента). Понятно также, что «резонанс» должно определять условие $\pm(\omega_1-\omega_2)\pm d\varphi/dt\pm d\Theta/dt=0$ при какой-то комбинации знаков. Наконец, нет никакой надобности квантовать движение ротатора — ведь вращательный спектр пока не обязателен.

## §2. Классический ротатор с потенциалом

Гамильтоновы уравнения движения

$$\dot{\theta}=\frac{P_\theta}{I}, \quad \dot{P}_\theta=\frac{P_\varphi^2\cos^2\theta}{I\cdot\sin^3\theta}+\alpha U^2\cos\theta\cdot\cos\varphi; \tag{1}$$

$$\dot{\varphi}=\frac{P_\varphi}{I\cdot\sin^2\theta}, \quad \dot{P}_\varphi=-\alpha U^2\sin\theta\cdot\sin\varphi$$

с моментом инерции $I$ ($P_\Theta$, $P_\varphi$ — импульсы, канонически сопряженные $\Theta$ и $\varphi$) дополняются уравнениями для компонент угловой скорости в подвижной системе:

$$\omega_1=\dot{\varphi}\cdot\sin\theta\cdot\sin\psi+\dot{\theta}\cos\psi; \quad \omega_2=\dot{\varphi}\sin\theta\cos\psi-\dot{\theta}\cdot\sin\psi; \tag{2}$$

$$\omega_3=\dot{\varphi}\cos\theta+\dot{\psi}=0.$$

Как обычно, 00′ (рис. 2) — третья ось подвижной системы, $\psi$ — третий (кроме $\Theta$, $\varphi$) угол Эйлера. (Математически $\psi$ исключает последнее из (2)). До включения поля ротатору соответствует равномерное с частотой $\omega$ вращение

$$\omega_1=0, \ \omega_2=\dot{\theta}=\omega, \ \dot{\varphi}=0, \ \varphi=\text{const}, \tag{3}$$

что и определяет начальные условия для (1).

Традиционной схеме [6, 7] качественного анализа (1) должно предшествовать замечание о введении стационарной точки условием

$$\dot{P}_\theta=\dot{P}_\varphi=0, \ \dot{\varphi}=\Omega^{(1)}=\text{const}, \ \dot{\theta}=\Omega^{(2)}=\text{const}, \tag{4}$$

вместо обычного «производные по $t$ — нули». В самом деле, при $\dot{\Theta}=\dot{\varphi}=0$ соотношения (2) будут гласить о совершенно нефизичной остановке ротатора; соотношения (3), из-за смысла $P_\Theta$, $P_\varphi$, свидетельствуют о некоем его равномерном вращении. Единственной возможностью удовлетворить (4) (при любом $t$) будет

$\theta = \pi/2,\ \varphi = 0.$ (5)

Конечно же, очевидные переопределения ($\varphi \to \Omega^{-1} + \varphi(t)$ и т.д.) подчеркивают математическую тривиальность (4). Однако оценка const в (4) имеет решающее значение для физической состоятельности обсуждаемой версии; основу составляет здесь асимтотический трюк — именно трюк, а не теория, или же «подход».

Стартовыми будут точные выражения

$$\dot{\varphi} \cdot \sin^2 \theta = -\int_0^t dt' f(t') \cdot \sin\theta(t') \cdot \sin\varphi(t'); \tag{6}$$

$$\frac{1}{2}\dot{\varphi}^2 \cdot \sin^2 \dot{\theta} + \frac{1}{2}\dot{\theta}^2 - \frac{1}{2}\omega^2 = \int_0^t dt' f(t')\,(\dot{\theta}\cos\theta\cos\varphi - \dot{\varphi}\cdot\sin\theta\cdot\sin\varphi) \tag{7}$$

с $f(t) = (\alpha/I)U^2(t)$; (6) — интеграл уравнений движения [(1) надо предварительно написать в лагранжевой форме: $\ddot{\theta} = \dot{\varphi}^2 \sin\theta\cos\theta + f\cos\theta\cos\varphi$, $\ddot{\varphi}\sin^2\theta = -2\dot{\varphi}\dot{\theta}\sin\theta\cos\theta - f\sin\theta\sin\varphi$ ], и (7) — закон сохранения энергии [интегрирование $(1/I)\,dH/dt$, где с учетом начальных условий (3) энергия $H = V + (1/2)(\dot{\varphi}^2 \cdot \sin^2\theta + \dot{\theta}^2) = V + (1/2)(\omega_1^2 + \omega_2^2)$ ].

