

ДИОДНАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ МОЛЕКУЛ SF_6 , ОХЛАЖДЕННЫХ В ИМПУЛЬСНОЙ СТРУЕ, ПРИ ИК МНОГОФОТОННОМ ВОЗБУЖДЕНИИ

*В.М.Апатин, В.М.Кривцун, Ю.А.Курицын, Г.Н.Макаров,
И.Пак, И.И.Засавицкий, А.П.Шотов*

С помощью перестраиваемого по частоте диодного лазера впервые изучена динамика опустошения отдельных колебательно-вращательных состояний при ИК многофотонном возбуждении молекул, охлажденных в импульсной струе. Измерена доля возбужденных лазерным импульсом молекул из отдельных вращательных подуровней и изучена ее зависимость от условий возбуждения.

1. Важным вопросом с точки зрения понимания физики многофотонного возбуждения (МФВ) молекул в сильном ИК лазерном поле ¹ является вопрос о механизме вовлечения молекул в процесс взаимодействия. Предметом настоящей статьи является изложение первых экспериментальных результатов по исследованию этого вопроса методом двойного ИК-ИК резонанса с использованием в качестве зондирующего излучения перестраиваемого по частоте диодного лазера ¹⁾. Кроме высокого спектрального разрешения ($\cong 10^3 - 10^4 \text{ см}^{-1}$), этот метод является также довольно чувствительным, что позволяет проводить эксперименты при давлениях газа $\lesssim 10^{-3}$ мм рт. ст., т.е. в существенно бесстолкновительном режиме возбуждения. Эксперименты проводились с молекулами SF_6 , охлажденными до $T_{вр} \lesssim 40 \text{ К}$ и $T_{кол} \cong 160 \text{ К}$ в импульсной сверхзвуковой струе. Это значительно упрощало спектроскопию молекулы. По спектрам поглощения диодного лазера наблюдалось опустошение вращательных подуровней основного колебательного состояния молекулы под действием импульса CO_2 -лазера. Измерена доля f_J возбуждаемых лазерным излучением молекул из отдельных вращательных подуровней. Изучены зависимости f_J от плотности энергии и частоты возбуждающего импульса.

2. Экспериментальная установка (за исключением диодного спектрометра²) подробно описана в ⁴. Молекулы SF_6 в импульсной струе на расстоянии 6 см от сопла возбуждались импульсом CO_2 -лазера (80-наносекундный пик с 0,8-микросекундной хвостовой частью, энергия в импульсе $\cong 2,0 \text{ Дж}$), а на расстоянии 5,5 см ниже от зоны возбуждения (11,5 см

¹⁾ В ^{2,3} этим методом наблюдались резонансы на переходе $2\nu_3 \leftarrow \nu_3$ SF_6 .

от сопла) проводилось зондирование возбужденных молекул диодным лазером. Лучи возбуждающего и зондирующего лазеров направлялись через струю перпендикулярно ее осевой линии. Концентрация молекул в струе в зоне возбуждения и в зоне зондирования при используемых давлениях SF_6 в сопле 1–5 атм была $\lesssim (1,5 - 7) \cdot 10^{13} \text{ см}^{-3}$ и $\lesssim (0,3 - 1,5) \cdot 10^{13} \text{ см}^{-3}$, соответственно. Время пролета молекул от зоны возбуждения до зоны зондирования было $\cong 100$ мкс. В ряде экспериментов с целью уменьшения времени задержки между возбуждающим и зондирующим импульсами использовалась соосная геометрия возбуждения (излучение CO_2 -лазера направлялось навстречу струе). В экспериментах использовался диодный лазер на основе PbSnSe , работавший в импульсном режиме⁵. Скорость перестройки частоты излучения была $(2 - 3) \cdot 10^{-3} \text{ см}^{-1}/\text{мкс}$. Для зондирования была выбрана область $946,3 - 948,2 \text{ см}^{-1}$. Эта область практически полностью перекрывала частотный диапазон P - и Q -ветвей перехода $v = 1 \leftarrow v = 0$ возбуждаемой моды ν_3 . Спектральное разрешение ограничивалось регистрирующей системой и в настоящих экспериментах составляло $\cong 0,003 \text{ см}^{-1}$. Это позволяло разрешать отдельные вращательные компоненты мультиплетов P -ветви, соответствующие состояниям с $J \leq 20$, которые в основном заселены при $T_{\text{вр}} \lesssim \lesssim 40 \text{ К}$.

