

## ЭФФЕКТ ОПУСТОШЕНИЯ МНОГИХ ВРАЩАТЕЛЬНЫХ СОСТОЯНИЙ ПРИ КОЛЕБАТЕЛЬНОМ ВОЗБУЖДЕНИИ МОЛЕКУЛ В СИЛЬНОМ ИК-ПОЛЕ

*С.С.Алимпиев, В.Н.Баграташвили, Н.В.Карлов,  
В.С.Летохов, В.В.Лобко, А.А.Макаров,  
Б.Г.Сартаков, Э.М.Хохлов*

Экспериментально обнаружено бесстолкновительное возбуждение многоатомных молекул из основного колебательного состояния независимо от их вращательного состояния в лазерном ИК-поле умеренной интенсивности. Такой захват многих вращательных состояний должен привлекаться при анализе бесстолкновительной диссоциации многоатомных молекул.

1. Интенсивные исследования радиационного возбуждения высоких колебательных уровней многоатомных молекул в сильном ИК поле (см. обзоры [1]) показали, что качественно явление может быть объяснено наличием квазиконтинуума колебательных уровней многоатомных молекул и компенсацией ангармонизма на нижних колебательных уровнях. Предложенные в работах [2 – 4] механизмы компенсации предполагают участие в последовательном возбуждении молекул с вращательными квантовыми числами в узком интервале значений. Однако, ряд последних экспериментальных исследований, связанных с эффективностью набора колебательной энергии многоатомными молекулами [5,6], не находят удовлетворительного объяснения в рамках эффекта "узкого горла" [7], связанного с распределением молекул по вращательным состояниям. Это распределение ограничивает число возбуждаемых вращательных состояний величиной  $Ed/2hcB$ , где  $E$  – напряженность поля ИК излучения,  $d$  – дипольный момент перехода,  $B$  – вращательная постоянная.

В этой работе сообщается о прямом экспериментальном наблюдении колебательного возбуждения большого числа ( $\Delta J_{\text{возб}} \gg E^d/2hcB$ ) вращательных состояний ( $\Delta J_{\text{возб}} \gg E^d/2hcB$ ) многоатомных молекул  $\text{SF}_6$ ,  $\text{SiF}_4$ ,  $\text{C}_2\text{H}_4$  в лазерном поле умеренной интенсивности.

2. В эксперименте измерялось изменение пропускания слабого зондирующего излучения непрерывного  $\text{CO}_2$ -лазера кюветой с газом при воздействии на нее излучением импульсного  $\text{CO}_2$ -лазера. Интенсивность зондирующего излучения не превышала  $300 \text{ мвт/см}^2$ . Длительность импульсов возбуждающего излучения составляла  $150 \text{ нсек}$ , интенсивность —  $0,2 - 3 \text{ Мвт/см}^2$ , спектральная ширина —  $0,03 \div 0,04 \text{ см}^{-1}$ . Частоты излучений зондирующего и возбуждающего  $\text{CO}_2$ -лазеров не эстраивались по линиям генерации с помощью дифракционных решеток. Изменение пропускания зондирующего излучения измерялось ИК приемником с временным разрешением в  $100 \text{ нсек}$ .

