

УДК 535.518 : 535.375.5 : [546.21+546.17]

ИЗМЕРЕНИЕ УГЛОВОЙ ЗАВИСИМОСТИ КОМБИНАЦИОННОГО РАССЕЯНИЯ СВЕТА И ОПРЕДЕЛЕНИЕ НЕКОТОРЫХ ПАРАМЕТРОВ ПОЛЯРИЗУЕМОСТИ МОЛЕКУЛ O_2 И N_2

М. А. Булдаков, И. И. Матросов и Т. Н. Попова

Предложен метод определения степени деполяризации рассеянного света из измерений угловой зависимости рассеяния света. Проведены измерения угловых зависимостей комбинационного рассеяния света молекулами O_2 и N_2 и определены степени деполяризации рассеянного света для Q -ветвей колебательного перехода этих молекул. Определены след и анизотропия тензора производных поляризуемости молекул O_2 и N_2 .

В настоящее время в связи с развитием лазерной техники резко возрос интерес к вопросам, связанным с процессом комбинационного рассеяния света (КРС) в газах. Практические возможности использования этого явления для дистанционной диагностики газовых смесей привлекают своей перспективностью многих специалистов в самых различных областях науки и техники. Поэтому получение экспериментальных данных о комбинационном рассеянии света молекулами газа представляет несомненный интерес. Одной из основных характеристик КРС является угловое распределение интенсивности рассеянного света. Вид этого распределения определяется сортом рассеивающих молекул и характеристиками возбуждающего света. Угловую зависимость КРС можно описать с помощью дифференциального сечения рассеяния и степени деполяризации рассеянного света или с помощью однозначно связанных с ними инвариантов тензора комбинационного рассеяния света.

Дифференциальные сечения рассеяния для Q -ветвей основных колебательных переходов молекул N_2 и O_2 при возбуждении излучением с $\lambda=488$ нм определены с хорошей точностью в работах [1, 2]. Степень же деполяризации рассеянного света для этих переходов при $\lambda=488$ нм, насколько нам известно, определялась ранее только для азота [3]. Однако авторы этой работы не оценивают погрешностей в определении данной величины и поэтому трудно судить о надежности их результатов.

В данной работе предлагается метод получения надежного значения степени деполяризации рассеянного света из измерений угловой зависимости рассеяния, что позволяет с хорошей точностью определять инварианты тензора производных поляризуемости молекул.

Угловая зависимость рассеяния и определение инвариантов тензора производных поляризуемости молекул

Рассеяние света является результатом взаимодействия молекулы газа с падающим на нее излучением. В общем случае интенсивность рассеянного света и его поляризация определяются компонентами тензора рассеяния. Поскольку молекула может произвольно ориентироваться в пространстве, то удобнее описывать рассеянный свет через инварианты

этого тензора, которые не зависят от ориентации молекулы. По Плачеку [4], тензор рассеяния вдали от резонанса можно заменить тензором поляризуемости. Тогда интенсивность рассеянного света линейной молекулой в малом телесном угле $d\Omega$ для Q -ветви колебательной стоксовой полосы при возбуждении линейно поляризованным светом может быть представлена в виде [4]

$$dI(\theta) = \frac{4\pi^4}{45} I_0 \nu^4 \frac{h}{8\pi^2 \omega_e \mu} [180(\alpha')^2 \sin^2 \theta + (6 + \sin^2 \theta)(\gamma')^2] d\Omega, \quad (1)$$

где I_0 — интенсивность возбуждающего излучения, ν — частота Q -ветви колебательной стоксовой полосы (см^{-1}), h — постоянная Планка, ω_e — собственная частота колебаний ядер молекулы для бесконечно малых амплитуд, μ — приведенная масса молекулы, α' — след тензора производных поляризуемости молекулы, γ' — анизотропия тензора производных поляризуемости молекулы, θ — угол между направлением наблюдения и направлением колебания электрического вектора падающей волны. Дифференциальное сечение рассеяния для данного перехода при $\theta = \pi/2$ можно легко получить из (1), полагая $I_0 = 1$ и $d\Omega = 1$,

$$\sigma = \frac{4\pi^4}{45} \nu^4 \frac{h}{8\pi^2 \omega_e \mu} [180(\alpha')^2 + 7(\gamma')^2]. \quad (2)$$

Степень деполяризации рассеянного света при $\theta = \pi/2$ также можно выразить через инварианты тензора α' и γ' [4]

$$\rho = \frac{3(\gamma')^2}{180(\alpha')^2 + 4(\gamma')^2}. \quad (3)$$

Таким образом, зная экспериментально измеряемые величины σ и ρ , можно легко получить инварианты тензора α' и γ' .