Далее, подставив (5) в левые части (6) и (7), получим $\dot{\varphi} = -\int_0^t dt' f(t')\sin\theta(t')\sin\varphi(t')$; после этого второе слагаемое (7) заменим на $\dot{\varphi}^2$ и тогда, учитывая (3), можно апеллировать к теореме о среднем. Возникающее выражение трактуем как интегральное уравнение относительно $\Theta$, и ненулевое (см. (3)) начальное условие предоставляет возможность решать его итерациями; естественно, ограничимся лишь первым шагом (в интеграле $\dot{\Theta} \to \omega$). В итоге появится

$$\dot{\theta}^2 = \omega^2 + \dot{\varphi}^2 + 2\omega \int_0^t dt' f(t') \cos\theta(t') \sin\varphi(t').$$

Последнее выражение наводит на подозрение, граничащее, впрочем, с уверенностью, что $|\dot{\varphi}| - |\dot{\Theta}| = |\Omega^{(1)}| - |\Omega^{(2)}| = 0(\omega)$. Понятно также, что стационарной точке (5) соответствует формальное $t \to \infty$, и (4) означает «$\Theta \simeq \Omega^{(2)}(t)$, $\varphi \simeq \Omega^{(1)}(t)$ при больших $t$». Вернувшись к разъяснению резонанса (см. конец §1), увидим его условия

$$|(\omega_1 - \omega_2) - \omega| \ll \omega,\ |\omega_1 - \omega_2|. \tag{8}$$

Правило асимптотических оценок интегралов вида Фурье [8] — возможность рассматривать подынтегральные (в формулах для $\Theta$ и $\varphi$) функции именно при больших $t$ — и теорема Абеля [9] формализуют вычисление lim. Появляется серия $\delta$—функций, из которых, естественно, останется лишь соответствующая резонансу типа (8).

Сложившаяся ситуация требует эвристического шага, и он состоит в замене $\delta$-функции шириной $\gamma$ резонанса (8). Конечно, эта акция удачно исключает неопределенные $\Omega^{(1)}$, $\Omega^{(2)}$ из интегралов, но вводит проблему $\gamma$. Физическое содержание ее — устранение сингулярности в законе сохранения энергии (ему соответствует (7)): чтобы в условиях резонанса появлялась конечная энергия, необходим «шум», срабатывающий как «тормозящий фактор»; ситуация эта типична в синергетике [7]. Последним мы фактически определили условия существования стационарной точки.

Исполненный по таким «правилам игры» анализ дает

$$\Omega^{(1)} < 0,\ \Omega^{(2)} < 0,\ \Omega^{(1)} - \Omega^{(2)} > 0,\ \Omega^{(1)} = -\frac{\alpha b}{I\gamma}\cos\beta,\ \Omega^{(2)} = \Omega^{(1)} - \omega, \tag{9}$$

где комплексное число $U_1^* U_2 = b\exp(i\beta)$.

Теперь можно вернуться к выяснению характера стационарной точки (5). Некую нетипичность привносит зависимость $f$ от $t$, и поэтому лучше обращаться с лагранжевой формой. Для окрестности (5) ($x = \theta - \pi/2$) она дает: $\ddot{x} = -(\Omega^{(1)^2} + f)x$, $\ddot{\varphi} = 2\Omega^{(1)} \cdot \Omega^{(2)} \cdot x - f_\varphi$. После перехода к интегральным уравнениям увидим асимптотическую малость интегральных слагаемых, и останутся только „колебательные" выражения, свидетельствующие, что (5) — точка типа „центр".

Более того, здесь существует предельный цикл с «навинчивающимися» на него траекториями независимо от их начальных условий — доказательство этого факта совпадает-с примером из [6]. Геометрически предельный цикл есть на рис. 2, *б* — вращение с частотами $\Omega^{(1)}$ $\Omega^{(2)}$ из (9) по конусу, угол при вершине которого есть $O(I\gamma^2/\alpha\beta)$. И любой ротатор, независимо от его начального (до включения поля) состояния (рис. 2, *а*), окажется в положении, изображенном на рис. 2, *б*.

