

УСПЕХИ ФИЗИЧЕСКИХ НАУК

535

**СПЕКТРОСКОПИЯ ФЛУКТУАЦИЙ ИНТЕНСИВНОСТИ
ОПТИЧЕСКИХ ПОЛЕЙ С НЕГАУССОВОЙ СТАТИСТИКОЙ*****Е. Б. Александров, Ю. М. Голубев, А. В. Ломакин,
В. А. Носкин*****СОДЕРЖАНИЕ**

1. Введение	547
2. Выделение негауссовой составляющей флуктуаций электромагнитного поля	550
а) Регистрация спектров флуктуаций интенсивности света (550). б) Возможные причины негауссности статистики излучения (551). в) Условия наблюдения эффектов негауссности поля (553).	
3. Шумовые исследования в атомной спектроскопии	555
а) Поиски негауссности в спонтанном излучении газовой среды (555). б) Спектроскопия шумов света, зондирующего атомную среду (560).	
4. Эффекты негауссости при рассеянии света на макрочастицах в растворе.	570
а) Особенности СФИ при изучении внутренней динамики макрочастиц (571). б) Эффекты негауссости при $N \sim 1$ (573). в) СФИ флуоресценции (574). г) Искусственное снижение спектральной плотности гауссовой составляющей (576). д) Метод взаимной корреляции (577).	
Заключение	580
Цитированная литература	581

1. ВВЕДЕНИЕ

Интенсивность любого электромагнитного излучения флуктуирует во времени. До недавнего времени эти флуктуации рассматривались лишь с точки зрения помех, создаваемых ими для задач исследования, связи, локации и т. п. Однако работы последних лет показали, что изучение статистических свойств этих флуктуаций позволяет с успехом получать информацию, не только эквивалентную доставляемой обычным спектральным анализом поля, но и существенным образом ее дополняющую. Настоящий обзор посвящен работам, в которых средствами спектроскопии флуктуации излучения получаются данные о динамике излучающей системы, необнаружимые в обычном спектральном анализе.

Та область спектрального анализа, которую мы будем здесь обсуждать, имеет довольно много различных названий. Мы будем часто употреблять название «спектроскопия флуктуаций интенсивности (СФИ)» или «спектроскопия шумов». В литературе, кроме того, употребляются и другие термины, такие как «спектроскопия оптического смешения», «спектроскопия световых биений», «спектроскопия оптического гетеро- и гомодинирования» и проч. Ни одно из них нельзя считать всеобъемлющим, каждое из них наиболее употребительно в той или иной ситуации, и мы в дальнейшем оставляем за собой право по мере надобности употреблять любое из них.

Соотнесем СФИ с традиционной спектроскопией. В традиционном спектроскопическом эксперименте излучение разлагается в спектр с помощью того или иного диспергирующего элемента (призма, дифракционная решетка и проч.) или монохроматизируется с помощью фильтра (всевозможные резонаторы, селективные поглотители и проч.). Идеальной монохроматизации сопоставляется величина E_ω , являющаяся Фурье-образом напряженности поля $E(t)$:

$$E_\omega = \frac{1}{2\pi} \int E(t) e^{i\omega t} dt. \quad (1)$$

Спектральный анализ завершается измерением с помощью фотоприемника мощности спектра, которая в соответствии с теоремой Винера — Хинчина представляется в виде

$$I_\omega = \int \langle E(t) E^*(t + \tau) \rangle e^{i\omega\tau} d\tau. \quad (2)$$

В отличие от *мощности спектра* I_ω , регистрируемого в обычной спектроскопии, в спектроскопии шумов исследуется *спектр мощности*. Этой перестановке слов соответствует в измерительной процедуре перестановка функциональных элементов: если в обычном спектральном анализе за спектроаналитическим узлом следует измеритель мощности — фотоприемник, то в спектроскопии шумов излучение сразу преобразуется в сигнал фотоприемника, а спектральному анализу подвергается уже этот сигнал. Измеряемой в этом случае является величина

$$i_\omega^2 = \int \langle i(t) i(t + \tau) \rangle e^{i\omega\tau} d\tau, \quad (3)$$

где $i(t)$ — мгновенное значение фототока. Если полагать, что $i(t)$ пропорционально интенсивности света $I(t) = |E(t)|^2$, то процедура измерения спектра фототока i_ω^2 оказывается эквивалентной измерению спектра мощности света

$$I_\omega^2 = \int \langle I(t) I(t + \tau) \rangle e^{i\omega\tau} d\tau \quad (4)$$

(на самом деле это не вполне так, и соответствие оказывается более сложным; этот вопрос будет обсуждаться в следующем разделе).

Очевидно, что спектр мощности I_ω^2 , по крайней мере частично, определяется спектром поля I_ω . Например, если поле состоит только из двух монохроматических волн, то спектр мощности такого поля будет состоять из двух линий (так же, как и спектр поля), одна из которых имеет нулевую частоту, а другая имеет частоту, равную разности частот налагающихся полей. Абсолютные значения частот света при этом, разумеется, остаются неизвестными.

Задача СФИ имеет точную радиотехническую аналогию. Если имеется высокая несущая частота, модулированная относительно низкочастотным исследуемым процессом, то его спектр можно получить прямым спектральным анализом высокочастотного сигнала, для чего требуется лишь достаточно высокое разрешение измерительной аппаратуры. Если требования к нему оказываются чрезмерными, то можно сначала провести детектирование сигнала и, избавившись от высокой несущей частоты, проводить анализ сигнала в низкочастотной области с соответственно сниженными требованиями к разрешению ценой нового требования — достаточного быстродействия детектора.

Исторически первым исследованием спектра шумов света была работа Форрестора, Гудмундсена и Джонсона¹ по гетеродинированию света.

В этой работе в спектре фототока приемника, освещаемого двумя спектрально близкими линиями ртути, был обнаружен максимум на частоте биений между этими линиями. Работа преследовала чисто демонстрационные цели: шумовой максимум был едва обнаружен, составляя всего 10^{-4} от фона «белого» дробового шума. Результаты работы¹, очевидные в свете сегодняшних воззрений, вызвали обширную дискуссию, в которой, в частности, подвергалась сомнению сама принципиальная возможность наблюдения биений от двух независимых источников света. Аналогичную полемику вскоре вызвали получившие широкую известность исследования по корреляциям интенсивностей, начатые Хэнбери-Брауном и Твиссом². Любопытно отметить, что хотя работы^{1,2} в принципиальном отношении эквивалентны, до недавнего времени они обсуждались совершенно независимо.

Упомянутые исследования весьма трудны из-за малости эффекта корреляций мощности. Указанное выше соотношение мощности биений и дробового фона 10^{-4} является типичным для обычных источников излучения. Поэтому спектроскопия шумов в применении к этим источникам в практику не вошла, хотя в варианте корреляций интенсивностей эта техника нашла применение для определения площадей корреляций света звезд².

С появлением лазеров интерес к спектроскопии шумов резко возрос. Из-за высокой спектральной яркости мощность биений в излучении лазеров на порядки превосходит уровень дробовых шумов, что, в частности, сразу стало широко использоваться для анализа модового состава излучения. Однако наибольшее развитие спектроскопия шумов получила применительно к задачам анализа распределения скоростей частиц в жидкостях и газах, рассеивающих лазерное излучение (см. на эту тему³). Рассеянное излучение благодаря эффекту Дошплера оказывается уширенным спектрально, и это уширение наиболее эффективно анализируется методами СФИ, которая в этом применении более известна под названием метода оптического гетеро- и гомодинирования.

В указанных применениях СФИ используется для получения тех же сведений, которые могут быть получены и в рамках традиционной спектроскопии. Применительно к этим задачам спектроскопия шумов отличается от обычной спектроскопии чисто методически, обладая выраженным преимуществами при анализе излучения с высокой степенью когерентности, поскольку технические ограничения не позволяют применять обычные методы для анализа спектральных структур с шириной менее 100 МГц или для анализа пространственных корреляций на базах более 10 м.

Помимо методических достоинств, спектроскопия шумов в некоторых ситуациях обладает принципиальными преимуществами, давая информацию об излучении, отсутствующую в спектрах поля. Действительно, спектр шума по сути своей является спектром биений между различными гармониками спектра поля и потому может обнаруживать наличие фазовой корреляции между ними, никак не отраженной в спектре поля. Приведем простейший пример «белого» света, гармонически промодулированного по интенсивности, т. е., по определению, обладающего пиком в спектре мощности на частоте модуляции. Если частота модуляции меньше полной ширины спектра, то обычный спектральный анализ неспособен отличить модулированный свет от немодулированного.

Спектр поля и спектр мощности описываются корреляционными функциями первого и второго порядков соответственно. Полное описание произвольного статистического процесса дает совокупность бесконечного числа корреляционных функций всех порядков. В то же время известно, что если флуктуации поля носят гауссов характер, то все корреляционные

^{1*}

функции могут быть выражены через парный коррелятор. Таким образом, для гауссовых полей информативность спектра поля и спектра шумов принципиально одинакова. Только для негауссовых полей спектр шума несет новую информацию.

Настоящий обзор посвящен работам, целью которых было обнаружение особенностей в спектрах шумов, связанных с негауссовым характером исследуемых процессов.

Развитие этих идей привело к возникновению своеобразного направления атомной спектроскопии, имеющей сверхвысокое разрешение и не подверженной влиянию дошперовского уширения спектральных линий. По существу, речь идет об исследовании внутренней динамики атомных состояний (бисений электронной плотности атомов на частотах переходов между близкими энергетическими уровнями, а также затухания состояния под действием возмущения), проявляющейся в шумах излучения, взаимодействующего с атомами.

Аналогичные задачи были сформулированы применительно к исследованию динамики макрочастиц в растворах. В этих работах также была поставлена цель изучения внутренней динамики рассеивающих частиц, например вращения или изменения формы, на фоне трансляционных движений. Хотя объекты исследования, методические средства и возникающие проблемы в этих двух группах задач сильно различаются, однако в своей идейной основе они аналогичны, что послужило причиной объединения их в одном обзоре.

2. ВЫДЕЛЕНИЕ НЕГАУССОВОЙ СОСТАВЛЯЮЩЕЙ ФЛУКТУАЦИЙ ЭЛЕКТРОМАГНИТНОГО ПОЛЯ

а) Регистрация спектров флюктуаций интенсивности света

Говоря о флюктуациях интенсивности света, надо иметь в виду, что непосредственно измеряемой величиной является не свет, а сигнал фоторегистрирующего устройства, например фототок. Хотя усредненные за достаточно большой временной интервал величины фототока и интенсивности пропорциональны друг другу, этого никак нельзя сказать об их мгновенных значениях. Вопрос об их соотношении многократно исследовался в литературе⁴⁻⁷.

В квантовой теории фототоку можно сопоставить оператор

$$i(t) = e \frac{d}{dt} \hat{N}(t) = e \frac{d}{dt} \sum_i \hat{N}_i(t), \quad (5)$$

где $\hat{N}(t)$ — оператор числа атомов фотокатода, ионизованных к моменту времени t , $\hat{N}_i(t)$ — оператор с собственными значениями 0 и 1, e — заряд электрона. Суммирование ведется по атомам, ионизованным к моменту времени t .

Составим корреляционную функцию

$$\langle i(t_1) i(t_2) \rangle = e^2 \frac{d^2}{dt_1 dt_2} \left(\sum_i \langle \hat{N}_i(t_1) \hat{N}_i(t_2) \rangle + \sum_{i,j} \langle \hat{N}_i(t_1) \hat{N}_j(t_2) \rangle \right). \quad (6)$$

Первое слагаемое здесь формируется вкладами индивидуальных атомов и в конечном счете определит не зависящий от частоты и пропорциональный средней мощности излучения дробовый фон. Второе слагаемое учитывает интерференцию поглощения на различных атомах и определяет

информационную часть спектра (содержащую как гауссову, так и негауссову составляющие; см. далее).

Решая квантовомеханическую задачу о взаимодействии излучения с поглощающими атомами фотокатода в рамках теории возмущений в первом порядке по интенсивности света, получаем следующие выражения для спектра тока фотокатода:

$$i_{\omega}^2 = (i_{\omega}^2)_{\text{дроб}} + (i_{\omega}^2)_{\text{информ}}, \quad (7)$$

$$(i_{\omega}^2)_{\text{дроб}} = \frac{e^2}{2\pi\omega_0} q \int d^2s \langle E_{\mu}^+ (\mathbf{r}, t) E_{\mu} (\mathbf{r}, t) \rangle, \quad (8)$$

$$(i_{\omega}^2)_{\text{информ}} = \frac{e^2}{4\pi^2\omega_0^2} q^2 \int \int d^2s_1 d^2s_2 \int d\tau e^{i\omega\tau} \times \\ \times \langle E_{\mu}^+ (\mathbf{r}_1, t) E_{\nu}^+ (\mathbf{r}_2, t + \tau) E_{\nu} (\mathbf{r}_2, t + \tau) E_{\mu} (\mathbf{r}_1, t) \rangle + \text{k.c.}; \quad (9)$$

здесь E_{μ} — декартова компонента вектора поля E , интегрирование ведется по поверхности фотокатода S , по повторяющимся индексам подразумевается суммирование, q — квантовый выход фотоприемника.

Сравнивая формулы (7) — (9) с (4), видим, что спектр фототока i_{ω}^2 отличается от спектра интенсивности I_{ω}^2 уже наличием однородного по частоте дробового фона, появление которого связано с дискретным характером поглощения света на фотокатоде. Кроме того, информативная часть i_{ω}^2 тоже не вполне эквивалентна I_{ω}^2 , так как корреляторы $\langle I(t_1) I(t_2) \rangle = \langle E^+(t_1) E(t_2) E(t_3) \rangle$ и $\langle E^+(t_1) E^+(t_2) E(t_3) \rangle$, строго говоря, не совпадают друг с другом. В классической электродинамике между ними различия нет, но в квантовой теории операторы E и E^+ могут отличаться только по определенным правилам.

Из (7) — (9) следует, что спектр фототока центрирован не на оптической частоте, а на нулевой, попадая в радиодиапазон. Это обстоятельство и определило во многих исследованиях основное методическое преимущество СФИ — возможность анализа относительно медленных процессов, модулирующих поле E . Реализация этого преимущества определялась развитием в последнее время совершенных радиотехнических средств анализа низкочастотных сигналов.

б) Возможные причины негауссовой статистики излучения

Информативная часть спектра шума определяется коррелятором второго порядка $\langle E^+(1) E^+(2) E(2) E(1) \rangle$. Для поля с гауссовой статистикой хорошо известно соотношение

$$\langle E^+(1) E^+(2) E(2) E(1) \rangle = \\ = \langle E^+(1) E(1) \rangle \langle E^+(2) E(2) \rangle + \langle E^+(1) E(2) \rangle \langle E^+(2) E(1) \rangle. \quad (10)$$

Отсюда сразу следует, что для гауссова поля спектр шума не содержит никакой информации, кроме той, которая имеется в спектре поля, так как четверной коррелятор выразился через парные. Спектр шума в этом случае является сверткой спектра поля с самим собой. Так, если спектр поля был лоренцев, то и спектр шума также имеет вид лоренциана с удвоенной шириной.

