

ОБНАРУЖЕНИЕ ЭЛЕКТРОННО-КОЛЕБАТЕЛЬНЫХ ПЕРЕХОДОВ В СПЕКТРЕ КОМБИНАЦИОННОГО РАССЕЯНИЯ СВЕТА АДСОРБИРОВАННЫМИ АТОМАМИ КСЕНОНА

*Н.В.Карлов, А.Н.Орлов, Ю.Н.Петров,
А.М.Прохоров, М.А.Якубова*

В спектре комбинационного рассеяния излучения аргонового лазера атомами ксенона, адсорбированными сильно развитой поверхностью пористого стекла, наблюдались полосы, обусловленные электронно-колебательными переходами. В стоксовой области наиболее интенсивна полоса на 1800 см^{-1} , в антистоксовой – на 2200 см^{-1} . Ширина полос составляет $300 \div 400 \text{ см}^{-1}$.

Адсорбция газа на поверхности конденсированного тела приводит, как правило, к изменению спектральных свойств газа, которое характеризует взаимодействие адсорбата с поверхностью.

Особый интерес представляют исследования комбинационных спектров адсорбированных атомов, для которых в газовой фазе комбинационное рассеяние отсутствует. В этом случае линии комбинационного рассеяния на адсорбированных атомах обусловлены только их взаимодействием с адсорбентом. Так, например, нами наблюдалось комбинационное рассеяние света на колебаниях атомов ксенона, адсорбированных в пористом стекле [1].

В этой работе сообщается о наблюдении других линий комбинационного рассеяния (КР) на атомах ксенона в той же пористой структуре, обусловленных электронно-колебательными переходами.

В эксперименте использовался аргоновый лазер ЛГ-68 и спектрофотометр ДФС-24, предназначенный для исследования КР. Экспериментальная установка, методика очистки образца пористого стекла и заполнения его ксеноном описана в работе [1]. Диаметр пор образца – 80 \AA , относительный объем пор – 0,2.

Исследование КР проводилось на длинах волн 514,5; 496,5 и 488,0 нм мощность облучения ~ 200 мВт. Структура спектров рассеяния света всех трех длин волн идентична.

Спектр рассеяния стеклянного пористого образца до заполнения его ксеноном показан на рис.1, *а*. Широкая полоса рассеяния, лежащая в области 500 – 600 нм, обусловлена люминесценцией посторонних примесных веществ в порах и типична для многих пористых прозрачных материалов. Слабые полосы КР характерные для обыкновенного и пористого стекол, обычно наблюдаемые на фоне этой люминесценции, в условиях нашего эксперимента не наблюдались. После заполнения пористого образца ксеноном наблюдаются интенсивные полосы КР адсорбированного ксенона (лежащие вне области появления полос КР стекла) (рис.1, *б*).

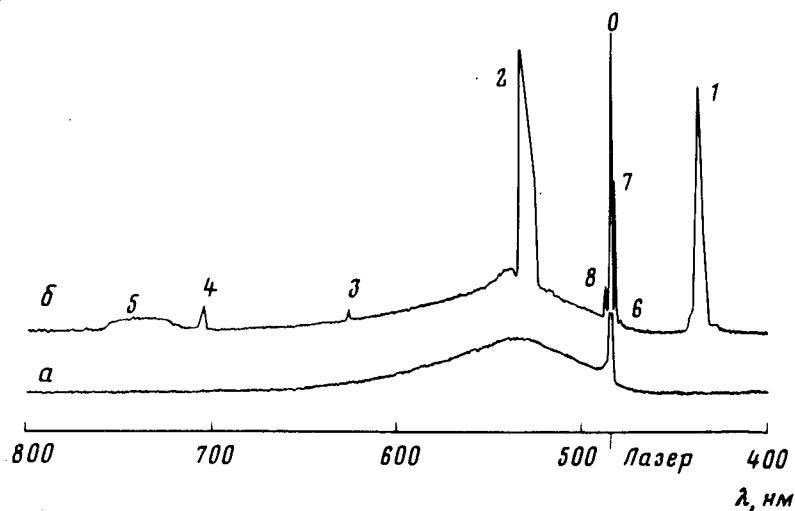


Рис.1. Спектры рассеяния пористого стекла (*а*) и ксенона; адсорбированного в пористом стекле (*б*). Разрешение – 7 см^{-1} , постоянная времени – 2 сек , скорость записи – $66,7 \text{ \AA/мин}$, длина волны лазера – $488,0 \text{ нм}$