В отличие от дифференциального сечения рассеяния надежные значения степени деполяризации рассеянного света получить труднее. Это связано с малой величиной интенсивности деполяризованного рассеянного света. Поэтому предлагается определять степень деполяризации ρ из угловой зависимости КРС для Q -ветви колебательной полосы.

Выражение (1) с учетом (3) можно переписать в следующем виде:

$$dI(\rho, \theta) = A \left(1 - \frac{1-\rho}{1+\rho} \cos^2 \theta\right) d\Omega, \quad (4)$$

где A зависит только от сорта газа и мощности возбуждающего излучения. Уравнение (4) описывает угловую зависимость рассеяния света в сферической системе координат.

В реальных измерениях рассеянный свет собирается в относительно большом телесном угле $\Delta\Omega$. Поэтому измеренная угловая зависимость КРС будет описываться уравнением

$$I(\rho, \theta, \Delta\Omega) = \int_{\Delta\Omega} A \left(1 - \frac{1-\rho}{1+\rho} \cos^2 \theta\right) d\Omega. \quad (5)$$

Произведя интегрирование, получаем

$$I(\rho, \theta, \epsilon) = A\pi \left[\frac{1-\rho}{1+\rho} (\epsilon - \epsilon^3) \sin^2 \theta + 2(1-\epsilon) - \frac{2}{3} \frac{1-\rho}{1+\rho} (1-\epsilon^3) \right], \quad (6)$$

где $\epsilon = 1 - \Delta\lambda/2\pi$.

Уравнение (6) является линейным относительно $\sin^2 \theta$ и его можно записать в виде

$$I(\rho, \theta, \epsilon) = a \sin^2 \theta + b. \quad (7)$$

Отсюда видно, что, обработав измеренную угловую зависимость КРС методом наименьших квадратов, можно с точностью до постоянного коэффициента получить наиболее правдоподобные значения a и b . Их отношение

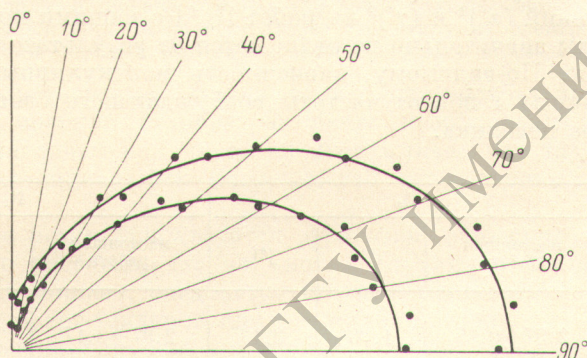
$$\frac{b}{a} = \frac{2(1-\varepsilon) - \frac{2}{3} \frac{1-\rho}{1+\rho} (1-\varepsilon^3)}{\frac{1-\rho}{1+\rho} (\varepsilon - \varepsilon^3)} \quad (8)$$

дает возможность легко определить параметр ρ

$$\rho = 1 - \frac{12}{8 + \varepsilon(1 + \varepsilon) \left(2 + 3 \frac{b}{a}\right)}. \quad (9)$$

Экспериментальное определение угловой зависимости КРС

В качестве источника возбуждающего излучения использовался аргоновый лазер ЛГ-106 с мощностью излучения 0.5 Вт на $\lambda=488$ нм. Лазерный луч направлялся параллельно входной щели спектрометра и фокусировался линзой в центре кюветы. Кювета представляла собой полый стеклянный цилиндр с исследуемым газом. Внутри кюветы помещались диафрагмы, служащие для уменьшения рассеянного от торцов кюветы света. Наблюдение производилось в направлении, перпендикулярном



Угловая зависимость КРС для Q-ветвей колебательных полос азота и кислорода. Внешняя кривая соответствует кислороду ($\rho=0.0451 \pm 0.0047$), внутренняя — азоту ($\rho=0.0208 \pm 0.0071$).

направлению распространения лазерного луча. Рассеянный свет фокусировался объективом «Юпитер-12» на входную щель спектрометра ДФС-4. Угол сбора объектива — 0.03 ср. Световой сигнал регистрировался ФЭУ-79 и системой счета импульсов. Перед кюветой помещалась полуволновая пластинка, вращение которой обеспечивало поворот плоскости поляризации лазерного излучения. Мощность излучения лазера регистрировалась фотоэлементом с последующей записью на самописце.

На данной установке проведены измерения угловой зависимости КРС для Q-ветвей молекул кислорода и азота. Измерения проводились при спектральной ширине щели 8.0 см^{-1} и времени счета 1 мин. Получено по 5 угловых зависимостей рассеяния для каждого газа. В каждой измеренной угловой зависимости проведена коррекция на изменение поляризации рассеянного света при повороте плоскости поляризации лазерного излучения. Фоновый свет в кювете измерялся при отсутствии газа в зависимости от угла поворота полуволновой пластинки.