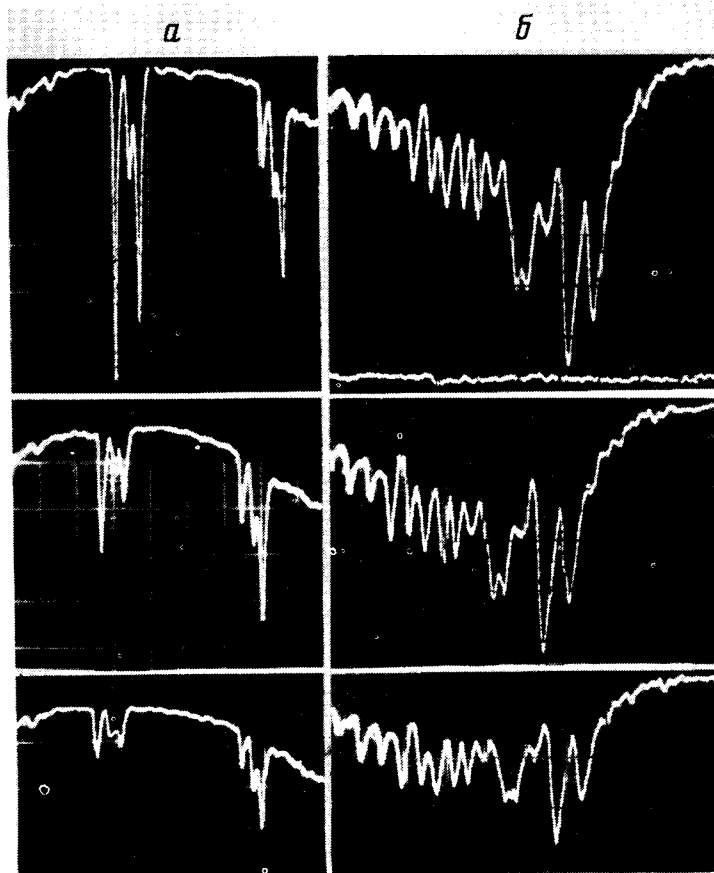


Рис.1. Осциллограммы, показывающие уменьшение интенсивности (просветление) мультиплетов $P(10)$ и $P(9)$ (а) и Q -ветви (б) SF_6 под действием импульса CO_2 -лазера. Вверху – поглощение (вниз) излучения диодного лазера молекулами SF_6 в струе без возбуждения. Нулевой уровень излучения диодного лазера в случае (б) показан под Q -ветвью. Средние и нижние осциллограммы получены при плотностях энергии возбуждения 0,5 и 2,3 Дж/см². Частота возбуждения – $947,74 \text{ см}^{-1}$ (линия $P(16)$ CO_2 -лазера). Давление SF_6 в сопле – 5 атм. Развертка – $7,5 \text{ мкс/дел}$ ($\cong 0,015 \text{ см}^{-1}/\text{дел}$)

3. На рис.1 (а, б) приведены осциллограммы, показывающие изменение поглощения (просветление) SF₆ в области мультиплетов P(10) и P(9) и Q-ветви перехода $\nu_3 = 1 \leftarrow \nu_3 = 0$ при накачке импульсом CO₂-лазера. Частота диодного лазера во всем диапазоне Q-ветви в случае рис.1, б сканировалась за время $\cong 50$ мкс, а время пролета пространственного распределения возбужденных молекул через область зондирования была $\cong 35$ мкс. Поэтому реальная картина просветления Q-ветви, которая наблюдалась нами „по частям”, несколько отличается от приведенной на рис. 1, б. Из рис.1 (а, б) видно, что при воздействии импульсом CO₂-лазера наблюдается значительное просветление SF₆, связанное с уходом молекул из основного колебательного состояния (опустошением вращательных подуровней). По просветлению отдельных линий можно определить долю f_J — молекул, возбуждаемых CO₂-лазером, и долю $f_J^0 - f_J$ молекул, оставшихся в основном состоянии.