Интенсивность сильных полос КР линейно зависит от интенсивности лазерного облучения в диапазоне $10 \div 200$ мВт и составляет $\sim 10^{-6}$ от интенсивности рассеяния на частоте лазера.

Пики 7 и 8 лежат в диапазоне $80 \div 100 \text{ см}^{-1}$ и представляют антистоксову и стоксову компоненты КР на колебаниях атомов ксенона в яме адсорбционного потенциала, пик 6 – антистоксовый обертона этих колебаний [1], нами также наблюдался стоксовый обертона. Интенсивность этих пиков при облучении светом 514,5 нм в два раза больше, чем при облучении светом 488,0 нм такой же мощности, интенсивность 1 \div 5 полос – в три раза.

Полосы 1 \div 5 имеют сложную структуру (на рис.2 представлены спектрограммы полос 1 \div 4, прописанные на медленных скоростях), однако обладают отдельными характерными деталями: четкие максимумы, резкие границы. Естественно предположить, что широкие полосы 1 и 2

представляют собой наложение отдельных более узких полос, и произвести идентификацию граничных полос. Оказалось, что частоты максимумов и границ полос с хорошей точностью совпадают с частотами переходов между возбужденными уровнями атомов ксенона. Эти переходы следующие:

$$\begin{aligned}
 5d [3/2]_2^o &\rightarrow 6p [5/2]_2 & (2203,4 \text{ см}^{-1}) \\
 6p [3/2]_2 &\rightarrow 6s' [1/2]_1^o & (2030,5 \text{ см}^{-1}) \\
 6p [5/2]_2 &\rightarrow 5d [1/2]_1^o & (1864,3 \text{ см}^{-1}) \\
 6s' [1/2]_o &\rightarrow 6p [5/2]_2 & (1923,5 \text{ см}^{-1}) \\
 8p [3/2]_2 &\rightarrow 8s [3/2]_2^o & (1566,4 \text{ см}^{-1}) \\
 7p [1/2]_1 &\rightarrow 8p [1/2]_o & (4629,4 \text{ см}^{-1}) \\
 7p [1/2]_1 &\rightarrow 9p [1/2]_o & (6360,3 \text{ см}^{-1})
 \end{aligned}$$

(Для определения уровней использовались таблицы спектральных линий [2]). Многие переходы ложатся внутрь широких полос 1 и 2 и на их хвосты, но они плохо спектрально разрешены. С уверенностью можно утверждать, что наблюдаемый спектр рассеяния является спектром КР на электронно-колебательных переходах адсорбированных атомов ксенона.