Мы будем здесь интересоваться эффектами, связанными с негауссостью, когда соотношение (10) не выполняется, и потому спектр шума содержит информацию, дополнительную по отношению к спектру поля. До недавнего времени эффекты негауссости в атомной физике представлялись полностью пренебрежимыми, и основания для этого казались впол-

не убедительными. Действительно, запишем для поля N источников

$$E(t) = \sum_{i=1}^N E_i(t) \quad (11)$$

среднее $\langle I(0) I(\tau) \rangle$, где $I = |E|^2$. Оно может быть представлено в виде $\langle I(0) I(\tau) \rangle = \frac{1}{2} \sum_i \langle I_i(0) I_i(\tau) \rangle + \sum'_{i,j} \langle E_i(0) E_i^*(\tau) \rangle \langle E_j^*(0) E_j(\tau) \rangle + \text{к.с.};$ (12)

здесь первое слагаемое — негауссова составляющая света (разумеется, при условии, что излучение каждого индивидуального источника негауссово), а второе — гауссово. Нетрудно видеть, что гауссова составляющая в N раз больше негауссовой, что и служило всегда поводом для скептицизма в отношении возможностей выделения последней, так как на практике обычно $N \gg 1$ *) (мы в дальнейшем обсудим некоторые ситуации, в которых достигаются условия $N \sim 1$). Все это считалось совершенно незыблемым до появления лазеров. Нелинейные свойства среды, проявляющиеся в мощных электромагнитных полях, внесли существенные корректизы. Прежде всего, сами лазеры в некоторых режимах дают негауссово излучение (в режиме синхронизации многомодовой генерации). Но, кроме того, оказалось, что под влиянием мощного излучения обычные тепловые источники тоже дают негауссов свет. Таким образом, благодаря нелинейным явлениям негауссость сразу перестала быть чисто теоретической абстракцией. В то же время постепенно созревало мнение, что и без всяких нелинейных эффектов в излучении обычного теплового источника выделение негауссости является вполне реальным. В конечном счете оказалось, что приведенная выше оценка $1/N$ отношения негауссовой составляющей к гауссовой в некоторых условиях может быть заметно улучшена. Дальше мы обсудим некоторые из существующих возможностей этого.

Подчеркнем, что негауссова составляющая для независимых источников определяется флуктуациями интенсивности отдельных источников и, следовательно, не содержит уширений, связанных с флуктуациями фаз, в частности, допплеровского уширения. Это обстоятельство определяет ценность наблюдения эффектов негауссости для изучения характеристик отдельных источников излучения. В традиционном спектроскопическом эксперименте такие характеристики не могут быть получены либо принципиально, либо часто могут быть извлечены лишь ценой больших усилий. Главное достоинство СФИ, таким образом, состоит в том, что при наличии негауссости в поле она дает возможность получить в «чистом» виде информацию о внутренней динамике исследуемой системы.

В качестве иллюстрации сказанного выше рассмотрим пример рассеяния монохроматической электромагнитной волны

$$E(r, t) = E_0 e^{ikr - i\omega t} \quad (13)$$

на системе N независимых частиц. В результате рассеяния на i -й частице с координатой $r_i(t)$ возникает сферическая волна

$$E_i(t) = \alpha_i(t) \frac{1}{|R - r_i|} e^{ik|R - r_i| + iq_i r_i - i\omega t}, \quad (14)$$

*) Это находится в согласии с известной в статистической физике центральной предельной теоремой, согласно которой поле N источников имеет гауссову статистику, если все источники независимы друг от друга и число их велико ($N \rightarrow \infty$).

здесь

$$\mathbf{q}_i = \mathbf{k} - k \frac{\mathbf{R} - \mathbf{r}_i}{|\mathbf{R} - \mathbf{r}_i|},$$

\mathbf{R} — радиус-вектор точки наблюдения, α_i — амплитуда рассеяния, пропорциональная поляризуемости частицы.

Полагая, что наблюдение ведется в волновой зоне, когда размерами источника можно пренебречь по сравнению с расстоянием от источника до точки наблюдения, подставим (14) в (12). Если считать все рассеивающие частицы одинаковыми, то получим

$$\langle I(0) I(\tau) \rangle =$$

$$= \frac{N}{R^4} \langle |\alpha(0)|^2 |\alpha(\tau)|^2 \rangle + \frac{N(N-1)}{R^4} |\langle \alpha(0) \alpha^*(\tau) \rangle|^2 \langle e^{-i\mathbf{q}[\mathbf{r}(\tau) - \mathbf{r}(0)]} \rangle^2. \quad (15)$$

Как видно, гауссова составляющая, пропорциональная N^2 , определяется трансляционным движением $\mathbf{r}(\tau) - \mathbf{r}(0)$, которое может полностью «затянуть» динамику отдельной частицы, определяемую средним $\langle \alpha(0) \alpha^*(\tau) \rangle$. В то же время негауссова составляющая, пропорциональная N , от трансляционного движения не зависит вовсе и определяется только динамикой отдельной частицы.

При вычислении (15) мы полагали, что рассеивающие частицы совершенно независимы друг от друга. В других разнообразных ситуациях, в которых движения частиц скоррелированы, как это, например, имеет место в турбулентных потоках, мы останавливаться не будем. Эти вопросы исследования коллективных движений подробно разобраны в ряде работ и монографий (8, 9).

в) Условия наблюдения эффектов негауссности поля

Качественно условия для выделения эффектов негауссности поля могут быть установлены на основе следующих соображений. В области наблюдения мы имеем интерференционную картину от полей всех источников, за флюктуациями которой во времени мы и хотим следить. Можно выделить два типа флюктуаций: хаотические смещения интерференционной картины, связанные с фазовыми флюктуациями поля, которые, как мы видели, в случае независимых источников обусловливают гауссову составляющую поля, и хаотические изменения яркости интерференционной картины, которые связаны с амплитудными флюктуациями и обусловливают негауссов шум поля. Задача, таким образом, состоит в том, чтобы отделить один тип флюктуаций от другого. В тех случаях, когда характерные времена этих флюктуаций резко различны, это не составляет проблемы. Если характерное время фазовых флюктуаций T_c (время корреляции) гораздо больше характерного времени амплитудных флюктуаций T_0 , то задача вообще тривиальна: выбрав время наблюдения, гораздо меньшее T_c , мы сможем исключить влияние на выходные характеристики фазовых флюктуаций, т. е. гауссовой составляющей поля. При $T_c \ll T_0$ за время наблюдения происходит усреднение по фазовым флюктуациям, в результате чего гауссова составляющая света оказывается подавленной в T_c/T_0 раз по отношению к негауссовой.

Все сказанное выше представляется наиболее понятным на спектральном языке. Гауссова и негауссова составляющие спектра шумов легко разделяются, если имеют существенно различные спектральные ширины.

Наиболее трудный случай для выделения эффектов негауссности — промежуточный, когда $T_c \sim T_0$, который часто реализуется, например,

при рассеянии света на макрочастицах в растворах. Для отделения амплитудных флуктуаций от фазовых в этом случае могут быть использованы два способа. Во-первых, можно увеличивать телесный угол сбора излучения Ω , в результате чего при $\Omega \gg \Omega_c$ (Ω_c — телесный угол когерентности, определяющий область фазовых корреляций на фотокатоде) происходит усреднение фазовых флуктуаций и, как следствие, уменьшение гауссовой составляющей в Ω_c/Ω раз. Во-вторых, можно вообще проводить измерение посредством двух фотоприемников, разнесенных на расстояние, большее длины фазовых корреляций. В обоих этих способах используется тот факт, что на больших расстояниях фазовые флуктуации усредняются. Другой подход связан с тем, что иногда можно искусственно изменить время T_c , делая его резко отличным от времени амплитудных флуктуаций T_0 . Один из таких вариантов мы будем обсуждать в гл. 4. Он связан с созданием в образце поперечного градиента скорости, в результате чего гауссову составляющую также удается значительно подавить.

Приведенные здесь качественные рассуждения показывают, что наиболее благоприятные условия для выделения негауссовой составляющей поля на фоне гауссовой возникают тогда, когда наиболее низка степень пространственно-временной когерентности поля. Однако при этом не следует забывать, что негауссова компонента должна быть выделена не только на фоне гауссовой, но еще и на фоне дробовых шумов фотоприемника, которые в некоторых случаях являются доминирующими.

Для оценки относительного вклада всех трех интересующих нас компонент шума обратимся к формулам (7) — (9) для спектра фототока. Подставляя сюда (11) и учитывая, что все источники статистически независимы, получим следующие оценочные формулы: отношение негауссовой составляющей к дробовой определяется величиной

$$\Delta_1 \sim q\varepsilon^2 \frac{I}{N_e} \Omega T_0, \quad (16)$$

а отношение негауссовой составляющей к гауссовой — величиной

$$\Delta_2 \sim \varepsilon^2 \frac{1}{N} \frac{\Omega}{\Omega_c} \frac{T_0}{T_c}; \quad (17)$$

здесь $\varepsilon = \Delta I/I$ — глубина модуляции интенсивности излучения отдельного источника, I — средняя интенсивность излучения отдельного источника в единичный телесный угол, ΔI — амплитуда флуктуации интенсивности отдельного источника.

Формулы (16), (17) позволяют сказать, что реально для наблюдения эффектов негауссости не обязательно стремиться к тому, чтобы число участников в процессе рассеяния частиц было мало. Можно так подобрать геометрию опыта и таким образом сконструировать образец, что величины Δ_1 и Δ_2 станут достаточно большими даже при $N \gg 1$.

Мы здесь все время говорим о выделении интересующего нас эффекта на фоне дробовых и гауссовых шумов излучения, сравнивая их средние величины. Здесь следует отметить, что сами по себе средние значения уровня дробовых и гауссовых шумов не могут быть помехой, так как всегда тем или иным способом могут быть просто вычтены из суммарного сигнала. Однако, проводя измерение конечное время, мы получаем не среднее значение в смысле математического ожидания, а лишь статистическую реализацию этого среднего значения за время наблюдения. Эти реализации флуктуируют вокруг среднего значения, создавая «шум шума», лимитирующую возможности эксперимента. Возникающая таким образом погрешность зависит от среднего значения шума (дробового или гауссова),

времени наблюдения Δt и полосы частот регистрации $\Delta\omega$. Например, отношение сигнала S к шуму N при учете шума дробового фона может быть записано в виде¹⁰

$$\frac{S}{N} \sim \Delta_1 V \sqrt{\Delta\omega \cdot \Delta t}. \quad (18)$$

3. ШУМОВЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ В АТОМНОЙ СПЕКТРОСКОПИИ

Толчком к исследованию эффективности СФИ применительно к задачам атомной спектроскопии послужили работы по квантовым биениям в люминесценции¹¹. Эти работы наглядно показали, что кинетика излучения атомов содержит не только сведения о времени жизни излучающего состояния, но и о его структуре, неразрешимой методами классической спектроскопии вследствие превосходящего допплеровского уширения спектральных линий. Однако кинетические измерения требуют сложной техники селективного импульсного возбуждения атомов, что делало привлекательными поиски других решений. Казалось достаточно очевидным, что кинетика распада возбужденных атомов должна проявиться в спектре шумов люминесценции стационарно возбуждаемого ансамбля атомов. Настоящий раздел посвящен исследованию этой и некоторых других возможностей применения СФИ к задачам атомной спектроскопии.

а) Поиски негауссовойости в спонтанном излучении газовой среды

1. Шумы спонтанного излучения при постоянной интенсивности возбуждения среды. Во всех тех случаях, когда требуется моделировать фотон — продукт элементарного акта излучения атома, он обычно представляется в виде затухающего пуга классических электромагнитных волн. Подобная феноменология до сих пор считалась вполне адекватной и позволяла обходиться без точных квантовоэлектродинамических расчетов. Именно из этого исходили авторы работы¹², когда они предприняли анализ спектра флукутаций мощности (спектра шумов) спонтанного излучения газовой среды. Поле излучения среды было представлено в виде суммы полей от каждого из атомов:

$$E(t) = \sum_i E_i(t) = \sum_i a_i \theta(t - t_i) e^{i\omega_i(t-t_i)-(1/2)\gamma(t-t_i)}, \quad (19)$$

$$\theta(t) = \begin{cases} 0, & t < 0, \\ 1, & t > 0. \end{cases}$$

Мощность излучения $I = |E|^2$ при этом состоит из двух слагаемых, один из которых равно сумме мощностей $I_i = |E_i|^2$ от каждого из атомов:

$$\sum_i I_i(t) = \sum_i |a_i|^2 \theta(t - t_i) e^{-\gamma(t-t_i)}, \quad (20)$$

а другое учитывает интерференцию излучения разных атомов:

$$\sum'_{i,j} E_i(t) E_j^*(t) = \sum'_{i,j} a_i a_j^* \theta(t - t_i) \theta(t - t_j) e^{i(\omega_i - \omega_j)t - \gamma(t_i - t_j) - (1/2)\gamma t + i\Phi_{ij}}. \quad (21)$$

Вклад в спектр флукутаций мощности от первого слагаемого (9) представляет из себя лорензиан на нулевой частоте шириной, равной ширине излучательного состояния атома γ . Вклад от интерференционного члена (21) формируется за счет биений всех компонент допплеровского контура. Он

также центрирован на нулевой частоте, и его ширина равна удвоенной допплеровской (в условиях преобладающего допплеровского уширения).

На наличие широкого спектра «допплеровских» биений в дополнение к дробовым шумам указано уже в работе¹. Новым здесь было предсказание узкого лоренцева пика априори негауссовой природы, однозначно связанного с кинетикой элементарного процесса излучения. В отличие от гауссовой составляющей, плотность избыточных шумов с лоренцевым спектром ожидалась весьма большой и могла сравняться со спектральной плотностью дробовых шумов. Проверить это предсказание экспериментально было важно как с принципиальной стороны, так и ввиду открывающихся новых возможностей для определения атомных констант.