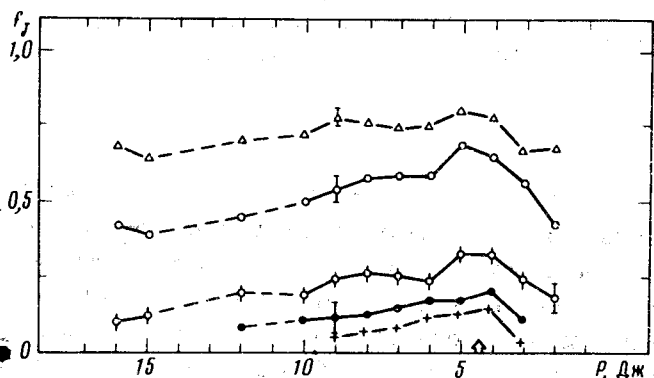


Рис.2. Зависимость доли возбужденных молекул от вращательного квантового числа J (от величины отстройки) при плотностях энергии возбуждения 0,01 (+); 0,02 (•); 0,1 (φ); 0,5 (○) и 1,3 Дж/см² (Δ). Зондирование проводилось в P-ветви SF₆. Частота накачки (показана стрелкой) и давление SF₆ в сопле такие же, как и в случае рис.1

На рис.2 приведены зависимости доли f_J от вращательного квантового числа (от величины частотной отстройки) при накачке SF₆ на частоте 947,74 см⁻¹ (линия P(16) CO₂-лазера). Зондирование проводилось в P-ветви SF₆. Частота накачки попадала между мультиплетами P(4) и P(5) перехода $\nu_3 = 1 \leftarrow \nu_3 = 0$ SF₆. Из рис.2 видно, что даже при $\Phi \leq 0,02$ Дж/см², когда полевое уширение ($\Delta \nu_{\text{уш}} = \mu E / \hbar c \leq 0,04$ см⁻¹) и ширина линии генерации CO₂-лазера ($\Delta \nu_{\text{ген}} \cong 0,035$ см⁻¹) не превышали разности частот между соседними мультиплетами в P-ветви, с лазерным излучением взаимодействуют практически все заселенные при $T_{\text{вр}} \leq 40$ К вращательные состояния, независимо от величины частотной отстройки. Аналогичные результаты наблюдались нами и в случае, когда задержка между возбуждающим и зондирующим импульсами была 5 – 10 мкс (при соосной геометрии возбуждения). Это указывает на отсутствие влияния вращательной релаксации. При $\Phi \leq 0,5$ Дж/см² наблюдается преимущественное опустошение вращательных подуровней, переходы с которых имеют меньшую отстройку по частоте с возбуждающим импульсом CO₂-лазера. При $\Phi \geq 1,3$ Дж/см² f_J практически не зависит от вращательного подуровня. Полученные данные находятся в хорошем согласии с результатами работы ⁶, в которой наблюдалось опустошение многих вращательных состояний при ИК МФВ молекул. При $\Phi = 0,5 - 1,3$ Дж/см² взаимодействие всех вращательных состояний наблюдалось в настоящих экспериментах при накачке SF₆ также на частотах линий P(12), P(24) и P(28) CO₂-лазера, которые значительно (на 2 – 10 см⁻¹) отстроены от спектра линейного поглощения (СЛП) при $T_{\text{вр}} \leq 40$ К.

На рис.3 приведены зависимости доли f_J возбужденных молекул с вращательных подуровней $J = 5, 6, 10$ и 16 от плотности энергии при накачке SF₆ на частоте 947,74 см⁻¹. Видно, что во всем исследуемом диапазоне плотностей энергии f_J максимальна для уровня $J = 5$, имеющего наименьшую отстройку по частоте с излучением накачки, меньше для уровней $J = 6, 10$ и минимальна для уровня $J = 16$. С увеличением Φ доля f_J растет быстрее для уровней, переходы $\nu_3 = 1 \leftarrow \nu_3 = 0$ с которых имеют большую отстройку с частотой накачки. При $\Phi \geq 1,3$ Дж/см² f_J для всех исследуемых вращательных подуровней достигает значения $\geq 0,7 - 0,8$.

