

В.В. Зуев, С.И. Долгий, Н.Е. Орлова

Усиление интенсивности комбинационного рассеяния молекулами озона при их фотодиссоциации в результате нелинейного двухфотонного поглощения излучения Хе–Сl-лазера

Институт оптики атмосферы СО РАН, г. Томск

Поступила в редакцию 16.08.2002 г.

Описаны результаты лабораторных исследований усиления интенсивности комбинационного рассеяния молекулами озона при их фотодиссоциации за счет нелинейного двухфотонного поглощения излучения Хе–Сl-лазера с длиной волны 308 нм в фокусе линзы. При увеличении энергии лазерного излучения до 40 мДж при достижении предпробойного режима (на грани искрового пробоя) в фокусе линзы экспериментально полученный коэффициент усиления составил пять порядков величины.

Как известно, существует резонансный тип комбинационного рассеяния (КР), связанный с возбуждением в диссоционный континуум [1]. В этом случае происходит мгновенное переизлучение с частотными сдвигами комбинационного рассеяния, еще до того, как молекула успевает диссоциировать. При этом сечение такого типа КР может резонансно усиливаться на несколько порядков. Этот процесс экспериментально обнаружен для молекул галогенов (I_2 , Cl_2 и др.) [2]. Для молекулы озона (O_3) были сделаны лишь теоретические оценки [3]. Они показывают, что при ее возбуждении выше порога диссоциации в центре полосы поглощения Хартли резонансно усиленное сечение КР-молекулы озона может достигать величины порядка 10^{-24} см²/ср, что примерно на пять порядков выше сечения КР-молекулы азота. Хотя в обычном режиме отношение сечений КР озона и азота при одной длине волны возбуждения составляет всего 3,6 [1].

Для экспериментальной проверки результатов теоретических расчетов мы исследовали усиление сигнала комбинационного рассеяния молекулами озона при их фотодиссоциации в результате нелинейного двухфотонного поглощения излучения Хе–Сl-лазера с длиной волны 308 нм в фокусе линзы. Режим двухфотонного поглощения (примерно 65000 см⁻¹) обеспечивает безусловное превышение практически всех порогов фотодиссоциации молекул озона в любом энергетическом состоянии. Блок-схема экспериментального стенда изображена на рис. 1.

Излучение Хе–Сl-лазера фокусировалось с помощью линзы $L1$ с фокусным расстоянием 85 мм. При превышении энергии лазерного излучения более 40 мДж в фокусе линзы происходил искровой пробой в атмосфере. Наличие светящейся искры обеспечивало точную юстировку оптического тракта регистрации

КР-сигналов именно из этого атмосферного объема. Ее изображение с помощью двух линз $L2$ и $L3$ строилось на входной щели монохроматора МДР-23. Для устранения возможных боковых засветок линзы и щель

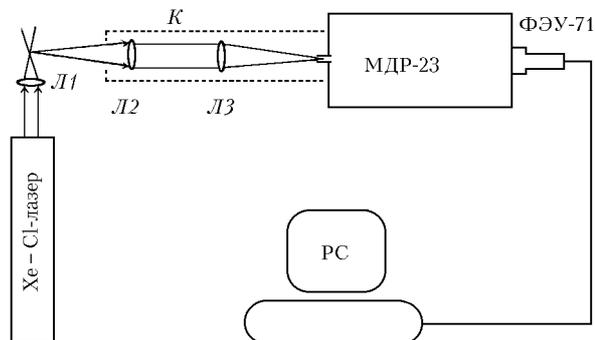


Рис. 1. Блок-схема экспериментального стенда: $L1$, $L2$, $L3$ – линзы; K – защитный кожух

защищались кожухом K . У выходной щели монохроматора был установлен ФЭУ-71, детектирующий отдельные импульсы фототока (режим счета фотонов). После оптической юстировки энергия лазерного излучения постепенно уменьшалась до тех пор, пока в фокусе не пропадала искра.