Эксперименты, проведенные в работе¹² (см. также¹³), надежно показали: никакой лоренцевой особенности на нулевой частоте в спектре шу-

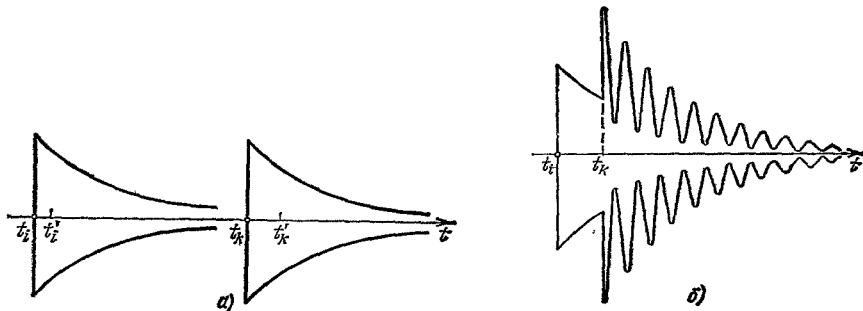


Рис. 1. К объяснению отсутствия следов кинетики спонтанного излучения в спектре флюктуаций интенсивности.

мов спонтанного излучения нет. Тем самым была показана и непригодность для объяснения данного эксперимента традиционного феноменологического описания фотона.

Поясним полученный результат качественно. Представление фотона затухающим цугом классических электромагнитных волн, т. е. физически непрерывным процессом, предполагает возможность сколь угодно детального анализа, что противоречит дискретной стороне природы света. Действительно, фотон представляет собой дискретную порцию энергии, которая целиком реализуется в дискретном событии появления фотоэлектрона. Физические процессы, происходящие при фотогенерации, таковы, что сам по себе этот фотоэлектрон не несет никакой информации о кинетике волнового пакета, описывающего фотон. Во времени фотоэмиссия описывается дельта-импульсом тока, имеющим белый, а потому неинформативный спектр. Так обстоит дело с единичным актом излучения. Учтем теперь, что практически мы имеем дело с излучением множества атомов. Пусть для начала интенсивность возбуждения столь мала, что цуги волн от отдельных атомов во времени не перекрываются. На рис. 1, а показаны огибающие двух цугов электрического поля световой волны, соответствующие возбуждению двух атомов в моменты t_i и t_k . При взаимодействии с фотокатодом в лучшем случае произойдет эмиссия двух фотоэлектронов в моменты t'_i и t'_k . Эти моменты статистически коррелированы с моментами возбуждения t_i и t_k , однако, поскольку последние предполагаются независимыми, то между t'_i и t'_k нет никакой корреляции, т. е. и в этом случае информация о кинетике излучения потеряна. Допустим, наконец, что цуги излучения различных атомов перекрываются во времени (рис. 1, б). В области перекрытия имеется вероятность появления двух фотоэлектронов, рожденных суммарным полем. Рождение первого из них дает начало

отсчета времени, что позволяет установить корреляцию появления второго электрона, которая должна отражать динамику порождающего их поля, в частности экспоненциальное затухание огибающей. В принципе так оно и есть, однако практически эта информация неизвлекаема. Действительно, в области перекрытия вероятность фотоэмиссии испытывает биения во времени с частотой $\omega_1 + \omega_k$, где ω_1 и ω_k — случайные допплеровские частоты излучения двух рассматриваемых атомов *). Экспоненциальный спад, отражающий искомую кинетику элементарного процесса излучения, лишь модулирует эти биения. Это приводит к появлению в шумах широкого спектра, практически неотличного от допплеровского, вместо искомого узкого пика лоренцевой формы.

После того как выяснилась непригодность для объяснения результатов эксперимента классической феноменологии фотона, в той же работе ¹² были предприняты расчеты на основе другой феноменологии, чисто корпкускулярной. Предполагалось, что после возбуждения с задержкой, распределенной по экспоненциальному закону, атом мгновенно испускает частицу — фотон. Такие представления приводили к правильному выводу относительно отсутствия лоренцева максимума в шумах, но, разумеется, не позволяли описать интерференционный гауссов шум, имеющий чисто волновую природу.

Единым образом описать все составляющие шума удается лишь на основе квантовой электродинамики ⁶. Для атомов, возбуждаемых с пуассоновской статистикой, спектр шумов фототока имеет вид

$$i_{\omega}^2 = qF|u(\omega)|^2 \left(1 + \frac{1}{2} q \delta e^{-\omega^2/4\omega_0^2} \right); \quad (22)$$

здесь $u(\omega)$ — частотная характеристика электронного тракта, q — квантовый выход фотоприемника, δ — параметр вырождения, численно равный количеству фотонов, проходящих за время когерентности через площадку когерентности, F — поток фотонов на приемник, ω_0 — допплеровская ширина.

Первое слагаемое в (22) — дробовый шум, второе — избыточный гауссов шум. Для спонтанного излучения в видимой части спектра параметр вырождения δ мал ($< 10^{-3}$), поэтому спектр гауссовых шумов представляет из себя лишь очень слабую особенность на фоне дробовых шумов.

2. Когерентное усиление спонтанного излучения. Экспериментальная ситуация, относящаяся к динамике излучения атомов, для описания которой не удавалось бы ограничиться классической феноменологией, ранее в физике не встречалась. Эта феноменология адекватна при описании регулярных излучателей процессов, таких как квантовые биения, сверхизлучение, эхо и проч. Однако, как оказалось, для изучения флуктуационных процессов классическая модель может быть ошибочной. Рассмотренный нами пример спонтанного излучения газовой среды служит иллюстрацией этого факта. В качестве другого примера приведем проект модификации описанного выше эксперимента по изучению спектра шума спонтанного излучения газовой среды. Дело в том, что отсутствие лоренцева пика избыточных шумов в спонтанном излучении само по себе не отрицает возможности описать атом физически

*). Подчеркнем, что в области перекрытия полей регистрируемые фотонны нельзя приписывать тому или иному атому — это фотонны общего поля, не обладающие определенной энергией. В противном случае вообще нельзя было бы наблюдать биений, так как после регистрации фотона, например, от первого атома с частотой ω_1 остается одночастотное поле второго атома и второй фотон оказывается некоррелированным с первым.

непрерывным процессом испускания внутренне коррелированного дуга электромагнитных волн. Эксперимент¹² показал лишь, что если даже корреляция существует, то она бесследно исчезает при фоторегистрации, т. е. в процессе обмена фотона на фотоэлектрон. Поэтому естественно было в поисках корреляции попытаться «обойти» фоторегистрацию, обратившись к когерентному усилению света. Можно было предполагать, что многократно усиленный первичный волновой пакет мог бы участвовать во многих актах поглощения на фотокатоде, приводя к корреляциям между фотоэлектронами на временах порядка времени жизни атома. Эксперимент по такому проекту был поставлен в работах^{14,15}. Их результаты были в дальнейшем пересмотрены¹⁶ и было показано, что обнаруженные особенности в спектре шумов обязаны своим происхождением преобразованию флуктуаций излучения в резонансной усиливающей среде, а не избыточным корреляциям в первичном излучении. Поэтому наблюдаемая там структура относилась к усиливающей среде, а не к источнику первичного излучения, как ожидалось. Теоретический анализ процесса когерентного усиления¹⁷ показал, что усиление не приводит к появлению корреляций, соответствующих классической модели акта испускания.

Чисто корпускулярный подход в этом случае также оказался неудовлетворительным. С этой точки зрения в результате когерентного усиления должно было бы появиться большое число пар фотонов с нулевой задержкой во времени. В работе¹⁸ описан эксперимент, связанный с поисками избыточных корреляций в излучении после когерентного усиления на нулевых временах. Статистика фотонных совпадений не подтвердила вывода об увеличении числа фотонных пар на нулевых временах, а показала лишь незначительное увеличение числа фотоэлектронных корреляций на времени когерентности первичного излучения. Наблюдавшиеся корреляции соответствовали эффекту типа Хэнбери-Брауна и Твисса, величина которого пропорциональна спектральной яркости и потому возрастает при усилении света. Результаты этой работы также могут быть объяснены на основе работы¹⁷. Таким образом, и в опыте с когерентным усилением фотонов для объяснения спектра шумов обе феноменологии — классическая и корпускулярная — оказались непригодными. Правильные результаты дали только расчеты в рамках квантовой электродинамики.

В заключение этого раздела укажем на работу¹⁹, которая была опубликована уже после работ^{6,12,13}.

Авторы этой работы также проделали расчеты для спектра шумов спонтанного излучения двумя способами: на основе классической феноменологии фотона и на основе квантовой электродинамики. В отличие от результатов работ^{6,12}, у них получилось, что оба подхода дают один и тот же результат, а именно, предсказывают появление лоренцевой особенности в спектре шумов. Причина этого состоит в том, что в работе¹⁹ ошибочно полагается, что спектр шумов определяется коррелятором $\langle I(t) \langle I(t + \tau) \rangle \rangle$ (угловые скобки означают квантовомеханическое усреднение, а черта сверху — усреднение по моментам возбуждения излучающих атомов), а не $\langle I(t) I(t + \tau) \rangle$. В классической электродинамике различия между этими величинами нет, так как нет квантовомеханического усреднения, а в квантовой теории оно во многих случаях и, в частности, для спонтанного излучения очень существенно. Именно это и обсуждается в работах^{6,12}.

3. Преобразование избыточных шумов в возбуждения среды в негауссовость спонтанного излучения. В результате постановки цитированных выше экспериментальных и теоретических работ можно полагать, что имеются убеди-

тельные доказательства того, что в спектре шумов спонтанного излучения газовой среды, атомы которой возбуждаются с пуассоновской статистикой, т. е. совершенно независимо друг от друга и равновероятно во все моменты времени, нет особенностей, связанных с кинетикой излучения. Положение меняется, если статистика возбуждения среды становится отличной от пуассоновской. Это, например, вполне очевидно для случая импульсного возбуждения (т. е. предельно непуассоновского), после которого интенсивность спонтанного излучения затухает по экспоненциальному закону. Вопрос о шумах спонтанного излучения при произвольной статистике возбуждения впервые был рассмотрен в работе¹², где было показано, что негауссовость шума появляется в мере отклонения статистики возбуждения атомов от пуассоновской. Расчеты в¹² проведены на основе корпускулярных представлений о фотоне, вследствие чего не могла быть учтена гауссова (как правило, очень малая) составляющая шума, имеющая чисто волновую природу. Полное выражение, учитывающее и волновые, и корпускулярные свойства излучения, было получено в⁶ методами квантовой электродинамики. Оно имеет вид

$$i_{\omega}^2 = qF|u(\omega)|^2 \left(1 + q \frac{\Omega}{4\pi} \frac{M_{\omega}^2}{\bar{M}} \frac{\gamma^2}{\gamma^2 + \omega^2} + \frac{1}{2} q \delta e^{-\omega^2/4\omega_0^2} \right). \quad (23)$$

Эта формула отличается от (22) наличием второго слагаемого, содержащего произведение спектра мощности процесса, описывающего кинетику спонтанного распада (лоренциан с шириной γ), и спектра мощности M_{ω}^2 флюктуации интенсивности возбуждения со средней интенсивностью \bar{M} . Величина этого слагаемого зависит также от квантового выхода q приемника и от телесного угла Ω сбора света. При выводе этой формулы случайное распределение актов возбуждения в окрестности каждого момента времени t аппроксимировалось пуссоновским процессом с интенсивностью M , которая, однако, является функцией времени (случайной или детерминированной), т. е.

$$M_{\omega}^2 = \int_{-\infty}^{\infty} \langle \bar{M}(t) \bar{M}(t+\tau) \rangle e^{i\omega\tau} d\tau. \quad (24)$$

В соответствии с (23) флюктуации мощности возбуждения перерабатываются в избыточные шумы спонтанного излучения, несущие информацию об атомной константе γ . Если интенсивность в указанном смысле не зависит от времени, т. е. флюктуации носят чисто пуссоновский характер, то $M_{\omega}^2 \sim \delta(\omega)$ и кинетика спонтанного распада не проявляется в спектре шумов.

В общем случае кинетика спонтанного излучения может отличаться от экспоненциальной и содержать биения на частотах расщепления верхнего уровня во внешних и внутриатомных полях (зеемановская и штарковская структуры, тонкое и сверхтонкое расщепление). Для их анализа в шумах нужно, очевидно, чтобы спектр флюктуаций возбуждения M_{ω}^2 и спектральная характеристика приемника $u(\omega)$ перекрывали ширину исследуемой структуры.

Эксперименты по демонстрации характеристической фильтрации шума возбуждения были описаны в работах^{12,13}. В одном из опытов атомы ртути возбуждались электронным пучком, плотность которого модулировалась генератором широкополосного шума. В другом — населенность возбужденного состояния атомов ксенона модулировалась при насыщении перехода сильно шумящим вырожденным излучением однопроходного

лазера. В обоих случаях в спектре шумов спонтанного излучения был зарегистрирован пик лоренцевой формы с шириной, определяемой временем жизни возбужденного состояния. Во втором случае это время оказалось больше естественного за счет процессов пленения резонансного излучения.

б) Спектроскопия шумов света, зондирующуюю атомную среду

В рамках традиционной спектроскопии существует ряд методов исследования: изучаются спектры флуоресценции, спектры поглощения, спектры рассеяния и преломления. Аналогичная картина складывается и в СФИ: кроме шумов флуоресценции, рассмотренных нами в предыдущем разделе, можно исследовать шумы поглощения, т. е. шумы света, прошедшего через исследуемую поглащающую среду, а также шумы рассеянного и преломленного света. Кроме того, поскольку в СФИ изучается интерференция двух полей, возможны комбинированные варианты, например, можно изучать биения света, прошедшего через среду, с рассеянным ею. Из всего этого многообразия возможностей к настоящему времени реализованы две: проведено исследование шумов поглощения газовой среды²⁰ и наблюдались магнитные резонансы в спектре шумов преломления газа²¹. Оба эксперимента объединены теорией, развитой в работе²².

Работы^{20,21} явились логическим развитием описанных выше поисков негауссовой составляющей в спонтанном излучении. Как уже говорилось, их основным результатом было то, что в процессе фоторегистрации внутренняя динамика атома проявиться не может (если только нет корреляции возбуждения разных атомов), так как при обмене фотона на фотоэлектрон происходит необратимое разрушение состояния поля и внутренняя скоррелированность элементарного акта спонтанного излучения в подобном опыте не может быть обнаружена. Положение меняется, если применить методику зондирования состояния атома внешним излучением. За время своего дрейфа через поперечное сечение луча каждый отдельный атом может успеть дважды рассеять внешнее излучение. При этом, если после первого акта рассеяния атом не полностью «забывает» о своем исходном состоянии, то в меру этой «памяти» второй рассеянный фотон будет скоррелирован с первым и эта скоррелированность, разумеется, может быть обнаружена в процессе фоторегистрации. Таким образом может быть исследована внутренняя динамика отдельного атома, а значит, и ансамбля независимых атомов.