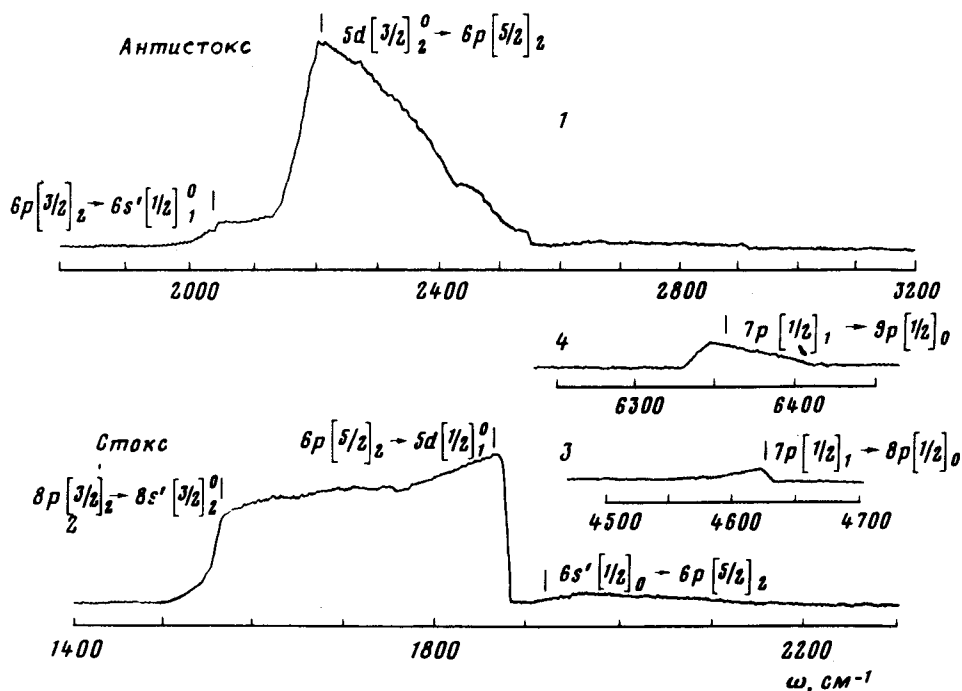


Рис.2. Спектр рассеяния адсорбированного ксенона. Разрешение — 2 см^{-1} , постоянная времени — 4 сек, скорость записи — $15 \text{ см}^{-1}/\text{мин}$, длина волны лазера — $488,0 \text{ нм}$. (Номера полос соответствуют проставленным на обзорном спектре рис.1)

Отметим некоторые особенности наблюдаемого рассеяния. Комбинационные переходы происходят среди нижних возбужденных уровней ксенона, отстоящих, однако, на большом расстоянии от основного (~ 10 эВ). Комбинационные переходы с уровней $6s^2$, $6p [1/2]_1$, $6p [5/2]_2$ при облучении светом 514,5 нм и с $6s^2$, $6p [1/2]_1$, при облучении светом 488,0 нм могут происходить через возбуждение высоких предионизационных уровней, а переходы с более высоких уровней — через ионизацию (порог ионизации ксенона $97834,4 \text{ см}^{-1}$). Комбинационные переходы, наблюдаемые в антистоксе, отсутствуют в стоксе и наоборот, т.е. переход между двумя уровнями если существует, то только в одну сторону. При длительном воздействии лазерного излучения в одно образца интенсивность антистоксовых полос уменьшается, при смещении луча на новый участок образца вид спектра рассеяния восстанавливается.

Комбинационные переходы в адсорбированном ксеноне не могут быть объяснены многофотонным поглощением: интенсивность лазерного излучения мала ($\sim 100 \text{ Вт/см}^2$), уровни резонансные излучению аргонного лазера в ксеноне отсутствуют. Существует лишь один уровень $5d [5/2]_2^o$ ($81929,1 \text{ см}^{-1}$) близкий по энергии к четырем квантам излучения 488,0 нм ($81969,6 \text{ см}^{-1}$), который, однако, никак не проявляется при КР, переходы с него отсутствуют. Кроме того на отсутствие резонансов указывает аналогичность спектров КР света разных частот.

Следует предположить, что атомы адсорбированного ксенона находятся в возбужденном состоянии или приобретают энергию в момент адсорбции. Причем распределение возбуждения по электронным уровням неравновесное, существует инверсия в заселении отдельных уровней. Интересно, что самый большой пик в антистоксе КР (его стоксовый аналог отсутствует) соответствует переходу, на котором получена интенсивная генерация в He — Xe-лазере. Воздействие лазерного излучения приводит к перераспределению адсорбированных атомов ксенона по энергетическим уровням. Изучение механизма возбуждения ксенона на поверхности требует проведения детального исследования адсорбции инертных газов.

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

Поступила в редакцию
29 июня 1981 г.

Литература

- [1] Карлов Н.В., Орлов А.Н., Петров Ю.Н., Прохоров А.М., Якубова М.А. Письма в ЖЭТФ, 1981, 34, 13.
- [2] Стриганов А.Р., Свентицкий Н.В. Таблицы спектральных линий. М., Атомиздат, 1966.