

ЗНАЧИТЕЛЬНОЕ УВЕЛИЧЕНИЕ СКОРОСТИ ДИССОЦИАЦИИ МНОГОАТОМНЫХ МОЛЕКУЛ ПРИ КРАСНОМ СМЕЩЕНИИ НЕРЕЗОНАНСНОЙ ЧАСТОТЫ В УСЛОВИЯХ ДВУХЧАСТОТНОГО ЛАЗЕРНОГО ДЕЙСТВИЯ

*В.М.Акулин, С.С.Алимов, Н.В.Карлов,
А.М.Прохоров, Б.Г.Сартаков, Э.М.Хохлов*

Сообщается об экспериментальном обнаружении значительного увеличения скорости диссоциации молекул SiF_4 и SF_6 излучением двух импульсных CO_2 -лазеров при сильном смещении частоты излучения одного из них в длинноволновую сторону по отношению к частоте основного колебательного перехода. Наблюдаемый эффект объясняется особенностями дисперсионной кривой зонной структуры квазиконтинуума в спектре высоких колебательных состояний молекулы.

При резонансном возбуждении колебательных уровней молекул ИК-лазерным излучением наблюдается бесстолкновительная диссоциация мо-

лекул, когда лазерное излучение достаточно интенсивно [1, 2]. В этом процессе существенны этап прохождения нижних колебательных уровней и дальнейший набор энергии в квазиконтинууме верхних колебательных состояний [3]. Соответствующее этим этапам разделение функций лазеров, осуществляющих резонансное возбуждение и прохождение квазиконтинуума, было впервые экспериментально реализовано при двухчастотном ИК лазерном воздействии [4].

В нашей работе сообщается об экспериментальном обнаружении значительного увеличения скорости диссоциации молекул SiF_4 и SF_6 при сильном красном смещении относительно основного колебательного перехода частоты излучения лазера, осуществляющего прохождение квазиконтинуума.

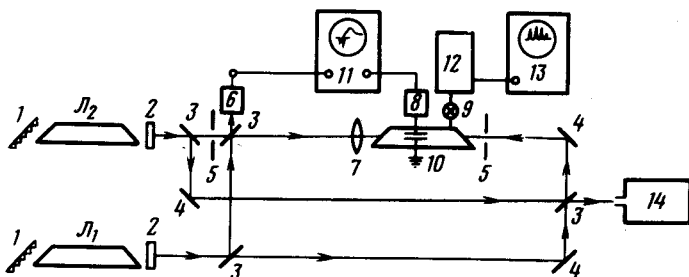


Рис. 1. Схема экспериментальной установки: L_1 , L_2 – CO_2 -лазеры, 1 – дифракционные решетки 150 штр/мм, 2 – выходные зеркала из германия, 3 – расщепители BaF_2 , 4 – поворотные зеркала, 5 – диафрагмы, 6 – фотондраг детектор, 7 – линза BaF_2 , 8 – усилитель сигнала ионного тока, 9 – кран натекагель, 10 – кювета с конденсатором, 11 – осциллограф С8-2, 12 – датчик масс-спектрометра, 13 – масс-спектрометр, 14 – монохроматор

Эксперимент выполнен на установке, схема которой приведена на рис. 1. Применены два импульсных CO_2 -лазера, атмосферного давления, перестраиваемые по линиям излучения CO_2 . Для увеличения диапазона перестройки лазера L_2 использована смесь молекул $^{12}\text{C } ^{16}\text{O}_2$ и $^{13}\text{C } ^{16}\text{O}_2$ в примерно равных количествах. Энергия импульсов излучения составляет 1 – 2 дж, длительность ~ 100 нсек, хвостовые части импульсов сведены к минимуму применением рабочих смесей с малым содержанием азота. Моменты генерации лазеров L_1 и L_2 синхронизованы.

На рис. 2 показана зависимость ионного тока диссоциации молекул SiF_4 от частоты излучения лазера L_2 при фиксированной частоте лазера L_1 ($1029,4 \text{ см}^{-1}$, линия P38 полосы 001 – 020), попадающей в максимум поглощения колебания ν_3 молекулы SiF_4 . Мощность излучения лазера L_2 при перестройке поддерживалась постоянной и равной 2,0 Вт. Это излучение фокусировалось в кювету с SiF_4 линзой $F = 13 \text{ см}$ (интенсивность в фокусе $\sim 200 \text{ Вт/см}^2$). Излучение резонансного лазера не фокусировалось, его интенсивность в кювете составляла 5 Вт/см^2 . Давление SiF_4 в кювете равнялось 1 тор. Видно, что смещение частоты излучения лазера L_2 от резонанса в сторону низких частот на 80 см^{-1}

приводит к двадцати кратному увеличению ионного тока диссоциации. Характер зависимости видимой люминесценции, сопровождающей диссоциацию, от частоты излучения лазера аналогичен приведенному на рис. 2.

Наблюдение ионного тока диссоциации [5] является удобным способом непосредственного экспериментального изучения рассматриваемых процессов. Вместе с тем, эксперимент показал, что диссоциация молекул SF_6 не сопровождается ионным током и видимой люминесценцией. Поэтому исследования эффекта красного смещения при диссоциации молекул SF_6 был применен динамический масс-спектрометр, датчик которого был непосредственно соединен с облучаемой кюветой. При этом анализировался изотопический состав остаточного газа SF_6 .