1. Флуктуации поглощения. Описанную процедуру зондирования непросто продемонстрировать применительно к возбужденным короткоживущим состояниям атомов. Действительно, для этого необходимо выполнение двух условий, которые трудно осуществить в этом случае. Во-первых, нужно весьма мощное зондирующее излучение, чтобы атом мог успеть несколько раз возбудиться за время жизни исходного состояния атома. Во-вторых, для того чтобы структура, соответствующая исходному уровню, не оказалась «засоренной» структурой другого уровня (зондирующее поле взаимодействует с двумя уровнями перехода, которому оно резонансно), необходимо, чтобы этот неинтересный для нас уровень был бы еще более короткоживущим. Однако, если исследуемое состояние основное или метастабильное, то эти условия могут быть легко выполнены. В первом опыте²⁰ исследовались флуктуации поглощения из основного состояния атомного пара, вызванные флуктуациями числа атомов в зондирующем луче. Распаду состояния соответствовал диффузионный выход атома из светового луча.

Флуктуации интенсивности прошедшего света пропорциональны самой интенсивности. Искомые флуктуации должны наблюдаться на фоне дробовых, пропорциональных корню из интенсивности, поэтому целесообразно наращивать интенсивность зондирующего света, ограничиваясь областью возникновения нелинейных эффектов, которых разумно избегать, чтобы не усложнять картину. С этой же целью следует исключить эффекты оптической накачки. Этим условиям удалось удовлетворить, используя в качестве зондирующего неполяризованное излучение газоразрядной лампы. По достижимой интенсивности такая лампа далека от оптимума, однако она обладает достоинством очень низкого уровня шумов, которые по мощности близки к дробовым в области частот от десятков герц и выше.

В эксперименте слой паров калия с оптической плотностью для резонансного излучения порядка 1 в смеси с аргоном (~ 10 торр) просвечивался узким пучком неполяризованного света калиевой лампы. Пропущенный свет регистрировался фотодиодом, ток которого подвергался спектральному анализу в области низких частот. Специальные калибровочные измерения были проделаны для учета возможного отклонения собственных шумов лампы от уровня дробового шума в области низких частот — эти отклонения оказались незначительными.

Свет, прошедший через кювету с парами $K + Ag$, обнаружил характерный подъем шумов в области низких частот. Избыточная составляющая шума была примерно равна фону дробового шума, что согласовывалось с оценками²⁰ и теоретических работ^{22,23}. На рис. 2 воспроизведены экспериментальные результаты работы²⁰. Точки соответствуют частотной зависимости превышения спектральной плотности шума над дробовыми. Сплошная кривая представляет расчетный лоренцев спектр шума с временем корреляции $4,5 \cdot 10^{-3}$ с (в оригинале²⁰ в этом месте ошибка). Это время совпадает по порядку величины с оценкой времени диффузии атома калия в аргоне через сечение светового пучка.

В контролльном эксперименте с кюветой, содержащей пары калия без буферного газа, шумы прошедшего света не отличались от дробовых. Так и ожидалось, поскольку в этом случае ширина спектра избыточных шумов должна быть порядка на два больше (время пролета атома через луч порядка 10^{-5} с) и во столько же раз меньше спектральная плотность избыточного шума.

Проведенный эксперимент продемонстрировал принципиальную возможность шумового анализа состояния полностью хаотического ансамбля атомов. Этот опыт стимулировал постановку дальнейших, более содержательных экспериментов, описанных в следующем параграфе. Что касается открывшейся возможности оптической регистрации динамики статистического движения атомов, то, по-видимому, она представляет некоторый практический интерес в связи с задачами изучения диффузии и самодиффузии газов. Хотя наблюдавшийся эффект был невелик, однако он может быть на порядки увеличен применением в качестве зондирующего излучения лазерного. Обнаруженные флуктуации поглощения газа следует, кроме того, принимать во внимание в качестве источника шумов в устрой-

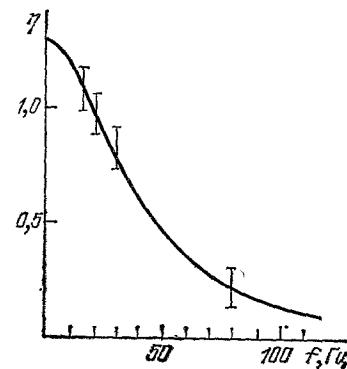


Рис. 2. Относительное превышение спектральной плотности шума света, зондирующего атомный пар, над уровнем дробовых шумов в функции частоты.

ствах, использующих дискриминаторы оптических и радиооптических резонансов, таких как стандарты частоты на щелочных атомах с оптической накачкой или лазерные оптические стандарты частоты. В последнем случае эти шумы могут быть особенно значительны. Борьба с шумами поглощения может вестись путем правильного выбора частот обработки полезных сигналов.

2. Зондирование в полосе прозрачности — флукутации и преломление. Все исследования СФИ в применении к атомным системам были подчинены честолюбивой цели: извлечение из шумов излучения сведений о внутренней динамике атомных состояний при их полной неупорядоченности. Успех, достигнутый на этом пути в последнем эксперименте, вызывал лишь частичное удовлетворение, поскольку полученные в нем сведения о трансляционном движении атомов весьма далеки от того набора атомных характеристик (структура уровней, времена релаксации компонент матрицы плотности), которые вызывали первоначальный интерес. Это чувство неудовлетворенности определило направление дальнейших усилий. Была поставлена задача обнаружения методами СФИ хаотической ларморовской прецессии парамагнитных атомов в магнитном поле.

Ларморовская прецессия магнитного момента является классическим описанием когерентности магнитных подуровней парамагнитной частицы. Для ансамбля частиц, находящихся в тепловом равновесии, все виды когерентности в среднем равны нулю, однако это верно с точностью до флюктуаций. Поясним это на примере поперечной составляющей намагченности парамагнетика, помещенного в магнитное поле. В результате конкуренции тепловой энергии частицы и ее энергии взаимодействия с полем устанавливается равновесная стационарная намагченность вдоль внешнего поля. Любые же ориентации поперечной составляющей момента в силу симметрии равновероятны, и потому средняя поперечная намагченность равна нулю. Однако компенсация отдельных микромоментов неидеальна, и в любой момент времени должна существовать некоторая случайно ориентированная поперечная намагченность, разумеется, малая в меру действия закона больших чисел. Эта малая намагченность должна прецессировать во внешнем поле с характерной частотой магнитного расщепления уровней.

Такая прецессия может быть в принципе обнаружена по появлению модуляции поглощения циркулярно поляризованного света, направленного поперек магнитного поля. Этот метод диагностики регулярной прецессии спинов хорошо известен в технике оптической ориентации атомов²⁴, где он применяется для регистрации магнитного резонанса.

Однако, в отличие от флюктуаций населения, возможность шумовой регистрации хаотической прецессии представлялась не столь очевидной. Ключевым по-прежнему остается вопрос о возмущающей роли измерительного акта. При регистрации факта присутствия атома в пучке возбуждение светом никак не могло вывести его из пучка (импульс отдачи ввиду малости можно не рассматривать) и тем самым разрушить его пространственное состояние. При регистрации же ориентации атома в пространстве рассеяние фотона может изменить ориентацию, т. е. разрушить состояние; во всяком случае возможна частичная потеря «памяти» атомом исходного состояния. Подобного рода качественные соображения обратили внимание авторов работы²¹ на возможность исследования ансамбля в полосе прозрачности — по шумам преломления. Поскольку преломление не сопровождается реальными переходами атомов, то можно было полагать, что такая измерительная процедура будет неразрушающей.

Приведенные рассуждения, разумеется, не могут претендовать на доказательность, их следует рассматривать как наводящие, проверяя их с помощью последовательной квантовой теории. Такая проверка была осуществлена в работе ²², которая подтвердила оценки, основанные на полуклассической модели ансамбля прецессирующих моментов ²¹. Теория внесла ясность и в вопрос о возможности регистрации прецессии по поглощению света. К нему мы вернемся ниже, а пока обратимся к описанию эксперимента ²¹.

В качестве объекта были выбраны пары натрия в слабом магнитном поле порядка 2 Э. Пары просвечивались попоперек магнитного поля линейно поляризованным светом лазера, настраиваемого в окрестности резонансных линий Na (рис. 3). Для регистрации прецессирующей намагниченности использовался парамагнитный эффект Фарадея — поворот плоскости поляризации света, проходящего через намагниченную среду.

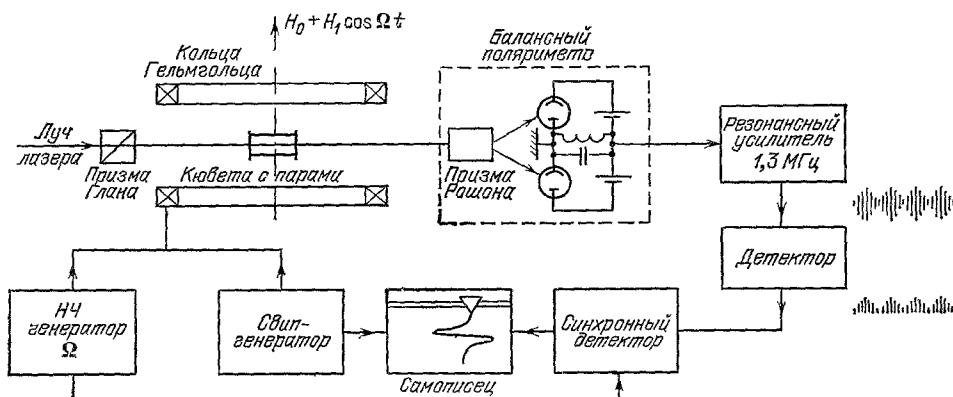


Рис. 3. Схема экспериментальной установки по наблюдению магнитного резонанса в спектре шумов фарадеевского вращения.

Поворот пропорционален проекции намагниченности на луч света. Прецессия намагниченности должна была привести к периодическому покачиванию плоскости поляризации с частотой Лармора, что с помощью анализатора превращается в периодическое изменение интенсивности прошедшего света.

Сигнал фотоприемника усиливался резонансным усилителем с фиксированной частотой настройки (1,3 МГц). Положение искомого пика шумов определялось сканируемым магнитным полем. Сигнал после резонансного усилителя детектировался, усиливался по низкой частоте и вторично синхронно детектировался в фазе с модуляцией магнитного поля.

Простые оценки ²¹ показали, что ожидавшийся магнитный максимум в спектре шумов должен быть примерно равен дробовому шуму.

Примеры записей полученных сигналов представлены на рис. 4. Четкий сигнал резонансного возрастания плотности шума на частоте 1,3 МГц наблюдался около расчетного значения напряженности магнитного поля 1,85 Э в диапазоне плотностей паров натрия $10^{12} - 10^{14} \text{ см}^{-3}$. Мощность сигнала возрастила с приближением частоты лазера к линиям поглощения натрия. Сигнал уверенно наблюдался и в области заведомой прозрачности, например, при установке линии лазера между резонансными линиями натрия, т. е. на расстоянии 3 Å от линий поглощения. В области прозрачности сигнал линейно изменялся с мощностью лазерного излучения. Во всех

случаях ширина резонанса (порядка 20 кГц) определялась полосой резонансного усилителя, что укладывалось в оценки времени фазовой релаксации натрия, учитывающие пролетные времена и межатомные столкновения.

Осуществленный эксперимент демонстрирует существенно новый подход к магнитно-резонансным исследованиям. На опыте фактически наблюдался магнитный резонанс атомов натрия, но при весьма необычных условиях: во-первых, не применялись высокочастотные поля для индуцирования резонанса (этот резонанс можно было бы назвать спонтанным); во-вторых, для его наблюдения не требовалась магнитная поляризация вещества, существенно необходимая для образования сигнала обычного магнитного резонанса. Это обстоятельство сразу указывает на круг задач,

где новая техника может оказаться предпочтительнее традиционных методов ЭПР. Сигнал ЭПР по интенсивности пропорционален произведению $N\gamma H/kT$, где N — полное число парамагнитных центров в резонаторе спектрометра, γH — энергия расщепления магнитных подуровней в поле напряженностью H , kT — тепловая энергия (предполагается, как обычно, что $\gamma H \ll kT$). Сигнал ЭПР стремится к нулю с ростом температуры и с уменьшением напряженности поля. Сигнал шумового резонанса пропорционален \sqrt{N} и в области $\gamma H \ll kT$ вообще не зависит ни от температуры, ни от напряженности поля. Поэтому шумовая методика может оказаться назаменимой при высокотемпературных исследованиях парамагнитной релаксации, а также в условиях, когда полное количество частиц N оказывается аномально малым.

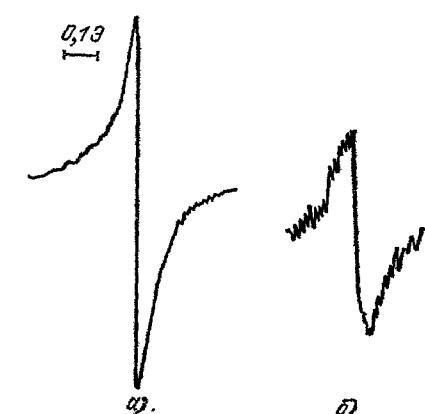


Рис. 4. Сигналы магнитного резонанса в шумах фарадеевского вращения.
(a)

Зондирующее излучение настроено на край линии поглощения D_1 натрия (a), в промежутке между линиями поглощения D_1 и D_2 (b).

Заметим попутно, что, помимо наблюдения флюктуаций поперечной намагниченности, тем же методом (направляя луч света вдоль магнитного поля) можно регистрировать и спектр флюктуаций продольной намагниченности. По-видимому, такие исследования могут оказаться перспективными для изучения зависимости времен продольной релаксации от внешних факторов в конденсированных средах.

3. Обсуждение характеристической структуры спектра шумов и ее связи с кинетическими процессами в среде. В эксперименте²¹ была использована частная схема наблюдения, продиктованная качественными соображениями о природе эффекта. Теория²² не только подтвердила эти качественные соображения, но и дает возможность проследить за эффектом при произвольных поляризации и направлении зондирующего луча и типа анализатора.

Теоретическая формула, определяющая информативную негауссову часть спектра фототока при зондировании в зоне прозрачности вещества, имеет следующий вид:

$$i_{\omega}^2 \sim \sum_{\kappa=0, 1, 2} \sum_{q=-\kappa}^{\kappa} I_0 \left(\frac{\Phi}{\sqrt{N}} \right)^2 \left\{ \begin{smallmatrix} 1 & 1 & \kappa \\ j & j & j_1 \end{smallmatrix} \right\}^2 Z^{\kappa q} (\mathbf{e}_0, \mathbf{e}_{\kappa}) g_{\kappa q} (\omega); \quad (25)$$

здесь I_0 — полная мощность зондирующего света на фотоприемнике, ϕ — полный набег фазы света в среде на слое l , N — число атомов в основном состоянии в объеме зондирующего луча, $\{\dots\}$ — $6j$ -символ, j и j_1 — моменты основного и возбужденного состояний атома.

