

ОБРАЗОВАНИЕ ИОНОВ ПРИ ВОЗДЕЙСТВИИ ИК ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ НА МНОГОАТОМНЫЕ МОЛЕКУЛЫ И ЭЛЕКТРИЧЕСКОЕ РАЗДЕЛЕНИЕ ИЗОТОПОВ

*В.М.Акулин, С.С.Алимов, Н.В.Карлов, Н.А.Карпов
Ю.Н.Петров, А.М.Прохоров, Л.А.Шелепин.*

Наличие квазинепрерывной последовательности уровней многоатомных молекул при высокой степени возбуждения объясняет эффект "мгновенной" диссоциации и приводит к выводу о возможности существования эффекта "мгновенного" образования ионов при воздействии интенсивного ИК лазерного излучения на молекулы. Этот эффект может быть использован для разделения изотопов.

При резонансном возбуждении колебательных уровней молекул ИК лазерным излучением в качестве основного механизма перераспределения резонансно поглощенной энергии обычно рассматриваются столкновения [1, 2]. Вместе с тем, недавно [3, 4] была экспериментально обнаружена "мгновенная" (бесстолкновительная) диссоциация молекулы в поле интенсивного ИК лазера излучения, происходящая за времена, меньше времени колебательного $V-V$ -обмена. Очевидно, что при этом существенную роль играет радиационный механизм возбуждения высших колебательных уровней.

В этом сообщении на основе анализа радиационного механизма воздействия резонансного излучения на многоатомные молекулы делается вывод о возможности существования эффекта "мгновенной" ионизации молекул под действием излучения с квантами много меньшими энергии диссоциации (и тем самым, ионизации) молекул, а также рассматрива-

ется возможность электрического разделения изотопов молекул, под-
вергающихся лазерному облучению.

В многоатомных молекулах типа BCl_3 , SF_6 и т. д. общее число ко-
лебательных уровней, в том числе комбинационных, соответствующих
возбуждению S колебательных квантов при l колебательных модах, за-
дается биномиальным коэффициентом C_{s+l+1}^s и достаточно велико
при высокой степени возбуждения. Учет вращательной структуры при-
водит к тому, что на уровне возбуждения, соответствующем $(3+4)h\nu$,
среднее расстояние между уровнями становится соизмеримым с одно-
родной шириной вращательного уровня, и уровни сливаются в единый
квазинепрерывный фон. При этом оказывается возможным последова-
тельное радиационное возбуждение этих уровней с шагом, равным энер-
гии возбуждающего лазерного кванта $h\nu$, которому резонансен переход
из основного в первое возбужденное колебательное состояние. В силу
ангармонизма молекулы последующие второго — третьего уровня выпа-
дают из резонансов, но их прохождение возможно при достаточно интен-
сивном лазерном излучении, приводящем к "уширению" уровней полем.

Таким образом, возможно чисто радиационное возбуждение высших
колебательных уровней многоатомных молекул вплоть до диссоциации,
причем при возбуждении нескольких низлежащих уровней реализуется
случай больших расстройек, но разрешенных переходов, а при засе-
лении более высоких уровней реализуется случай запрещенных резонан-
сных переходов.

Выше границы диссоциации лежит область электрон-колебательно-
вращательных уровней, для которой характерна также высокая плотность
состояний. Число электронных термов для многоатомных молекул типа
 BCl_3 , SF_6 , SiF_4 превышают 10^2 . Эти термы делятся на связывающие
и разлетные. Для связывающих термов весьма вероятна структура, при
которой более высокая потенциальная яма заходит внутрь более низкой,
как это имеет место в ряде двухатомных молекул [5]. При этом обра-
зуется квазинепрерывная последовательность колебательно-вращатель-
ных уровней вплоть до границы ионизации. Тогда при учете только свя-
зывающих термов становится возможным радиационное возбуждение при
резонансных переходах в квазинепрерывной последовательности уров-
ней аналогично тому, как это происходит в последовательности уровней
основного электронного состояния. Таким образом излучение, соответ-
ствующее колебательным квантам молекулы, заселяет колебательные
уровни возбужденных электронных состояний молекулы. В результате
осуществляется "мгновенная" ионизация.

Попадание молекулы на различные термы (время жизни $\sim 10^{-15}$ сек)
означает ее распад и выход из канала радиационного возбуждения. Сле-
дует, однако, иметь в виду, что из-за большой ширины разлетного терма
(~ 1 эв) переходы на них маловероятны. Тем не менее, необходимо учи-
тывать этот канал, равно как и неадиабатические процессы на связываю-
щих термах. Видимо, необычные продукты "мгновенной" диссоциации,
наблюдаемые экспериментально [6], могут быть объяснены сильным пе-
ревозбуждением молекулы по сравнению с возбуждением ее в пределах
основного электронного состояния. Кроме того, фрагменты, получаемые

при диссоциации сильно перевозбужденной молекулы, легко ионизируются, в результате чего оба канала приводят к эффекту "мгновенного" бесстолкновительного образования ионов.

Предварительный эксперимент показал возникновение ионов и электронов в газе BCl_3 при давлениях от 0,01 до 0,1 тор при облучении импульсами сфокусированного излучения CO_2 -лазера длительностью 200 нсек и мощностью $10^7 + 10^8$ вт.

Так как рассматриваемый процесс начинается с резонансного возбуждения первого колебательного уровня, то селективность возбуждения сохраняется вплоть до ионизации. Это может быть использовано для разделения изотопов электрическим полем. При этом следует иметь в виду необходимость исключения столкновений, например, путем применения молекулярных пучков. Кроме того, интенсивность лазерного излучения должна быть достаточной для "уширения" уровня молекул одного изотопического состава и недостаточной для эффективного возбуждения молекул другого состава.

Теоретический анализ "мгновенной" ионизации и диссоциации привел к выводу о существовании как порога по интенсивности лазерного излучения, так и порога по величине интеграла от огибающей импульса. После превышения порогов населенности в среднем распределены приблизительно равномерно по всем уровням энергии, кратным $h\nu$. В возможном случае разрыва квазинепрерывной последовательности уровней прохождение соответствующего интервала энергий может привести к существованию пороговой интенсивности, характерной для многофотонных процессов.

Целесообразно отметить, что радиационное возбуждение молекул ИК лазерным излучением вплоть до ионизации может быть эффективным методом получения электронно-возбужденных молекул для стимулирования химических реакций, в частности, для больших молекул и биологических объектов.

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

Поступила в редакцию
19 июня 1975 г.

Литература

- [1] Б.Ф.Гордиец, А.И.Осипов, Е.В.Ступоченко, Л.А.Шелепин. УФН, 108, 655, 1972.
- [2] Б.Ф.Гордиец, А.И.Осипов, В.Я.Панченко. ЖЭТФ, 65, 894, 1973.
- [3] N.R.Isenor, V.Merchant, R.S.Hallsworth, M.C.Richardson. Canad J. Phys., 51, 1281, 1973.
- [4] Р.В.Амбарцумян, В.С.Летохов, Е.А.Рябов, Н.В.Чекалин. Chem. Phys. Lett., 25, 515, 1974.
- [5] Б.М.Смирнов. Физика слабоионизированного газа. М., изд. Наука, 1972.
- [6] Р.В.Амбарцумян, В.С.Летохов, Е.А.Рябов, Н.В.Чекалин. Письма в ЖЭТФ, 20, 597, 1974.