Аналогичный прием для уравнений в форме Эйлера [ $\dot{\omega}_1 = (\cos\theta\cdot\cos\varphi\cdot\cos\psi - \sin\varphi\cdot\sin\psi)f$, $\dot{\omega}_2 = (\cos\theta\cdot\sin\varphi\cdot\sin\psi + \sin\varphi\cdot\cos\psi)f$ ] позволяет найти направление $\boldsymbol{M}$ (см. рис. 2) в предельном цикле. И если полагать, что после выключения поля молекула освобождается от аномально большого $\boldsymbol{M}$ спонтанным излучением, то оно, из-за сохранения момента количества движения, будет направлено только по $\boldsymbol{S}$ ($\boldsymbol{E}$ сконцентрировано вдоль оси ротатора, а конечный момент молекулы значительно меньше $\boldsymbol{M}$) тем самым разъясняется та когерентность, о которой шла речь в §1.

В состоявшемся анализе существенны его синергетические аспекты: нелинейность задачи (1) (именно здесь радикальное отличие от аналогичной проблемы АСКР) ведет к изменению (в сравнении с линейным вариантом) роли внешнего воздействия — оно начинает выступать как «спусковой крючок», мобилизующий внутренние ресурсы нелинейной системы (в линейном случае подобное воздействие — главный динамический фактор); по иному выглядит проблема резонанса — см. конец §1 и обсуждение (6), (7) (он явно отличается, например, от резонанса осциллятора с внешней периодической силой); и» наконец, принципиальным оказывается существование «шума» — центральный момент для самоорганизации устойчивого состояния на рис. 2, *б*. Собственно, факторы эти и обусловливают весьма низкий порог эффекта: уже при $\gamma$, отвечающих эффекту Доплера (см. §3), и полях $\sim 10^4 - 10^5$ В/см в (9) $\Omega = 10^7$ см$^{-1}$ (для $N_2$ и $O_2$), и соответствующая вращательная энергия значительно превосходит не только электронные уровни, но и уровни диссоциации и ионизации азота и кислорода.

## §3. Резонанс (8), его ширина, заселение состояний

В этом параграфе на сугубо качественном уровне будут обсуждены другие стороны физической картины эффекта — главный элемент интерпретации составил содержание §2.

Изначальное появление резонанса (8) легко трактовать как происходящее в процессе межмолекулярного столкновения — ведь оно достаточно для перехода между вращательными состояниями, а классичность центров масс непрерывно «заполняет» промежуток между квантовыми уровнями; при необходимости несложно оценить вероятность точного исполнения (8). Поскольку речь идет об отдельном соударении, то, ориентируясь на теорию контура спектральных линий (напр., [10]), можно, как вполне приемлемую гипотезу, принять в качестве $\gamma$ доплеровскую полуширину (естественная ничтожна для вращательной частоты).

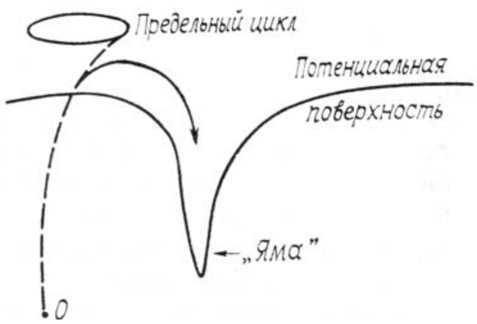


Рис. 3. Движение ротатора к предельному циклу в фазовом пространстве: «яма» — оответствует стационарному электронно-вращательному состоянию; – – – – условное изображение «навинчивающейся» на предельный цикл траектории ротатора (см. §2); → — движение из-за электронно-вращательного взаимодействия. Энергия предельного цикла оценена в конце §2

Следующий пункт — с ним связана схема на рис. 3 — призван разъяснить картину широкополосного возбуждения (см. §1). При весьма энергичном вращении в игру включится совершенно незначительное в обычных условиях электронно-вращательное взаимодействие; из соответствующих членов точного гамильтониана [11] для (5) можно оставить $\hat{\Gamma} = (i\hbar\hat{L}_2/I)d/d\Theta$ с $\hat{L}_2$ — оператором момента количества движения электронов (в молекулярной системе). Это $\hat{\Gamma}$ выступает как причина безызлучательного перехода, заставляющего ротатор «свернуть» в «яму» с пути к предельному циклу (см. рис. 3). Ясно, что окажутся заселенными все состояния, энергия которых ниже энергии предельного цикла.