Зависимость сигнала от поляризационных условий облучения и наблюдения, а также от направления постоянного магнитного поля выражается величиной

$$Z^{\kappa q}(\mathbf{e}_0, \mathbf{e}_H) = |(\mathbf{e}_0, \mathbf{e}_H)^* \sum_{\mu, \mu'} C_{1\mu, 1\mu'}^{\kappa q} e_{0\mu} e_{H\mu'} - (\mathbf{e}_0 \neq \mathbf{e}_H)|^2; \quad (26)$$

$C_{1\mu, 1\mu'}^{\kappa q}$ — коэффициенты Клебша — Гордана, \mathbf{e}_0 и \mathbf{e}_H — единичные векторы поляризации облучения и наблюдения, компоненты которых $e_{0\mu}$ и $e_{H\mu'}$ задаются в системе координат, в которой ось z направлена вдоль магнитного поля.

Каждая компонента κ дает свой вклад в спектр шумов. Форма этого вклада определяется величиной

$$g_{\kappa q}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{1}{\sigma(\tau) + S} \cos \Omega q \tau e^{-\gamma_{\kappa}|\tau| + i\omega\tau} d\tau; \quad (27)$$

Ω — частота магнитного расщепления основного состояния, γ_{κ} — константы затухания основного состояния, определяемые процессами столкновения с атомами буферного газа, S — поперечное сечение зондирующего луча, $\sigma = (ut)^2$, если длина свободного пробега велика по сравнению с поперечным размером светового луча (u — среднеквадратичная тепловая скорость), $\sigma = a |\tau|$, если длина свободного пробега мала по сравнению с поперечным размером луча (a — коэффициент диффузии).

Как видно, форма спектральных компонент довольно сложная определяется всеми возможными процессами спиновой релаксации, как уже указывалось выше.

Связывая с каждой из $\kappa = 0, 1, 2$ свой флукуационный процесс в среде, можно видеть, что флукуации выстраивания ($\kappa = 2$) могут дать вклад в нулевую частоту и частоты Ω и 2Ω , флукуации ориентации ($\kappa = 1$) — в нулевую частоту и Ω , а флукуации населенности ($\kappa = 0$) вклада вообще не дают, так как $Z^{00} = 0$, что понятно и из общефизических соображений для варианта зондирования в зоне прозрачности.

Вклад различных компонент $g_{\kappa q}(\omega)$ зависит от конкретных условий эксперимента. Например, для условий опыта ²¹, когда наблюдение и облучение велось в линейных поляризациях, а магнитное поле было поперечным, оказывается отличным от нуля только один коэффициент $Z^{11} = (1/4) \sin^2 \phi$, ϕ — угол между поляризациями облучения и наблюдения. Таким образом, вклад в спектр шума дают только флукуации ориентации ρ_1^1 , а точнее та часть ориентации, которая связана с когерентностью между соседними зеемановскими подуровнями. При этом возникает резонанс на частоте Ω . Подобный результат вполне согласуется как с качественными обсуждениями, так и с результатами эксперимента. Если же изменить магнитное поле на продольное, то становится отличным от нуля другой коэффициент $Z^{10} = (1/2) \sin^2 2\phi$, и мы должны сделать вывод, что в этом случае должен появиться пик на нулевой частоте и он связан с флукуациями ориентации ρ_0^1 , т. е. с флукуациями населеностей зеемановских подуровней. Возможны и другие варианты эксперимента. Например, можно регистрировать интенсивность циркулярной составляющей поляризации прошедшего света при облучении плоской поляризацией и т. п. Приведенные выражения охватывают все возможные модификации.

В работе ²² наряду с формулами для спектра фототока (25) для зондирования в зоне прозрачности вещества получены и формулы для зондирования в полосе поглощения. Они оказались очень похожими на (25), в которой следует только заменить набег фазы ϕ на средний (по спектру зондирующего луча) коэффициент поглощения среды. Кроме того, в выражении для Z^{qg} разность под знаком модуля надо заменить на сумму. При этом Z^{00} становится отличным от нуля, т. е. в спектр шумов начинает давать вклад флуктуации полной населенности уровня. Для случае неполяризованного света результаты по облучению в полосе поглощения совпадают с результатами феноменологического рассмотрения ²³ и эксперимента ²⁰.

При постановке эксперимента ²¹ вариант зондирования вещества в его области прозрачности казался предпочтительным, поскольку именно в этом случае можно было надеяться на сохранение атомом «памяти» о своем исходном состоянии после процесса рассеяния. С этой точки зрения вариант зондирования в полосе поглощения представлялся совершенно иным, поскольку в этом случае мера памяти определялась, помимо всего прочего, еще и верхним состоянием атома, на котором (в отличие от первого варианта зондирования) последний находился реально. Например, казалось очевидным, что если верхнее состояние сферически симметричное с моментом $j = 0$, то атом, побывав на таком уровне, совершенно «забывает» о симметрии исходного уровня. В действительности же никаких принципиальных различий в процессе рассеяния в любом резонансном варианте зондирования (т. е. до тех пор, пока отклонение частоты облучения от частоты атомного перехода не становится одного порядка с частотой облучения) нет. Можно выделить при не слишком мощных зондирующих полях два простейших механизма рассеяния. Один связан с возбуждением в промежуточном состоянии дипольного момента атома и его последующим излучением. В этом случае атом реально не возбуждается на верхний уровень (двухквантовое рассеяние). Другой механизм связан с возбуждением атома на верхний уровень и с последующим спонтанным распадом этого уровня (двухступенчатое рассеяние). При облучении в зоне прозрачности заселение верхнего уровня не производится при полях практически сколь угодно большой мощности. Поэтому в этом случае вклад в общую картину рассеяния от двухступенчатого пренебрежимо мал и его можно не учитывать. При зондировании же в области поглощения верхний уровень довольно легко заселяется и вклад от двухступенчатого рассеяния может стать значительным. Однако, если углы сбора излучения делать возможно малыми, то этот вклад также становится малым по сравнению с вкладом от двухквантового процесса, так как индикатриса рассеяния последнего целиком связана с расходностью зондирующего луча, а индикатриса рассеяния двухступенчатого процесса совпадает с индикатрисой спонтанного излучения с верхнего уровня, которая обычно гораздо шире. Таким образом, теория ²² показала возможность появления характеристической структуры в спектрах шумов прошедшего через среду излучения в обоих рассмотренных вариантах зондирования, не обнаружив между ними никакой принципиальной разницы.

Сделаем еще одно замечание относительно роли света в процессе формирования негауссовых шумов. При качественных рассуждениях, предположенных эксперименту, полагалось, что роль света сводится только к тому, что посредством его детектируются собственные флуктуации среды (passivная роль света). Состояние среды может быть описано в терминах неприводимых тензорных операторов

$$\rho_q^x(t) = \rho_q^{-x} + \delta\rho_q^x(t),$$

где величины $\delta_q\%$ описывают собственные флуктуации населения ($\chi = 0$), ориентации ($\chi = 1$) и выстраивания ($\chi = 2$) уровня, возникающие из-за статистичности ансамбля атомов. Тот или иной вариант зондирования позволяет детектировать соответствующий тип флуктуации среды.

В то же время квантовомеханический расчет утверждает активную роль света, а именно, существенным является тот факт, что между двумя последовательными актами рассеяния атом может находиться в состоянии, хотя и однозначно связанном с исходным, но все-таки отличном от него. Можно указать пример, когда эти два подхода дадут прямо противоположные результаты. В случае, когда из всех магнитных подуровней заселен только один (что возможно, например, вследствие «вымораживания» системы, когда $kT \ll \hbar\Omega$), флуктуации матрицы плотности, надо полагать, отсутствуют, а потому в соответствии с пассивной концепцией света надо ожидать, что никаких характеристических флуктуаций обнаружено не будет. Квантовомеханический же расчет (т. е. концепция активного света) предсказывает флуктуации и в этом случае, причем для спина 1/2 с той же интенсивностью, как и в случае равенства населенностей обоих подуровней. Подобная ситуация возникла не в первый раз. Так, при описании рассеяния Мандельштама — Бриллюэна также применялся двойственный подход. С одной стороны, рассматривалось рассеяние света на независимо существующих звуковых волнах; с другой стороны, с точки зрения квантовой теории полагалась возможность возбуждения звуковых волн в акте рассеяния света. Как и в нашем случае, оба подхода приводят к одному и тому же результату в высокотемпературном пределе $kT \gg \hbar\Omega$.

В заключение этого раздела укажем на возможность иного равноправного подхода к истолкованию магнитного резонанса в шумах циркулярного двупреломления. Его можно трактовать как результат интерференции исходного света лазера со светом, претерпевшим комбинационное рассеяние в парах натрия с переворотом спина. Этот подход детально рассмотрен в работе⁵⁵. С этой точки зрения обсуждаемая работа²¹ оказывается в близком родстве с исследованиями бриллюэновского рассеяния на толуоле (3,56), на ксеноне (3,57). И в том и в другом случае наблюдаемые резонансы — следствие комбинационного рассеяния. В то же время в информативном плане эти работы разные, поскольку в одном случае речь идет о внутриатомной кинетике, а в другом — о коллективном поведении вещества. Уместно также указать и на сходство работы²¹ с прямыми оптическими исследованиями комбинационного рассеяния с переворотом спина⁵⁸, в которых по существу также наблюдался «спонтанный» магнитный резонанс в указанных выше необычных условиях. Различия двух этих вариантов нового подхода к изучению магнитного резонанса сводятся к различию между методами обычной спектроскопии и СФИ.

4. О нелинейных процессах формирования характеристических шумов зондирующего излучения. Итак, при зондировании невозбужденных атомных паров в спектре шумов прошедшего света возникает характеристическая структура, имеющая негауссову природу, обвязанную своим происхождением флуктуациям параметров среды, никак не зависящих от зондирующего света (при достаточно больших тепловых энергиях kT). Подобный процесс будем называть *линейным* в противоположность *нелинейному*, при котором имеется то или иное влияние исходного света на среду. Понятие нелинейности в рамках СФИ несколько шире, чем в рамках традиционной спектроскопии.

Так, например, сильно вырожденное зондирующее излучение может иметь довольно маленькую среднюю мощность, определяя чисто линейные явления в традиционной спектроскопии, и мощные флуктуации, которые приводят к возникновению наведенных флуктуаций параметров среды, которые в свою очередь окажут влияние на шумы исходного излучения.

В настоящее время достаточно подробно проанализированы теоретически и частично экспериментально три задачи.

1. Линейное зондирование невозбужденной среды²⁰⁻²³ (уже обсужденное нами).

2. Нелинейное зондирование «белым» электромагнитным шумом возбужденной среды^{16, 28}.

3. Нелинейное зондирование монохроматической электромагнитной волной возбужденной среды^{31, 32}.

Эти задачи, хотя и простейшие по своей постановке из всех возможных, отражают наиболее типичные экспериментальные ситуации и в конечном счете хорошо демонстрируют возможности СФИ. В то же время в них выявляются три различных механизма формирования характеристики в шумах, которые мы сейчас коротко опишем. Зондирование невозбужденной среды (задача 1) всегда может быть сделано линейным, т. е. независимым от свойств исходного света. Для появления нелинейности можно увеличивать среднюю мощность исходного света, и тогда в спектре шумов появятся поправки, малые по сравнению с линейными. Более интересным представляется использовать в качестве зондирующего сильно вырожденное излучение с небольшой средней мощностью, но сильно флуктуирующее (задача 2). Тогда возникнут наведенные флуктуации параметров среды, которые могут стать значительно большими собственных тепловых флуктуаций и тем самым полностью определять окончательный эффект. В этом случае характер возбуждения среды важен только в плане чувствительности среды к внешнему воздействию. Эффект будет минимальным, если разность населенностей уровней исследуемого атомного перехода окажется равной нулю, так как при этом среда становится прозрачной и ее параметры «раскачать» непросто.

Иного sorta нелинейность возникает, когда монохроматической волной зондируется возбужденная среда (задача 3). В этом случае за счет атомов, находящихся на нижнем уровне, происходит линейное запламление (в соответствии с задачей 1), а вот процесс запламления атомами на верхнем уровне в том же порядке теории возмущений не может быть объяснен в рамках линейных представлений и объясняется наличием в среде комбинационной связи между волнами разных частот³⁰ в присутствии сильной электромагнитной волны. Величина нелинейного эффекта становится того же порядка малости, что и линейного, если оба уровня заселены приблизительно одинаково, что может иметь место, например, для двух возбужденных уровней.

Отметим еще раз, что в обеих задачах с нелинейным зондированием речь идет не о поправках к линейным эффектам, а об эффектах того же порядка или даже преобладающих.

Рассмотрим все эти явления на простой формальной схеме, чтобы лучше понять, за счет каких корреляций в разных случаях формируется полезный сигнал. Положим, что мгновенная интенсивность прошедшего среду света $I(t)$ может быть представлена в виде

$$I(t) = I_0(t) + \delta I(t); \quad (28)$$

I_0 — интенсивность исходного света, δI — добавка, связанная со средой.

Запишем среднее произведение интенсивностей $G = \langle I(t) I(t') \rangle$

$$\left. \begin{aligned} G &= G_0 + G_1 + G_2, \\ G_0 &= \langle I_0(t) I_0(t') \rangle, \\ G_1 &= \langle I_0(t) \delta I(t') \rangle + \langle I_0(t') \delta I(t) \rangle, \\ G_2 &= \langle \delta I(t) \delta I(t') \rangle, \end{aligned} \right\} \quad (29)$$

которое, как мы знаем, определяет избыточный шум (гауссов и негауссов). Величина G_0 определяет шум исходного света, а G_1 и G_2 так или иначе связаны с влиянием среды.

Если флюктуации исходного света малы, то они не могут привести к появлению наведенных флюктуаций в среде, а потому I_0 и δI надо считать в этом случае статистически независимыми, что делает величину $\sim G_1$ неинтересной, так как при факторизации в ней средних она может дать вклад только в постоянную составляющую шума. Эффект же зашумления определяется средним $\langle \delta I \cdot \delta I \rangle$. Если иметь в виду равенство для напряженностей

$$E(t) = E_0(t) + \delta E(t), \quad I = |E|^2, \quad I_0 = |E_0|^2, \quad (30)$$

которое надо писать одновременно с (28), то основными составляющими в среднем $\langle \delta I \cdot \delta I \rangle$ являются $\langle E_0^* E_0 \delta E^* \cdot \delta E \rangle$ и $\langle E_0^* E_0^* \delta E \cdot \delta E \rangle$. Причем для атомов на нижнем уровне они выражаются через тепловые флюктуации параметров среды, т. е. определяют линейные явления, при которых свет является зондом, фиксирующим эти флюктуации и не возмущающим среду. Но вот для атомов на верхнем уровне среднее $\langle E_0^* E_0^* \delta E \cdot \delta E \rangle$ можно трактовать только с точки зрения появления нелинейной комбинационной связи, т. е. за счет изменения кинетики среды под влиянием внешнего поля.