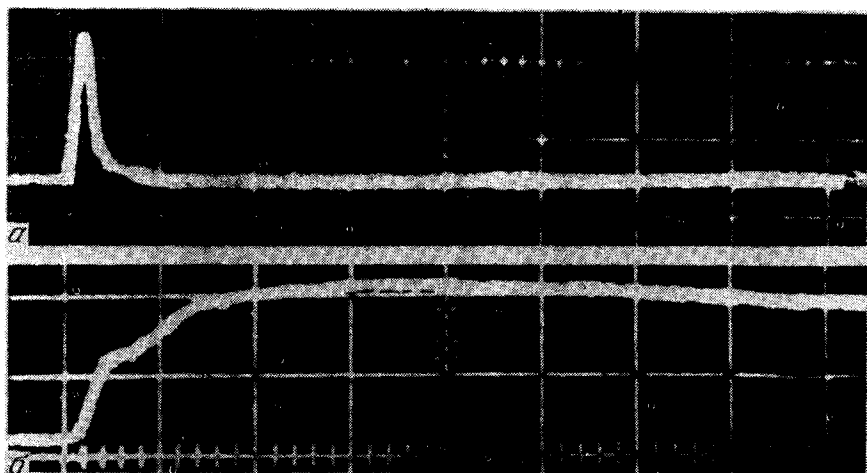


Рис. 1. Осциллограммы лазерного импульса (А) сигнала изменения пропускания кюветы с газом (Б). Развертка  $500 \text{ нсек/дел}$

3. На рис. 1 представлен пример бесстолкновительного просветления кюветы с  $\text{SF}_6$  для зондирующего излучения на частоте  $952,9 \text{ см}^{-1}$  при возбуждении на частоте  $944,2 \text{ см}^{-1}$ . Зондирующее излучение резонансно линии  $R(109)$  полосы  $\nu_3$  молекулы  $\text{SF}_6$ , возбуждающее излучение — линии  $P(63)$  той же полосы. Длительность переднего фронта просветления равна длительности возбуждающего импульса и не зависит от давления  $\text{SF}_6$  в диапазоне  $0,03 \div 0,7 \text{ тор}$ . Эта длительность при  $0,03 \text{ тор}$  в 10 раз короче времени вращательной релаксации молекул  $\text{SF}_6$ . Просветление начи-

нает отчетливо проявляться при интенсивности возбуждения, превышающей  $300 \text{ квт/см}^2$ , его величина ( $\Delta T$ ) растет примерно пропорционально этой интенсивности.

На рис. 2 показана зависимость величины просветления от частоты возбуждающего поля при зондировании на частоте  $952,9 \text{ см}^{-1}$ . Ниже показаны спектр линейного поглощения и спектральная зависимость поглощенной энергии. Видна корреляция между спектрами просветления и поглощенной энергией. Следует отметить, что при возбуждении молекулы в  $Q$ -ветви полосы поглощения не наблюдается аномально большого сигнала просветления.

Аналогичные зависимости наблюдаются при смещении частоты зондирующего излучения в более коротковолновую сторону. При смещении зондирующего излучения в более длинноволновую сторону ( $\nu < 953 \text{ см}^{-1}$ ) наблюдается бесстолкновительное увеличение поглощения (затемнение). Смена просветления затемнением, по-видимому, объясняется тем, что на коротковолновом крыле  $R$ -ветви молекулы  $\text{SF}_6$  основной вклад в поглощение зондирующего излучения вносит колебательный переход  $\nu = 0 \rightarrow \nu = 1$  моды  $\nu_3$ , в то время как в более длинноволновом случае существенны переходы  $\nu = 1 \rightarrow \nu = 2$ ,  $\nu = 2 \rightarrow \nu = 3$  и т. д.

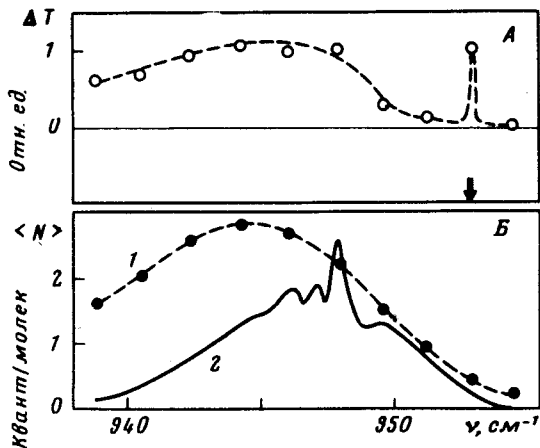


Рис. 2. А. Зависимость амплитуды мгновенного просветления кюветы с газом  $\text{SF}_6$  от частоты возбуждающего поля. Зондирование на лазерной линии  $P(10)$  (указано вертикальной стрелкой). Интенсивность возбуждающего поля  $I_{\text{возб}} = 2,5 \text{ Мвт/см}^2$ ; Давление  $\text{SF}_6 - 0,1 \text{ тор}$ . Б. Спектр поглощенной энергии  $\text{SF}_6$  из возбуждающего поля при  $I_{\text{возб}} = 2,5 \text{ Мвт/см}^2$  (кривая 1) и спектр линейного поглощения  $\text{SF}_6$  (кривая 2).