На рис. 2 представлены зарегистрированные спектры сигналов КР при двух уровнях энергии излучения Хе–Сl-лазера. В предпробойном режиме при 40 мДж в области около 319 нм, отмеченной кругом, четко регистрировался КР-сигнал озона (рис. 2,а). Но он совсем не идентифицировался уже при уменьшении энергии всего на 30%. Это особенно наглядно видно по изменению углов наклона регрессионных прямых (штриховые линии), представленных на рис. 2,б, где изображены сигналы в области линии

КР озона, зарегистрированные с лучшим спектральным разрешением и большим временем накопления сигнала на каждом отсчете.

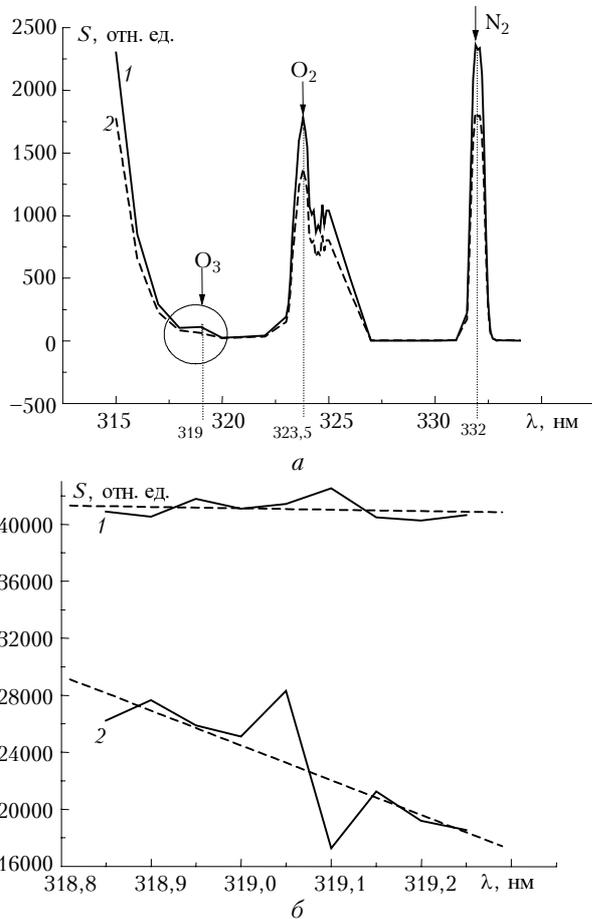


Рис. 2. Спектр КР, возбуждаемый излучением Хе-СІ-лазера с длиной волны $\lambda = 308$ нм в фокусе линзы Л1 с энергией 40 и 28 мДж (кривые 1 и 2 соответственно): а – шаг по спектру $\Delta\lambda = 0,1$ нм; число импульсов накопления $n = 2000$; б – $\Delta\lambda = 0,05$ нм; $n = 50000$

На рис. 2,а хорошо видна подставка КР-сигналов за счет крыла лазерной линии возбуждения 308 нм. После коррекции этих искажений отношение КР-сигналов озона $S(O_3)$ и азота $S(N_2)$ составляет величину $S(O_3)/S(N_2) = 51/2301 \approx 0,022$. В свою очередь, $S(O_3)/S(N_2) = N(O_3)d\sigma'(O_3)/d\Omega/N(N_2)d\sigma(N_2)/d\Omega$. Здесь $N(O_3)$ и $N(N_2)$ – концентрации молекул озона и азота, а $d\sigma'(O_3)/d\Omega$ и $d\sigma(N_2)/d\Omega$ – сечения КР озона и азота соответственно. Причем знак штриха для сечения КР озона указывает на его резонансное усиление перед фотодиссоциацией. Возьмем табличные значения объемного содержания озона и азота в приземной атмосфере $2 \cdot 10^{-6}$ и 78,09% соответственно [4]. Тогда полученное отношение сечений $d\sigma'(O_3)/d\Omega/d\sigma(N_2)/d\Omega$ при фотодиссоциации молекул озона составляет $0,7 \cdot 10^5$, что хорошо согласуется с расчетными оценками [3].