При больших флюктуациях исходного поля величины I_0 и δI перестают быть статистически независимыми, так как появляются наведенные δI . При этом основной вклад в характеристические шумы будет давать величина G_1 . Таким образом, при этом полезный сигнал формируется из-за скоррелированности вторичного свечения с исходным.

Отметим, что характеристическая структура в спектрах шумов не всегда в нелинейных задачах связана с негауссовостью. Например, при зондировании монохроматическим светом подобная структура появляется уже и в традиционном спектре I_0 ²⁵⁻²⁷, т. е. в гауссовой составляющей.

В цитированных в этой главе работах обсуждаются в основном варианты зондирования газовых сред не слишком мощными внешними полями. Насыщающие свойства зондирующих полей могут внести новые элементы в механизмы формирования как гауссовых, так и негауссовых компонент шума. Мы не будем здесь обсуждать этого вопроса, а лишь укажем на некоторые из работ³³⁻³⁷, посвященных ему.

* * *

Все сказанное в этом разделе показывает плодотворность СФИ как источника информации о динамике состояний квантовых объектов. Попытку, однако, эта информация может быть, как правило, получена другими методами, имеет смысл указать условия, при которых новый подход оказывается предпочтительным. Конкурирующие методы спектроскопии (магнитный резонанс, методы интерференции состояний, нелинейной лазерной спектроскопии²⁹) основаны на регистрации коллективных

(когерентных) откликов системы частиц на внешнее воздействие. Амплитуды этих откликов пропорциональны концентрации частиц N_0 . В методах СФИ наблюдаемыми величинами служат флуктуационные отклонения параметров системы, характерные величины которых пропорциональны $\sqrt{N_0}$. Поэтому при больших значениях N_0 шумовые сигналы, как правило, будут обладать много меньшей мощностью, чем отклики на регулярные воздействия. Таким образом, когда применимы регулярные методы спектроскопии сверхвысокого разрешения, им следует отдавать предпочтение *).

Однако возможны ситуации, когда необходимая для применения регулярных методов упорядоченность не может быть внесена в систему или соответствующее вмешательство нежелательно. Например, объект исследования может быть недоступен — таковыми являются астрофизические объекты. Другим примером может служить рассмотренное выше применение СФИ в исследованиях парамагнитного резонанса. С уменьшением напряженности магнитного поля, так же как и с увеличением температуры, регулярный сигнал ЭПР падает, в то время как шумовой сигнал от этих переменных вообще не зависит и при определенных условиях может оказаться превосходящим. Кроме того, методы спектроскопии шумов позволяют изучать систему в условиях полной неупорядоченности исследуемого состояния, что также может быть важным обстоятельством при постановке специальных исследований.

4. ЭФФЕКТЫ НЕГАУССОВОСТИ ПРИ РАССЕЯНИИ СВЕТА НА МАКРОЧАСТИЦАХ В РАСТВОРЕ

Как упоминалось во введении, наиболее широкое распространение СФИ приобрела в исследованиях движения частиц в жидкостях и газах. Такие исследования преследуют различные цели — изучение поля скоростей жидкостных или газовых потоков, измерение коэффициентов диффузии частиц, изучение активной подвижности микроорганизмов и т. п. Во всех этих задачах измеряется уширение и смещение линии лазерного излучения при его рассеянии на движущихся частицах, т. е. СФИ используется в качестве спектроскопии сверхвысокого разрешения для получения информации о спектре света либо с помощью гетеродинирования, либо (при обычно имеющей место гауссовости статистики регистрируемого излучения) непосредственно по спектру флуктуаций интенсивности. В приложении к изучению макрочастиц в растворах СФИ является в настоящее время наиболее точным и удобным способом измерения коэффициента диффузии, что позволяет использовать этот метод для определения размеров макромолекул, детектировать конформационные переходы, изучать межчастичное взаимодействие и т. п.

Однако спектр рассеянного излучения определяется не только трансляционным движением частиц. Вращение несферических частиц, тепловые флуктуации их формы и состояния, внутренние движения, связанные, например, с функционированием органелл микроорганизмов, — все это приводит к характерной амплитудной модуляции рассеянного поля и, следовательно, влияет на спектр света. Объединяя перечисленные и подобные им механизмы флуктуаций рассеивающей способности, мы будем говорить о внутренней динамике частиц.

*.) Характер возникающего выбора можно вольно сравнить с выбором археолога, сравнивающего перспективу раскопки древней свалки с раскопками сохранившегося в вулканическом пепле целого города. Но приходится разрывать и свалку, если нет ничего лучшего.

Внутренняя динамика макромолекул и надмолекулярных комплексов представляет большой интерес, и попытки ее изучения в рамках СФИ предпринимались в целом ряде работ³⁸⁻⁴⁰. При этом важно иметь в виду, что различить в спектре рассеянного света вклады амплитудной модуляции, связанной с внутренней динамикой, и фазовой модуляции, связанной с трансляционным движением, оказывается возможным только благодаря их разной угловой зависимости. Как мы увидим ниже, корреляционные характеристики амплитудной и фазовой модуляций в типичной ситуации близки, что резко затрудняет получение количественной информации о внутренней динамике таким способом.

В этом разделе мы обсудим новый подход к изучению внутренней динамики макрочастиц в растворах, основанный на использовании эффектов негауссности. Дело в том, что при негауссовой статистике амплитудная и фазовая модуляции неэквивалентны. Так, негауссова составляющая спектра интенсивности не подвержена диффузионному уширению и целиком определяется внутренней динамикой. К сожалению, и в этом случае сохраняется трудность, вызванная необходимостью выделения негауссовой компоненты на фоне не очень сильно отличающейся от нее по спектральным характеристикам гауссовой компоненты. В следующих главах обсуждаются пути преодоления этой трудности с помощью методических приемов, основанных на различии природы разделяемых процессов, а также примеры удачного выделения негауссовой компоненты на фоне гауссовой, в том числе и при близких спектральных ширинах этих компонент.

а) Особенности СФИ при изучении внутренней динамики макрочастиц

В задачах атомной спектроскопии из-за большого допплеровского уширения спектральная плотность гауссовой составляющей шума обычно мала по сравнению с дробовой. При переходе к макрочастицам ситуация меняется на противоположную: диффузионное уширение спектра света, рассеянного на относительно крупных и соответственно медленно движущихся частицах мало, и спектральная плотность гауссовой компоненты обычно больше дробового фона. Таким образом, возникает необходимость выделения негауссовой составляющей на фоне гауссовой, что определяет ряд методических особенностей при изучении динамики макрочастиц.

Сложность заключается не только в большой спектральной плотности гауссовой компоненты шума, но и в том, что спектры гауссовой и негауссовой составляющих флуктуаций часто почти полностью переналагаются, из-за чего их бывает очень трудно различить. Обратимся к формуле (15), которая описывает корреляции интенсивности света, рассеянного на N независимых частицах. Гауссова составляющая формируется из двух характерных множителей. Один связан с трансляционным движением частиц, и если считать это движение диффузионным (D — коэффициент трансляционной диффузии), можно написать

$$\langle e^{i\mathbf{q}[\mathbf{r}(\tau) - \mathbf{r}(0)]} \rangle = e^{-D\mathbf{q}^2\tau}. \quad (31)$$

Второй множитель определяется внутренней динамикой частицы и представляет собой корреляционную функцию флуктуаций формфактора $\alpha(\mathbf{q}, t)$, который (в приближении однократного рассеяния) имеет вид

$$\alpha(\mathbf{q}, t) = \int \Delta\chi(r, t) e^{i\mathbf{q}r} d^3r, \quad (32)$$

где $\Delta\chi$ — отклонение поляризуемости от средней, а интегрирование производится по объему частицы. Итак,

$$\langle i(0) i(\tau) \rangle_{\text{гаусс}} \sim N^2 |\langle \alpha(0) \alpha^*(\tau) \rangle|^2 e^{-2Dq^2|\tau|}. \quad (33)$$

Негауссова же составляющая описывается только флуктуациями формфактора:

$$\langle i(0) i(\tau) \rangle_{\text{негаусс}} \sim N \langle |\alpha(0)|^2 |\alpha(\tau)|^2 \rangle. \quad (34)$$

Если характерный размер исследуемых частиц b невелик ($qb \ll 1$), можно ограничиться первыми членами разложения формфактора по степеням qb и убедиться, что интенсивность негауссовой составляющей пропорциональна $(qb)^4$. Таким образом, изучение внутренней динамики возможно лишь у частиц, размеры которых не слишком малы по сравнению с длиной волны. С другой стороны, спектральная ширина гауссовой компоненты определяется обратным временем диффузии частицы на расстояние $1/q$, а ширина негауссовой компоненты — характерным временем изменения формы частицы, которое, как ясно из соображений размерности, совпадает с временем диффузии частицы на расстояние порядка ее размера. Таким образом, при $qb \sim 1$ ширины гауссовой и негауссовой компонент близки по порядку величины. Так, например, если флуктуации формфактора связаны с вращательной диффузией частиц, спектральная ширина негауссовой составляющей пропорциональна коэффициенту вращательной диффузии θ . Для частиц, представляющих собой в гидродинамическом отношении шар,

$$D = \frac{kT}{6\pi\eta b}, \quad \theta = \frac{kT}{8\pi\eta b^3}, \quad (35)$$

где η — вязкость раствора, и при $qb \sim 1$ $Dq^2 \sim \theta$.

Точный вид гауссовой составляющей спектра шума обычно неизвестен. Дело в том, что в реальном образце присутствуют частицы с различными коэффициентами диффузии как из-за невозможности полностью избавиться от посторонних примесей, так и из-за естественной полидисперсности исследуемых объектов. Таким образом, возникает положение, при котором негауссову компоненту нельзя выделить за счет увеличения точности эксперимента, нужно предпринимать что-то другое, чтобы обеспечить достаточно большое отношение спектральной плотности негауссовой составляющей шума к гауссовой. Разумеется, гауссову компоненту можно было бы просто вычесть, если предварительно измерить ее, или с помощью оптического гетеродинирования, т. е. направив в фотоприемник опорный монохроматический луч большой интенсивности, чтобы эффективно изменился только парный коррелятор рассеянного электромагнитного поля, или (в соответствии с (17)) сделав достаточно малой апертуру фотосбора. Однако для этого необходима абсолютная калибровка измерений, что практически трудно осуществить с достаточной точностью.

Наконец, следует упомянуть еще об одной чисто методической особенности изучения динамики макрочастиц в растворе. Пользуясь (35), легко оценить, что для частиц размером $10^2 - 10^4$ Å речь идет об измерении спектральных ширин 1 Гц — 1 МГц. В этом диапазоне, особенно в низкочастотной его части, для обеспечения достаточной точности измерений нужно значительное время. Поэтому практически необходимым становится использование анализаторов реального масштаба времени.

б) Эффекты негауссности при $N \sim 1$

Наиболее очевидный путь выделения эффектов негауссности — это уменьшение числа частиц в объеме наблюдения. И до недавнего времени считалось, что эти эффекты реально проявляются только в условиях $N \sim 1$. Однако в таких условиях основной вклад в наблюдаемые эффекты вносят флуктуации числа частиц в рассеивающем объеме, связанные только с трансляционной диффузией и не несущие никакой информации о внутренней динамике исследуемых частиц. Проанализируем ситуацию подробнее.

Существуют два способа уменьшить число частиц в рассеивающем объеме: уменьшение концентрации частиц без изменения геометрии рассеяния и уменьшение рассеивающего объема без изменения концентрации. В первом случае отношение спектральных плотностей негауссовой и дробовой составляющих не меняется, а гауссова составляющая подавляется по отношению к ним. Однако абсолютная величина негауссовой компоненты падает пропорционально концентрации и при сильном разведении не может быть измерена из-за паразитного рассеяния и темновых шумов регистрирующей аппаратуры. Во втором случае естественно уменьшать рассеивающий объем V за счет фокусировки зондирующего излучения. При этом интенсивность света, рассеянного отдельной частицей, растет как $V^{-2/3}$, число частиц уменьшается как V и телесный угол когерентности растет как $V^{-2/3}$. Таким образом, согласно (16), (17) спектральная плотность гауссовой компоненты оказывается постоянной, негауссовой — пропорциональной $N^{-1/3}$ и дробовой $N^{1/3}$, т. е. фокусировка позволяет увеличить негауссов шум не только по отношению к гауссову и дробовому, но и увеличить абсолютную величину сигнала.

Казалось бы, максимальная фокусировка зондирующего излучения обеспечивает наилучшие условия изучения внутренней динамики с помощью эффектов негауссности. Однако это не так. Дело в том, что регистрируемая интенсивность света, рассеянного отдельной частицей, может меняться не только вследствие ее внутренней динамики, но и из-за ее движения относительно зондирующего луча и объема, из которого осуществляется фотосбор. Так как флуктуации формфактора происходят независимо от местоположения частицы, учет этого явления сводится к домножению корреляционной функции фототока (34) на фактор $e^{-|\tau|}/T_N$, где T_N — время пребывания частицы в рассеивающем объеме, $T_N \sim L^2/D$, L — минимальный характерный размер рассеивающего объема. Таким образом, флуктуации числа частиц приводят к уширению негауссовой составляющей. При максимальной фокусировке, т. е. при $L \sim \lambda$, это уширение сравнивается с обычным диффузионным уширением и всякое преимущество обсуждаемой методики по сравнению с традиционным путем выделения вклада внутренней динамики в спектре регистрируемого излучения пропадает.

Уширение негауссовой составляющей из-за флуктуаций числа частиц в объеме рассеяния имеет общий характер. Так, при выделении негауссовой составляющей шумов поляризации рассеянного света в атомной спектроскопии (см. гл. 3) магнитные резонансы были уширены в основном за счет дрейфа атомов через поперечное сечение зондирующего луча. Ясно, что если время, которое частица проводит в объеме наблюдения, мало по сравнению с характерным временем интересующего нас процесса, вклад последнего будет мал. Это означает, как мы видели в предыдущем разделе, что для изучения внутренней динамики макрочастиц в растворе размер рассеивающего объема должен быть много больше размера частиц. Выполнить это условие при $N \sim 1$ оказывается возможным только для крупных,

сильно рассеивающих частиц. На рис. 5 приведены результаты измерения корреляционной функции интенсивности света, рассеянного суспензией бактерий *E. coli*⁴¹. Анализ этих данных показывает, что регистрируемый шум, хотя и имеет негауссову природу, почти целиком определяется флуктуациями числа частиц в рассеивающем объеме. Лишь экспоненциальное затухание на начальном участке корреляционной функции связано, по мнению авторов, с ориентационной релаксацией. Вне зависимости от

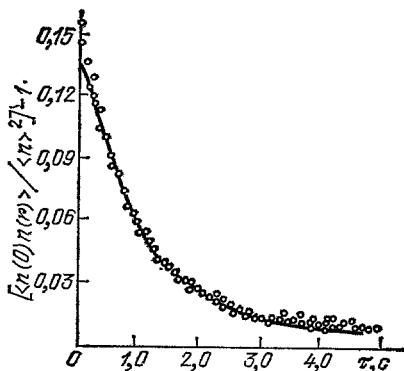


Рис. 5. Автокорреляционная функция интенсивности света, рассеянного на суспензии *E. coli* AW 405.