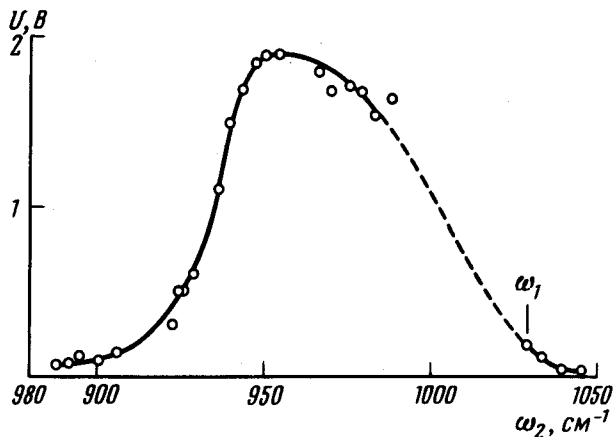


Рис. 2. Зависимость амплитуды ионного тока в SiF_4 от частоты лазера L_2 при фиксированной частоте L_1 1029 см^{-1}

Кювета длиной 20 см, диаметром 1,4 см при исходном давлении SF_6 0,2 тор, облучалась 100 импульсами излучения лазеров L_1 и L_2 . Излучение резонансного лазера L_1 настроенного на частоту $944,2\text{ см}^{-1}$ (линия P20 перехода 001 – 100) не фокусировалось, его интенсивность в кювете составляла $3,5\text{ Вт/см}^2$. Излучение лазера L_2 мощностью 6 Вт фокусировалось в кювету линзой $F = 13\text{ см}$. При перестройке этого лазера с частоты $944,2\text{ см}^{-1}$ на частоту 894 см^{-1} (линия P22 перехода 001 – 100 молекулы $^{13}C\ ^{16}O_2$) коэффициент изотопического обогащения увеличился в семь раз.

Красное смещение частоты лазера L_2 резко снижает порог изотопически селективной диссоциации молекул SF_6 . На рис. 3 приведены масс-спектры остаточного газа SF_6 (осколочный ион SF_5^+) при облучении кюветы несфокусированными потоками излучений лазеров L_1 и L_2 с одинаковыми интенсивностями $3,5\text{ Вт/см}^2$ ($0,5\text{ Дж/см}^2$) для случаев настройки лазера L_2 на $944,2$ и 894 см^{-1} . В первом случае изотопическое обогащение отсутствует, во втором – обогащение по ^{34}S достигает 28 раз.

Результаты экспериментов могут быть объяснены в рамках представлений о зонной структуре квазиконтинуума в спектре высоких колебательных состояний молекул [6]. Частотная зависимость рис. 2 по существу является дисперсионной кривой зонной структуры. Так как центры зон смещены в сторону меньших энергий по отношению к положению уровней энергии гармонического осциллятора, то наблюдаемое красное смещение максимума дисперсионной кривой может являться некоторой усредненной мерой ангармонизма зонной структуры.

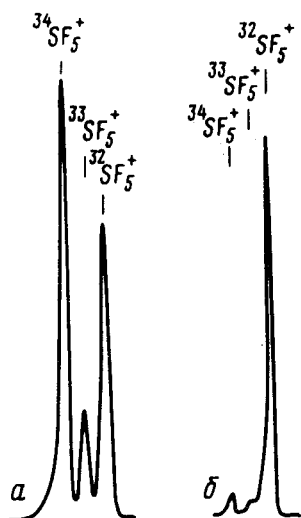


Рис. 3. Масс-спектр остаточного газа SF_6 после облучения 200 синхронизированными импульсами лазеров L_1, L_2 , настроенных на частоты $a - \omega_1 = 944,2 \text{ см}^{-1}, \omega_2 = 894 \text{ см}^{-1}$, $b - \omega_1 = \omega_2 = 944,2 \text{ см}^{-1}$ излучение не фокусируется, интенсивности лазеров одинаковы 3 Вт/см^2

Кроме того при попадании молекулы на нижние уровни зон, диссоциация может облегчаться в силу меньшей величины диссоциационного предела для нижних уровней, более сильно связанных с разлетными состояниями.

Излучение лазера, способствующего набору энергии молекулой в квазиконтинууме, может также стимулировать диссоциацию молекулы [6]. По-видимому целесообразно проведение экспериментов по диссоциации многоатомных молекул излучением трех лазеров, соответствующим трем основным этапам этого процесса – прохождению нижних уровней, набору энергии в квазиконтинууме верхних уровней и диссоциации молекулы.

Физический институт им. П.Н.Лебедева
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
24 марта 1977 г.

Литература

- [1] N.R.Isenor, V.Merchant, R.S.Hallsworth, M.C.Richardson. *Can. J.Phys.*, **51**, 1281, 1973.
- [2] Р.В.Амбарцумян, В.С.Летохов, Е.А.Рябов, Н.В.Чекалин. Письма в ЖЭТФ, **20**, 597, 1974.
- [3] В.М.Акулин, С.С.Алимпиев, Н.В.Карлов, Л.А.Шелепин. ЖЭТФ, **69**, 836, 1975.
- [4] Р.В.Амбарцумян, В.С.Летохов, Г.Н.Макаров, А.А.Пурецкий, Н.П.Фурзиков. Письма в ЖЭТФ, **23**, 217, 1976.
- [5] В.М.Акулин, С.С.Алимпиев, Н.В.Карлов, Н.А.Карпов, Ю.Н.Петров, А.М.Прохоров, Л.А.Шелепин. Письма в ЖЭТФ, **22**, 100, 1975.
- [6] В.М.Акулин, С.С.Алимпиев, Н.В.Карлов, Б.Г.Саргаков. Тезисы докладов VIII Всесоюзной конференции по когерентной и нелинейной оптике. Тбилиси, Май 1976, том II, стр. 112; "Мецниереба" 1976; ЖЭТФ, **72**, 88, 1976