Такое усиление интенсивности КР-сигнала молекул озона при их фотодиссоциации обеспечивает уверенное обнаружение фоновых концентраций тропо-

сферного озона с помощью лидаров. Понятно, что для практической реализации КР лазерного зондирования тропосферного озона необходимо рассматривать более эффективные схемы фотодиссоциации молекул озона по трассе зондирования. Так, например, можно ожидать, что при использовании в качестве лазерного передатчика КР-лидара эксимерного Кг–F-лазера с ячейкой водорода (H_2) высокого давления, одновременно излучающего в одном канале распространения по трассе зондирования на длинах волн 248 нм (основная частота), а также 277 и 313 нм (1-я и 2-я стоксовы линии вынужденного КР в ячейке H_2 соответственно), лазерные фотоны на основной частоте (248 нм) должны эффективно фотодиссоциировать молекулы озона. Отметим при этом, что для повышения эффективности фотодиссоциации озона по трассе зондирования можно использовать также дополнительное излучение CO_2 -лазера на длинах волн в полосе поглощения озона 9,6 мкм, синхронизованное с излучением Кг–F-лазера. Тогда излучение на 313 нм можно использовать как пробное для возбуждения КР-сигналов озона и азота на длинах волн 324 и 337 нм соответственно.

Следует подчеркнуть, что такой КР-лидар может давать более достоверную информацию о тропосферном озоне, по крайней мере в нижнем пограничном слое атмосферы, чем лидар дифференциального поглощения с использованием того же Кг–F-лазера с ячейкой H_2 . Дело в том, что лазерное зондирование тропосферного озона методом дифференциального поглощения на парах длин волн on-line/off-line (например, 248/277 или 277/313 нм) сильно чувствительно к спектральным и особенно к пространственным неоднородностям в распределениях коэффициентов аэрозольного рассеяния [5]. В условиях аэрозольно-неоднородной атмосферы, что наиболее характерно для нижней части пограничного слоя атмосферы, эти распределения носят сложный и непредсказуемый характер, поэтому проблема аэрозольной коррекции данных лазерного зондирования тропосферного озона методом дифференциального поглощения в полной мере неразрешима [6].

Таким образом, экспериментально зарегистрированное усиление интенсивности комбинационного рассеяния молекулами озона при их фотодиссоциации на пять порядков создает реальные предпосылки для разработок по сути нового метода КР лазерного зондирования тропосферного озона, по крайней мере, в нижней части пограничного слоя атмосферы, как альтернативы ультрафиолетового лидарного метода дифференциального поглощения.

1. Инаба Х. Обнаружение атомов и молекул посредством комбинационного рассеяния и резонансной флуоресценции // Лазерный контроль атмосферы / Ред. Э.Д. Хинкли. М.: Мир, 1979. С. 181–275.
2. Holzer W., Murphy W.F., Bernstein H.J. // J. Chem. Phys. 1970. V. 52. P. 399–411.
3. Penney C.M. // Laser Raman Gas Diagnostics / Ed. by M. Lapp and C.M. Penney. New York: Plenum Press, 1974. 191 p.

4. Мелфу С.Х. Дистанционное зондирование для управления качеством воздуха // Лазерный контроль атмосферы / Ред. Э.Д. Хинкли. М.: Мир, 1979. С. 22–44.
5. Browell E., Ismail S., Shipley S. Ultraviolet DIAL measurements of ozone profiles in regions of spatially inhomogeneous aerosols // Appl. Opt. V. 24. 1985. № 24. P. 2827–2836.

6. Boesenberg J., Ancellet G., Apituley A., Edner H., Galle B., Sonnemans G. Tropospheric Ozone Lidar Intercomparison Experiment, TROLIX'91. Field Phase Report. MPI report N 120, Max-Planck-Institute. Germany. Hamburg, 1993.

V.V. Zuev, S.I. Dolgii, N.E. Orlova. Amplification of intensity of Raman scattering by ozone molecules during their photodissociation as a result of nonlinear two-photon absorption of Xe-Cl laser radiation.

The paper discusses the results of laboratory studies of amplification of intensity of Raman scattering by ozone molecules during their photodissociation due to nonlinear two-photon absorption of Xe-Cl laser radiation with the wavelength of 308 nm at the lens focus. As the laser radiation energy increases up to 40 mJ and the laser reaches near-breakdown regime (at about spark breakdown), the experimental amplification factor at the lens focus is five orders of magnitude.