Сплошная линия — теоретическая кривая, описывающая флуктуации числа частиц в наблюдаемом объеме⁴¹.

обоснованности этой интерпретации (не исключена возможность того, что это — вклад гауссовой составляющей шума с временем затухания Dq^2) обращает на себя внимание малость самого эффекта. Неудивительно поэтому, что получить с помощью эффектов негауссости, возникающих при $N \sim 1$, информацию о внутренней динамике макромолекул и надмолекулярных комплексов — частиц, значительно более мелких чем бактерии,— не удается и это направление не получило заметного развития.

в) СФИ флуоресценции

Близость спектральных характеристик гауссовой и негауссовой компонент спектра шума имеет место, когда ширина спектра регистрируемого излучения определяется диффузионным движением источников.

СФИ флуоресценции, в которой следят не за рассеянным светом, а за свечением флуоресцентных меток на макрочастицах, представляет пример, в котором трудность с разделением гауссовой и негауссовой компонент шума отсутствует. Есть два механизма низкочастотных флуктуаций интенсивности флуоресценции отдельного центра. Во-первых, дрейф центра через объем возбуждения (или объем наблюдения), приводящий к флуктуациям числа наблюденных центров; во-вторых, ориентационное движение центра. Второй механизм существен при неизотропной диаграмме направленности излучения и (или) возбуждения центра. Таким образом, измеряя спектр шумов флуоресценции, можно получить информацию как о диффузионном движении объектов, имеющих флуоресцентный центр, так и об их внутренней динамике. Описанные механизмы приводят к флуктуациям интенсивности с большими по сравнению с обратной шириной спектра флуоресценции характерными временами. При этом спектральная ширина гауссовой компоненты настолько велика, что ее спектральная плотность мала по сравнению с дробовым шумом. Ситуация оказывается аналогичной СФИ спонтанного излучения возбуждаемых атомов (раздел а) гл. 3). Разница заключается в том, что ширина спектра спонтанного излучения

определяется допплеровским уширением, а ширина спектра (полоса) флуоресценции является характеристикой флуоресцирующих центров и обычно значительно превосходит допплеровское уширение, связанное с движением этих центров.

Важное методическое преимущество СФИ флуоресценции по сравнению с СФИ рассеянного света заключается в возможности избирательного наблюдения объектов, «помеченных» флуоресцирующей меткой. В частности, измерение спектра флюктуаций числа меток в объеме наблюдения позволяет определить коэффициент диффузии помеченных объектов в сложных, многокомпонентных системах. Эксперименты такого рода с успехом осуществлены рядом авторов^{42,43}. Яркость флуоресцентной метки может меняться и в результате химической реакции, что позволяет использовать СФИ флуоресценции для изучения скоростей этих реакций в равновесных условиях⁴⁴.

В работе⁴⁵ сообщается о попытке изучения и внутренней динамики макрочастиц с помощью СФИ флуоресценции. Однако наряду с важным преимуществом — большой спектральной шириной, т. е. низкой когерентностью регистрируемого излучения, обсуждаемая методика имеет и существенный недостаток — малую интенсивность излучения отдельного источника. За легкость выделения эффектов негауссности на фоне гауссовой составляющей мы вынуждены расплачиваться сложностью выделения этих эффектов на фоне дробового шума. На первый взгляд кажется, что уверенная регистрация флюктуаций числа макрочастиц в упомянутых выше экспериментах свидетельствует о достаточной интенсивности излучения отдельного центра. Однако в этих экспериментах роль играла не яркость отдельной метки, а полная яркость макрочастицы, на которой в реальных условиях таких меток много. При изучении ориентационного движения такое усиление эффектов негауссности отсутствует из-за случайной ориентации различных меток в исследуемом объекте. Трудность, связанная с недостаточной яркостью отдельного центра, не преодолена, и, насколько нам известно, получить информацию о внутренней динамике макрочастиц с помощью СФИ флуоресценции до сих пор не удалось. (Мы не обсуждаем здесь эксперименты по затуханию поляризации флуоресценции после импульсного возбуждения, а также по деполяризации флуоресценции. В таких экспериментах регистрируется не флюктуирующий, а детерминированный сигнал, поэтому они не входят в круг обсуждаемых нами проблем.)

Подавление гауссовой составляющей в СФИ флуоресценции легко осуществляется благодаря низкой степени когерентности излучения меток. Аналогичного эффекта можно добиться и в рассеянии, если в качестве зондирующего использовать достаточно неменохроматическое излучение⁴⁶. Ясно, что, когда расстояние между рассеивающими частицами больше длины когерентности зондирующего излучения, интерференция полей, рассеянных различными частицами, исчезает, что и означает отсутствие гауссовой составляющей. И в этом случае основная трудность заключается в выделении негауссовой компоненты на фоне дробового шума, для чего необходим источник очень яркого неменохроматического излучения. Отметим, что при рассеянии света с невырожденными статистическими свойствами регистрируемое излучение заведомо негауссово. Действительно, так как статистика произведения двух гауссовых случайных величин негауссова, излучение, рассеянное на системе с гауссовыми статистическими свойствами, будет иметь гауссову статистику только при детерминированном зондирующем излучении. Так, например, статистика неоднократно рассеянного света, вообще говоря, негауссова⁴⁷.

г) Искусственное снижение спектральной плотности гауссовой составляющей

Если в объеме рассеяния лазерного излучения создать поток с градиентом скорости W , то ширина спектра рассеянного света будет определяться не только величиной диффузационного уширения, но и неоднородным допплеровским уширением $\sim qWL$. Создав достаточно большой градиент скорости, можно сильно увеличить ширину гауссовой компоненты. При этом спектральная плотность этой компоненты становится маленькой, что сразу снимает проблему выделения негауссовой составляющей на ее фоне. В то же время не возникает и трудностей с дробовым фоном, так как интенсивность излучения отдельного источника остается в этой методике большой. Реализация этой идеи, по-видимому, впервые позволила наблюдать эффекты негауссности, связанные с ориентационным движением частиц⁵¹.

Частицы в потоке с поперечным градиентом скорости приобретают вращательное движение. Это явление имеет ряд следствий, из которых наиболее известное — динамооптический эффект Максвелла, заключающийся в возникновении в потоке с градиентом скорости оптической анизотропии. Динамооптический эффект лежит в основе метода двулучепреломления в потоке, который широко используется для изучения оптических и гидродинамических свойств макромолекул⁴⁸. Используется ориентирующее действие потока и для выяснения формы частиц по угловой зависимости сечения рассеяния⁴⁹.

Эффекты негауссности, возникающие при рассеянии света на частицах в потоке с поперечным градиентом скорости, связаны, разумеется, не со средней ориентацией, а с регулярным вращением каждой отдельной частицы, приводящим к модуляции ее формфактора. Можно показать⁵⁰, что в случае аксиально симметричных (с гидродинамической точки зрения) частиц, при пренебрежении вращательной диффузией, движение оси частицы строго периодично, причем период T не зависит от начальной ориентации оси относительно потока и равен

$$T = \frac{4\pi}{W \sqrt{1-a^2}} . \quad (36)$$

Параметр анизотропии a может быть найден для эллипсоида вращения $a = (1 - p^2)/(1 + p^2)$, где p — отношение осей эллипсоида. Вращательная диффузия и отклонение формы частицы от аксиально симметричной нарушают периодичность движения; при коэффициенте вращательной диффузии $\theta \ll T^{-1}$ и малой неаксиальности отклонение от периодичности мало и негауссова составляющая спектра интенсивности рассеянного света представляет из себя набор эквидистантных линий с расстоянием между ними $\Delta\omega = 2\pi/T$ и шириной, зависящей от θ и «неаксиальности» частиц.

Эксперименты по наблюдению указанного явления были проведены на бактериях *E. coli*, размер которых обеспечивал значительную величину ожидаемого эффекта. Поток с поперечным градиентом скорости создавался в зазоре $d = 2$ мм между неподвижным и вращающимся коаксиальными цилиндрами с радиусами $r = 20$ мм и $r - d = 18$ мм соответственно. Скорость вращения ротора составляла $f = 36$ об/с, что создавало градиент скорости $W = 2\pi f r/d \sim 2 \cdot 10^8$ с⁻¹. Для того чтобы модуляция формфактора за счет вращения частиц была максимальной, рассеяние наблюдалось в плоскости, перпендикулярной оси цилиндров, т. е. в плоскости потока. Диаметр зондирующего луча был 0,1 мм; при этом число частиц в наблюдаемом объеме составляло $N \sim 10^4$.

Результаты эксперимента приведены на рис. 6. В спектре флуктуаций интенсивности света, рассеянного бактериями, находящимися в потоке

с градиентом скорости (кривая 1), отчетливо видна отщепленная линия. Величина отщепления не зависит от угла рассеяния и составляет 120 Гц. Согласно (36) эта величина соответствует параметру анизотропии $a \approx 0,7$ или отношению осей эквивалентного эллипсоида вращения $p \approx 2,3$, что прекрасно согласуется с известными средними размерами бактерии *E. coli* ($2 \times 0,8 \times 0,8 \text{ мкм}^3$). Ширина отщепленной линии существенно превышает ожидаемое уширение за счет вращательной диффузии. Так как форма бактерий *E. coli* близка к аксиально симметричной, наблюдаемая ширина,

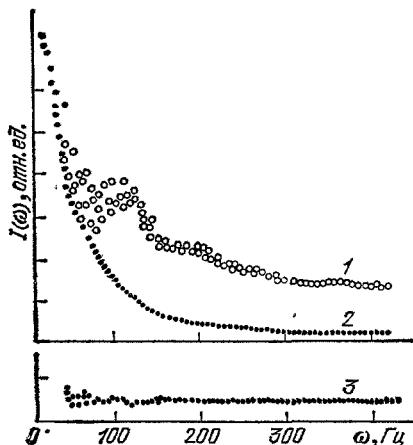


Рис. 6. Спектр флуктуаций интенсивности света, рассеянного на частицах в потоке с попечечным градиентом скорости.
1 — *E. coli* в потоке с градиентом скорости, 2 — то же в отсутствие потока, 3 — сферические частицы (латексы) в потоке с градиентом скорости.

по-видимому, связана с наличием в образце бактерий разной формы, с разбросом p от 2,0 до 2,5, что соответствует данным визуального наблюдения. Это иллюстрирует возможность применения такого рода экспериментов для анализа функции распределения частиц в растворе по степени их вытянутости.

Кривая 2 представляет собой спектр фототока при покоящемся роторе. В этом случае наблюдается обычная гауссова составляющая — лоренцев контур с шириной (угол рассеяния 90°). При вращении ротора этот контур «размазывается» за счет неоднородного допплеровского смещения по полосе $dWq \sim 10^7$ Гц, что и позволяет наблюдать эффекты негауссности в виде отщепленной линии. То, что эта линия связана именно с указанным вращением частиц в потоке, т. е. с модуляцией формфактора $\alpha(t)$, может быть проверено посредством контрольного опыта с рассеянием света на сферических частицах сходных размеров (латекс $\varnothing 1,5 \text{ мкм}$), где такой модуляции, разумеется, не возникает, следовательно, не должно появиться и никакой характерной линии. Результат подобного контрольного опыта приведен на рис. 6, кривая 3.

д) Метод взаимной корреляции

Мы здесь обсудим метод, который в настоящее время представляется наиболее перспективным в смысле изучения внутренней динамики макро-частиц. Суть его состоит в том, что анализируются корреляции фототоков i_1 и i_2 двух разных фотоприемников, а не автокорреляции фототока одного приемника, как во всех рассмотренных выше случаях. Как оказалось, это дает несколько нетривиальных преимуществ.

Уже говорилось, что гауссова составляющая шума является следствием интерференции полей от разных источников, которая может иметь место только в пределах телесного угла когерентности Ω_c . Таким образом,

если угол между направлениями на оба фотоприемника из рассеивающего объема больше угла когерентности, гауссова составляющая должна исчезнуть. В типичных оптических экспериментах угол когерентности порядка отношения длины волны излучения к линейному размеру объема наблюдения, т. е. подавление гауссовой составляющей обеспечивается практически при любом взаимном положении фотоприемников. При регистрации двумя фотоприемниками исчезает и дробовый шум, что легко понять на основе формулы (6), а также все остальные статистически независимые шумы двух трактов регистрации. Следует иметь в виду, что точность эксперимента при этом не увеличивается (если под точностью понимать отношение сигнала к шуму), так как при подобном способе регистрации обращаются в нуль только средние уровни гауссовой и дробовой составляющих. Статистическая же погрешность измерения $G^{b3}(\tau)$ по-прежнему определяется всеми флуктуациями интенсивности. Действительно, действуя так же, как при выводе (18), легко убедиться, что погрешности измерения функций взаимной корреляции и автокорреляционной функции практически совпадают. Однако в условиях, когда характерные времена фазовых и амплитудных корреляций близки по порядку величины, сам факт отсутствия гауссовой составляющей очень существен, так как ее спектральная форма реально неизвестна, что затрудняет определение спектральных характеристик и негауссовой составляющей.

По-видимому, впервые (хотя предложения об использовании двух фотоприемников делались и раньше⁵²) возможность использования метода взаимной корреляции для изучения внутренней динамики макрочастиц в растворе была продемонстрирована в⁵³. Там же было показано, что при изучении вращательной диффузии метод взаимной корреляции имеет еще одно важное методическое достоинство, состоящее в том, что при определенном положении фотоприемников ориентационные флуктуации дают антикорреляционный вклад в $G^{b3}(\tau) = \langle i_1(0) i_2(\tau) \rangle$. Можно показать, что при однократном рассеянии на малых ($qb \ll 1$) аксиально симметричных частицах $G^{b3} \sim (q_1 q_2)^2 - (1/3) q_1^2 q_2^2$, где q_1 и q_2 — векторы рассеяния в соответствующие фотоприемники. Максимальная антикорреляция имеет место при $q_1 \perp q_2$. Для частиц, размеры которых сравнимы с длиной волны света, это условие, естественно, нарушается.