На рисунке приведены полученные угловые зависимости комбинационного рассеяния света для Q-ветвей колебательных полос азота и кислорода. Измерения интенсивности проводились при изменении угла θ от 0 до 90° с интервалом в 5°. Экспериментальные значения обрабатывались описанным выше способом. Сплошными линиями на рисунке проведены не искаженные измерительной аппаратурой угловые зависимости КРС,

полученные с помощью выражения (4) и определенных нами значений ρ . Из графиков видно, что экспериментальные точки хорошо ложатся на рассчитанную по ним кривую. Это означает, что телесный угол сбора нашей установки $\Delta\Omega$ можно считать достаточно малым, и поэтому наши измерения непосредственно дали угловую зависимость КРС.

В результате обработки измеренных угловых зависимостей получено по 5 значений для каждого газа. Их средние величины составляют: для кислорода $\rho=0.0427\pm 0.0029$ и для азота $\rho=0.0211\pm 0.0043$. Наше значение ρ для азота хорошо согласуется с полученным значением $\rho=0.02$ в [3]. Используя определенные нами значения степени деполяризации и дифференциальные сечения рассеяния для азота $\sigma=(5.4\pm 0.3)\times 10^{-31}$ см²/ср и для кислорода $\sigma=(7.0\pm 1.0)\cdot 10^{-31}$ см²/ср, взятые из работ [1, 2], мы рассчитали молекулярные параметры $(\alpha')^2$ и $(\gamma')^2$. Полученные значения представлены в таблице. В таблице помимо наших результатов приведены значения параметров $(\alpha')^2$ и $(\gamma')^2$ из работ [5, 6], полученных с использованием излучения с $\lambda=435.8$ нм. К сожалению, в этих работах наблюдается заметное различие в значениях величин $(\alpha')^2$ и $(\gamma')^2$, а также не приведены оценки ошибок измерений. По этим причинам мы не имеем надежных значений $(\alpha')^2$ и $(\gamma')^2$ для $\lambda=435.8$ нм и поэтому не можем оценить ход изменения этих величин при изменении длины волны возбуждающего излучения. Сравнение же приведенных в таблице значений $(\alpha')^2$ и $(\gamma')^2$ из работ [5, 6] с нашими показывает, что наши результаты значительно не отличаются от результатов, полученных в этих работах. По-видимому, зависимость молекулярных параметров $(\alpha')^2$ и $(\gamma')^2$ данных газов от частоты возбуждающего света для данной области спектра невелика.

	O ₂			N ₂		
	настоящая работа	[5]	[6]	настоящая работа	[5]	[6]
$(\alpha')^2 \cdot 10^{32}$, см ⁴	2.37 ± 0.35	1.96	2.13	2.97 ± 0.17	2.56	3.06
$(\gamma')^2 \cdot 10^{32}$, см ⁴	6.45 ± 1.29	4.60	8.50	3.87 ± 0.99	4.65	5.39

З а к л ю ч е н и е

Таким образом, в данной работе показано, что измерение угловой зависимости комбинационного рассеяния света представляет не только самостоятельный интерес, но и является надежным методом получения степени деполяризации рассеянного света, а также с привлечением данных о дифференциальном сечении рассеяния позволяет вычислить инварианты тензора производных поляризуемости молекулы.

Полученные значения параметров $(\alpha')^2$ и $(\gamma')^2$ могут быть использованы для расчета интенсивности рассеянного света и его поляризации для основной колебательной полосы спектра комбинационного рассеяния света.

Л и т е р а т у р а

- [1] Н. А. Hyatt, J. M. Cherlow, W. R. Fenner, S. P. S. Porto. J. Opt. Soc. Am., 63, 1604, 1973.
- [2] W. R. Fenner, Н. А. Hyatt, J. M. Kellam, S. P. S. Porto. J. Opt. Soc., Am., 63, 73, 1973.
- [3] J. M. Hoell Jr., D. Allario, O. Jarret Jr., R. K. Seals Jr. J. Chem. Phys., 58, 2896, 1973.
- [4] Г. П л а ч е к. Релеевское рассеяние и раман-эффект. ОНТИ, Харьков—Киев, 1935.
- [5] E. J. Stransbury, M. F. Crawford, H. L. Welsh. Can. J. Phys., 31, 954, 1953.
- [6] W. F. Murphy, W. Holzer, H. J. Bernstein. Appl. Spectr., 23, 241, 1969.

Поступило в Редакцию 3 августа 1978 г.