Нет проблем при постановке вопроса о вероятности подобных процессов и вероятности последующего спонтанного излучения. Но обсуждение вряд ли окажется конструктивным, ибо поведение молекулы при гигантских вращательных числах не принадлежит к числу решенных вопросов молекулярной спектроскопии.

Стоит отметить лишь одну деталь. Конечно, схема рис. 3 — отнюдь не единственная мыслимая возможность возбуждения и «высвечивания». Но лишь для нее полная вероятность пропорциональна интенсивности внешнего поля. Расчет этот основывается на допущении, что волновая вращательная функция есть $P_\nu^{-\nu}(\cos\Theta)\cdot\exp(-i\nu\varphi)$, где $P_\nu^{-\nu}(\cos\Theta)$ — функция Лежандра и $\nu$ соответствует энергии вращения с частотами из (9). Эта функция воспроизводит (*б*) на рис. 2 (что позволяет ссылаться на метод полуклассического представления [12] во время перехода от классического описания §2 к теперешнему квантовому) и удовлетворяет уравнению Шредингера с гамильтонианом жесткого ротатора.


1. Еньшин А.В. //ДАН СССР. 1986. Т. 289. № 6. С. 1360–1362.
2. Еньшин А.В. //Оптика атмосферы. 1988. Т. 1. № 5. С. 48–54.
3. Еньшин А.В., Творогов С.Д. //XIII Международная конф. по когерентной и нелинейной оптике. (Тезисы докл.). Минск, 1988. Ч. IV. С. 108–109.
4. Ахманов С.А., Коротеев Н.И. Методы нелинейной оптики в спектроскопии рассеяния света. Активная спектроскопия рассеяния света. М.: Наука, 1981. 544 с.
5. Мессиа А. Квантовая механика. М.: Наука, 1979. 503 с.
6. Арнольд В.И. Обыкновенные дифференциальные уравнения. М.: Наука, 1984. 272 с.
7. Хакен Г. Синергетика. М.: Мир, 1985. 419 с.
8. Эрдейн А. Асимптотические разложения. М.: Физматгиз, 1962. 127 с.
9. Лаврентьев М.А., Шабат Б.В. Методы теории функции комплексного переменного. М.: Физматгиз, 1958. 678 с.
10. Несмелова Л.И., Родимова О.Б., Творогов С.Д. Контур спектральной линии и межмолекулярное взаимодействие. Новосибирск: Наука, 1986. 215 с.
11. Макушкин Ю.С., Тютерев В.Г. Методы возмущений и эффективные гамильтонианы. Новосибирск: Наука, 1984. 240 с.
12. Гордов Е.П., Творогов С.Д. Метод полуклассического представления квантовой теории. Новосибирск: Наука, 1984. 167 с.



НИИ прикладной механики и математики
при Томском госуниверситете
Институт оптики атмосферы
СО АН СССР, Томск



Поступила в редакцию
23 января 1989 г.



A.V. En'shin, S.D. Tvorogov. **Rigid Rotator in Biharmonic Resonance Field**.

The paper presents the results of experiments on irradiation of air molecules with biharmonic radiation of Nd—YAG-laser second harmonic (two longitudinal modes). It was recorded about 750 lines in the emission spectrum of thus excited molecules within the region from 0,198 to 0,394 μm. These lines are due to transitions between excited electron stats of $N_2$ molecules as well as of the molecular ions $N_2^+$ and $O_2^+$, and of the ionized atoms $N^+$ and $O^+$. It is shown in this paper that the effect, can only be observed in the media containing molecules with the rotational energy levels irradiated with a biharmonic field, the difference of energies between he waves of which is in resonance with the energy of a rotational state of a molecule.

Interpretation of the experimental results is based on the qualitative analysis of differential equations of motion. Finally, the analysis made allowed us to state that there exist a stationary point of the «centre» type and an asymptotic cycle with the «screw-on» on it trajectories (regardless of their initial conditions). As a consequence, a rigid rotator placed in a biharmonic resonant (at the difference frequency) field can be considered as a synergetic system.