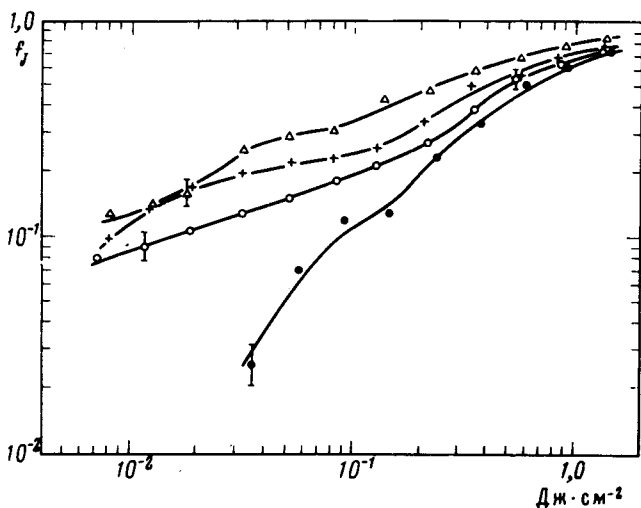


Рис.3. Зависимости доли возбужденных молекул с вращательных подуровней $J = 5$ (Δ), $J = 6$ ($+$), $J = 10$ (\circ) и $J = 16$ (\bullet) SF_6 от плотности энергии возбуждения. Частота накачки и давление SF_6 в сопле такие же, как и в случае рис.1

Взаимодействие всех вращательных состояний, по нашему мнению, связано с доминирующей ролью в области нижних дискретных уровней прямых многофотонных переходов, в том числе высокого порядка. (Двухфотонные резонансы в системе нижних колебательных уровней SF_6 наблюдались в ⁷). При значительных отстройках частоты накачки от СЛП (линии $P(12)$, $P(24)$, $P(28)$) молекулы сразу возбуждаются на уровни $v \geq 3 - 4$ и далее набирают энергию в квазиконтинууме. При накачке на линии $P(16)$ CO_2 -лазера двух-, трехфотонные переходы, по-видимому, происходят уже при плотностях энергии $\Phi \leq 0,02$ Дж/см². Многофотонный характер взаимодействия, вероятно, обеспечивается сложной структурой высоколежащих колебательно-вращательных состояний и компенсацией по мере увеличения плотности энергии возбуждения частотных расстройек полевым уширением. По-видимому, именно этим объясняется ступенчатый характер зависимостей $f_j(\Phi)$, приведенных на рис.3.

В заключение отметим, что описанный метод позволяет изучать также характер заселения высоколежащих колебательно-вращательных уровней при ИК МФВ молекул.

Авторы выражают благодарность В.Г.Колошникову и В.С.Летохову за поддержку и интерес к работе и А.А.Макарову за полезное обсуждение результатов.

Литература

1. Багратшвили В.Н., Летохов В.С., Макаров А.А., Рябов Е.А. Многофотонные процессы в молекулах в ИК лазерном поле. М.: ВИНТИ, 1981.
2. Patterson C.W., McDowell R.S., Moulton P.F., Mooradian A. Opt. Lett., 1981, 6, 93.
3. Dubs M., Harradine D., Schweitzer E., Steinfeld J.I., Patterson C., J. Chem. Phys., 1982, 77, 3824.
4. Апатин В.М., Макаров Г.Н. ЖЭТФ, 1983, 84, 15.
5. Веденева Г.В., Засавицкий И.И., Колошников В.Г., Курицын Ю.А., Пак И., Снегирев Е.П., Шотов А.П. Сб. докладов II советско-французского симпозиума по оптическому приборостроению (Москва, 16 - 21 марта 1981 г.), М., 1982, стр 47 - 55.
6. Алимиев С.С., Багратшвили В.Н., Карлов Н.В., Летохов В.С., Лобко В.В., Макаров А.А., Сартаков Б.Г., Хохлов Э.М. Письма в ЖЭТФ, 1977, 25, 582.
7. Алимиев С.С., Карлов Н.В., Месяц Г.А., Никифоров С.М., Орловский В.М., Прохоров А.М., Сартаков Б.Г., Хохлов Э.М., Штарков А.Л. Письма в ЖЭТФ, 1979, 30, 279.