В работе⁵³ наличие ориентационной диффузии детектировалось по антикорреляционному эффекту. Рассеяние света производилось на растворе вируса табачной мозаики (палочки длиной 3000 Å и толщиной 50 Å). Эксперимент проводился в условиях $N \sim 1$, при максимальной фокусировке. При этом, как и в работе⁴¹, в основном наблюдалась флуктуации числа частиц в рассеивающем объеме. Несмотря на оптимальное расположение фотоприемников — напротив друг друга, перпендикулярно зондирующему лучу — эффект антикорреляции на кривой функции взаимной корреляции был виден только на начальном участке. Хотя этот эксперимент и не позволил получить количественную информацию, само обнаружение ориентационного вклада в негауссовой составляющей шумов явилось важным достижением.

Как уже неоднократно отмечалось, требование $N \sim 1$ является не только необязательным, но может быть даже вредным, если речь идет об исследовании вращения или внутреннего движения макрочастиц. Поэтому в работе⁵⁴ число частиц в объеме рассеяния выбиралось довольно большим: $N \sim 10^2$. В качестве объекта исследования были взяты уже известные нам бактерии *E. coli*. Это крупные частицы, и время их ориентационной диффузии довольно велико: $T_0 \sim 0,1$ с, т. е. порядка характерного временного масштаба флуктуаций интенсивности зондирующего лазерного излучения. В эксперименте были приняты специальные меры, чтобы избе-

жать искажений, связанных с этим обстоятельством. Фотоприемники выставлялись под углом 45° к падающему лучу и симметрично относительно него. Это расположение было для данного объекта (его размер порядка длины волны света) оптимальным для наблюдения антикорреляции. Результаты измерения $G^{bb}(\tau)$ приведены на рис. 7. Мы видим, что в данном случае рассеивающий объем достаточно велик и наблюдаемая картина целиком определяется вращательной диффузией рассеивающих частиц. Определяя по приведенной кривой коэффициент вращательной диффузии, получаем величину $\theta \sim 0,25$, что хорошо согласуется с известными данными по размерам и форме бактерий.

Итак, метод взаимной корреляции позволяет осуществить идеальное вычитание средних значений гауссовой и дробовой компонент шума из полного спектра мощности, что, как уже отмечалось, особенно важно при близости времен корреляции T_0 и T_c . Уместно отметить здесь прямую аналогию описанной техники взаимной корреляции с экспериментами типа Брауна и Твисса², в которых наблюдалась зависимость числа совпадений фотоотсчетов двух фотомультивилей от их взаимного углового расстояния относительно источника света. В наших терминах целью такого эксперимента является выделение интегральной интенсивности гауссовых шумов светового поля на фоне дробовой составляющей. Разделение составляющих возможно за счет того, что дробовые шумы двух фотоприемников взаимно некоррелированы, а фазовые (гауссовые) шумы коррелированы, пока оба фотоприемника находятся в пределах площадки когерентности излучения с поперечником $l_c \sim \lambda/\phi$, где ϕ — угловой размер источника. Поэтому, измеряя взаимную корреляцию фотоотсчетов как функцию от расстояния между приемниками, можно определить угловой размер источника (в частности, звезды).

В нашем случае объектом исследования служит негауссова составляющая флуктуации интенсивности, соответствующая флуктуациям яркости источника как целого. Для выделения этой составляющей приемники разводятся за пределы площади когерентности, в результате чего исчезает взаимная корреляция фотонов, связанная с волновыми шумами поля излучения, при том дробовые флуктуации всегда некоррелированы.

Заканчивая этот раздел, отметим два обстоятельства. Во-первых, во всех рассмотренных экспериментах изучалось ориентационное движение. Может сложиться впечатление, что наблюдение собственно внутренней динамики, т. е. изменения формы частиц, связано с какими-то дополнительными трудностями. На самом деле это не так. Просто теория, описывающая динамику изменения формы частицы в вязкой среде, весьма сложна, и вид спектра флуктуаций формфактора гибкой частицы может быть определен только в рамках той или иной упрощенной модели, адекват-

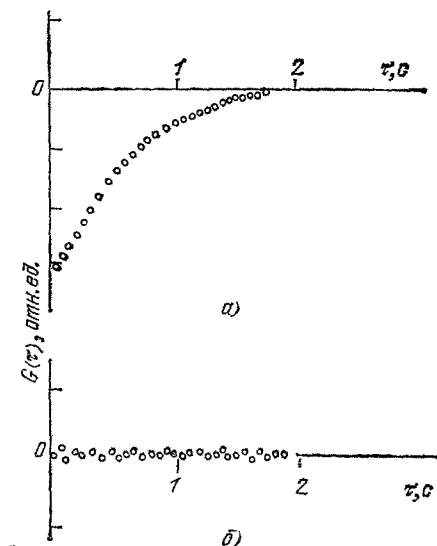


Рис. 7. а) Функция взаимной корреляции света, рассеянного на суспензии бактерий *E. coli*; б) то же для сферического латекса.

ность которой физической реальности часто проблематична. Поэтому естественно, что в первых демонстрационных экспериментах по наблюдению эффекта негауссости в СФИ изучалось совершенно ясное с теоретической точки зрения ориентационное движение жестких частиц.

Во-вторых, в этом разделе основное внимание было уделено ситуации, когда ширина спектра флуктуации формфактора близка к диффузионной ширине. В разделе а) было объяснено, почему такая ситуация часто имеет место. Разумеется, можно привести много случаев, когда эти ширины сильно различаются, например, при изучении спектра деполяризованной компоненты света, рассеянного на малый угол оптически анизотропными частицами⁴⁰. Хотя в этих случаях наблюдение эффектов негауссости облегчается, смысл такого наблюдения исчезает, так как проявления внутренней динамики могут быть значительно проще обнаружены непосредственно в спектре рассеянного света, т. е. в рамках традиционной СФИ. Поэтому методы СФИ, позволяющие наблюдать эффекты негауссости, и, в первую очередь метод взаимной корреляции, наиболее перспективны с точки зрения изучения внутренней динамики именно в условиях близких ширин гауссовой и негауссовой компонент.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В этом обзоре мы постарались на нескольких примерах продемонстрировать возможности СФИ как в атомной физике, так и в физике макрочастиц. Основная идея, которую мы эксплуатировали, состоит в том, что негауссова компонента шумов света, рассеянного или испущенного средой, может явиться источником информации о внутреннем движении частиц. Реальность извлечения такой информации в настоящее время осознана и продемонстрирована применительно к отнюдь не уникальным объектам.

Говоря о значении методов, развиваемых в рамках СФИ, следует иметь в виду два аспекта. Первый — это непосредственно способность метода давать практически важные сведения об объекте (атомные и молекулярные константы, константы вращательной и поступательной диффузии и др.). Другой аспект — это порождаемые подходом СФИ новые физические взгляды и обобщения.

Мы уже отмечали, что эксперименты по применению СФИ в микрофизике носят в настоящее время в значительной степени демонстрационный характер. Практические преимущества СФИ перед другими методами бесспорно показаны, пожалуй, пока только применительно к задаче исследования рассеяния Мандельштама — Бриллюэна на малые углы. Гораздо яснее перспективы применения СФИ для исследования динамики макрочастиц. Такие исследования уже широко ведутся, и число публикаций на эту тему постоянно растет.

Что касается второго аспекта роли СФИ, то нужно отметить, что СФИ — это не просто новая техника спектроскопии, а прежде всего новый подход к изучению электромагнитного поля с принципиально иных позиций. Это убедительно видно на примере эффекта Хэнбери-Брауна и Твисса, который с точки зрения спектроскопии поставляет традиционную информацию о спектре и пространственной когерентности источника. Однако в этом эксперименте выступает и новое качество электромагнитного поля, характеризуемое группировкой фотонов. Новый подход породил интерес к проблемам корреляции и антикорреляции фотонов, к полям в квантовых состо-

яниях и к вопросам выяснения пределов применимости классической электродинамики. Таким образом, и в принципиальном отношении СФИ оказалась очень плодотворной.

Ленинградский институт ядерной физики
им. Б. П. Константинова АН СССР
Ленинградский государственный университет
им. А. А. Жданова

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. Forrester A. T., Gudmundsen R. A., Johnson P. O.—Phys. Rev., 1955, v. 99, p. 1691.
2. Hubble - Brown R., Twiss R. Q.—Nature, 1956, v. 177, p. 27; Proc. Roy. Soc. Ser. A, 1957, v. 242, p. 2006; v. 243, p. 291. Rebka G. A., Pound R. V.—Nature, 1957, v. 180, p. 1035.
3. Спектроскопия оптического смещения и корреляция фотонов/Под ред. Г. Камминса, Э. Пайка.—М.: Мир, 1978.
4. Глаубер Р.—В кн. Квантовая оптика и квантовая радиофизика/Под ред. О. В. Богдановича, О. Н. Крохина.—М.: Мир, 1966.
5. Вольф Э., Мандель Л.—УФН, 1966, т. 68, с. 619.
6. Смирнов Д. Ф., Соколов И. В.—ЖЭТФ, 1976, т. 70, с. 2098.
7. Смирнов Д. Ф., Соколов И. В., Трошчин А. С.—Вестн. Ленингр. ун-та, 1977, № 10, с. 36.
8. Di Porto P., Crosignani B., Bertolotti M.—J. Appl. Phys., 1969, v. 50, p. 5083.
9. Кросиньяни Б., Ди Порто П., Бертолотти М. Статистические свойства рассеянного света.—М.: Наука, 1980.
10. Харкевич А. А. Спектры и анализ.—М.: Физматгиз, 1962.
11. Александров Е. Б.—УФН, 1972, т. 107, с. 595.
12. Александров Е. Б., Козлов В. П., Кулаков В. Н.—ЖЭТФ, 1974, т. 66, с. 1269.
13. Александров Е. Б.—Кулаков В. Н.—Опт. и спектр., 1976, т. 40, с. 785.
14. Александров Е. Б., Кулаков В. Н.—ЖЭТФ, 1968, т. 55, с. 766.
15. Александров Е. Б., Кулаков В. Н.—ЖЭТФ, 1969, т. 56, с. 784.
16. Александров Е. Б., Константинов О. В., Кулаков В. Н. Мамырин В. А., Переиль В. И.—ЖЭТФ, 1971, т. 61, с. 2259.
17. Голубев Ю. М.—ЖЭТФ, 1977, т. 72, с. 71.
18. Scare O. B., Smith S. R.—Phys. Rev. Ser. A, 1974, v. 10, p. 709.
19. Slutsky M. S.—Ibid., 1977, v. 15, p. 270.
20. Александров Е. Б., Мамырин А. В.—ЖЭТФ, 1977, т. 72, с. 471.
21. Александров Е. Б., Запасский В. С.—ЖЭТФ, 1981, т. 81, с. 132.
22. Голубев Ю. М., Плимацк Л. И.—Ibid., с. 486.
23. Козлов В. П.—ЖЭТФ, 1977, т. 72, с. 476.
24. Наррэг W.—Rev. Modern Phys., 1972, v. 44, p. 169.
25. Хаютиш Л. М.—ЖЭТФ, 1972, т. 62, с. 1321.
26. Раутиан С. Г.—Тр. ФИАН СССР, 1969, т. 43, с. 3.
27. Раутиан С. Г., Собельман И. И.—ЖЭТФ, 1961, т. 41, с. 456; 1963, т. 44, с. 954.
28. Голубев Ю. М., Плимацк Л. И.—ЖЭТФ, 1980, т. 79, с. 932; Опт. и спектр., 1981, т. 51, с. 602.
29. Александров Е. Б., Калитеевский Н. И., Чайка М. П.—УФН, 1979, т. 129, с. 155.
30. Лэмб У.—Цит. в ⁴ сб.
31. Голубев Ю. М., Грязневич В. П.—Опт. и спектр., 1978, т. 44, с. 812.
32. Голубев Ю. М., Плимацк Л. И.—Ibid., 1980, т. 48, с. 222.
33. Grive R. E., Wu F. Y., Ezekiel Q.—Phys. Rev. Ser. A, 1977, v. 15, p. 277.
34. Голубев Ю. М.—ЖЭТФ, 1975, т. 69, с. 875.
35. Голубев Ю. М.—ЖЭТФ, 1974, т. 66, с. 2028.
36. Смирнов Д. Ф., Трошчин А. С.—ЖЭТФ, 1977, т. 72, с. 2055.
37. Голубев Ю. М., Фрадкин Э. Е.—ЖЭТФ, 1972, т. 63, с. 2082.
38. Schaefer D. W., Venetek G., Schofield P., Bradford E.—J. Chem. Phys., 1971, v. 55, p. 3884.
39. Voogdouw G., Kam Z., Bogaevich M., Eisenberg H.—Biophys. Chem., 1978, v. 8, p. 171.

40. Shurn J. M., Schmitz K. S.— Biopolymers, 1973, v. 12, p. 1021.
41. Schaefer D. W., Berne B. J.— Biophys. J., 1975, v. 15, p. 785.
42. Webb W. W.— Quart. Rev. Biophys., 1976, v. 9, p. 49.
43. Weissman M., Schindler H., Feher G.— Proc. Nat. Acad. Sci., 1976, v. 73, p. 2776.
44. Magde D.— Quart. Rev. Biophys., 1976, v. 9, p. 35.
45. Ehrenberg M., Rigler R.— Ibid., p. 69.
46. Ломакин А. В., Носкин В. А., Препринт ЛИЯФ АН СССР, № 509.— Ленинград, 1979.
47. Bertolotti M.— In: Photon Correlation Spectroscopy and Velocimetry/Ed by H. Z. Cummins, E. R. Pike.— N. Y.: Plenum Press, 1977.
48. Цветков В. А., Эскин В. Е., Френкель С. Я. Структура макромолекул в растворе.— М.: Наука, 1964.
49. Dorrke H., Heller W.— J. Phys. Chem. Ser. B, 1979, v. 3, p. 1717.
50. Ломакин А. В., Носкин В. А.— Письма ЖЭТФ, 1978, т. 28, с. 592.
51. Lomakin A. V., Noskin V. A.— Biopolymers, 1980, v. 19, p. 231.
52. Kam Z.— Macromolecules, 1977, v. 10, p. 927.
53. Griffin W. G., Pusey P. N.— Phys. Rev. Lett., 1979, v. 43, p. 1100.
54. Лебедев А. Д., Ломакин А. В., Носкин В. А., Шаронов Б. П.— Опт. и спектр., 1982, т. 52, с. 195.
55. Горбовицкий Б. И., Переиль В. И.— Опт. и спектр., 1983, т. 54, с. 388.
56. Lastovka J. B. Ph. D. Thesis.— M.I.T., 1967.
57. Eden D., Swiney H. L.— Opt. Comm., 1974, v. 10, p. 191.
58. Альтшuler С. А., Назаров Ю. Г., Хасанов А. Х.— Письма ЖЭТФ, 1981, т. 33, с. 525.