Наличие бесстолкновительного затемнения также свидетельствует о захвате многих вращательных состояний, однако количественная интерпретация здесь затруднена.

Наблюдаемый эффект нельзя объяснить ролью тепловых полос. Это следует из анализа кривой рис. 2, поскольку при значительном сдвиге частоты возбуждающего поля сигнал просветления меняется незначительно. Кроме того, как показали эксперименты, охлаждение газа до температуры сухого льда не изменило характера наблюдаемого эффекта.

Следует отметить, что этот эффект носит, по-видимому, общий характер; в наших экспериментах он наблюдался также для молекул  $\text{SiF}_4$  и  $\text{C}_2\text{H}_4$ .

4. Наблюдаемый эффект опустошения линий вращательных состояний может быть объяснен только чисто радиационными процессами. На наш взгляд квадратично малая вероятность возбуждения сильно отстроенных вращательных подуровней  $[Ed/2hcB\Delta J_{\text{возб}}]^{1/2}$  может быть скомпенсирована быстрым уводом возбужденных молекул на более высокие колебательные состояния [3, 8]. При вероятности процесса увода  $w$  за время импульса излучения  $\tau$  число захваченных вращательных подуровней составит  $\Delta J_{\text{возб}} = Ed\sqrt{w\tau}/2hcB$ . Полагая для оценки, что  $w$  по порядку величины равна  $Ed/h$ , получаем при интенсивности лазерного излучения в  $10^6 \text{ вт/см}^2$  и для молекул типа  $\text{SF}_6$   $\Delta J_{\text{возб}} = \pm 30$ . В этих же условиях, но без учета быстрого увода возбужденных молекул вверх, эффективно взаимодействовать с полем должны молекулы только в диапазоне  $\Delta J_{\text{возб}} \pm 2$ .

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

Поступила в редакцию  
12 мая 1977 г.

Институт спектроскопии  
Академии наук СССР

### Литература

- [1] Н.В.Карлов, А.М.Прохоров. УФН, 118, 583, 1976; R.V.Ambartzumian, V.S.Letokhov, Chemical and Biocchemical Applications of Lasers 2, 200, 1977 Ed. By C.V.Moore (Academic Press 1977)
- [2] Р.В.Амбарцумян, Ю.А.Горохов, В.С.Летохов, Г.Н.Макаров, А.А.Пурецкий. Письма в ЖЭТФ, 23, 26, 1976.
- [3] В.М.Акулин, С.С.Алимпиев, Н.В.Карлов, Б.Г.Сартаков. ЖЭТФ, 72, 88, 1977; Тезисы VII конференции по нелинейной оптике. Тбилиси, май 1976, т. 2, 112.
- [4] С.Д.Cantrell, Н.В.Galbraith, Opt. Comm., 18, 513, 1976.
- [5] В.М.Баграташвили, И.Н.Князев, В.С.Летохов, В.В.Лобко. Opt. Comm., 18, 525, 1976.
- [6] В.М.Акулин, С.С.Алимпиев, Н.В.Карлов, А.М.Прохоров, Б.Г.Сартаков, Э.М.Хохлов. Письма в ЖЭТФ, 25, 428, 1977.
- [7] В.С.Летохов, А.А.Макаров. ЖЭТФ, 63, 2064, 1972.
- [8] В.С.Летохов, А.А.Макаров. Opt. Comm., 17, 250, 1976.