

О ВОЗМОЖНОСТИ СЕЛЕКТИВНОГО ВОЗБУЖДЕНИЯ КОЛЕБАНИЙ МОЛЕКУЛ В ПОЛЕ С ИЗМЕНЯЮЩЕЙСЯ ВО ВРЕМЕНИ ЧАСТОТОЙ

В.Н.Луговой, В.Н.Стрельцов

Обсуждается возможность селективного возбуждения заданного колебательного уровня молекул газа невысокого давления в электромагнитном поле инфракрасного диапазона с изменяющейся во времени частотой.

В последнее время задача селективного возбуждения колебательных уровней молекул привлекла большое внимание (см., например [1, 2]). В настоящей статье обращается внимание на возможность осуществления селективного возбуждения заданного колебательного уровня молекул газа при их взаимодействии с внешним электромагнитным полем, частота которого адиабатически изменяется во времени.

Рассмотрим колебания молекул газа во внешнем линейно-поляризованном электромагнитном поле $E = \mathcal{E}_0 \cos(\omega_0 + \kappa(t))t$. Частоты $\omega_{n, n+1}$ колебательных переходов каждой из этих молекул (для выбранного нормального колебания) из-за ангармонизма уменьшаются с ростом номера колебательного уровня n и могут быть записаны в виде:

$$\omega_{n, n+1} \approx \omega_e (1 - 2X_e n), \quad (1)$$

где ω_e — частота перехода между основным и первым возбужденным колебательными уровнями. Мы будем иметь ввиду случай относительно низких давлений, когда в каждом колебательном уровне разрешена вращательная структура. Кроме того будем предполагать выполненными соотношения:

$$\left| \frac{d\kappa}{dt} \right| \ll \left(\frac{d}{\hbar} \right)^2 \mathcal{E}_0^2, \quad \frac{d\kappa}{dt} < 0, \quad (2a)$$

$$\left| \frac{d\kappa}{dt} \frac{\hbar}{d_{12} \mathcal{E}_0} \right| \ll \Delta\omega_{\text{вр}}, \quad 2\omega_e X_e, \quad (2b)$$

$$\tau_{\text{имп}} \ll \tau_{\text{рел}}. \quad (2c)$$

Здесь d_{12} — дипольный матричный элемент колебательного перехода¹⁾.

¹⁾Ниже для простоты предполагается, что величина d_{12} одинакова для всех вращательных подуровней колебательного перехода $n \rightarrow n + 1$ и не зависит от номера n .

Условие (2а) означает адиабатическое (см., например [3]) уменьшение частоты возбуждающего излучения; условие (2б), означает, что за время инвертирования в системе двух уровней (см. ниже) изменение частоты поля намного меньше, как расстояния $\Delta\omega_{вр}$, между соседними вращательными подуровнями, так и ангармонизма $2\chi_e\omega_e$; неравенство (2с) определяет соотношение между длительностью $\tau_{имп}$ возбуждающего импульса и временем релаксации $\tau_{рел}$ рассматриваемых вращательных подуровней. В соответствии с (1) при уменьшении частоты возбуждающего излучения будут возникать последовательные резонансы между полем падающего пучка и вращательными компонентами соседних пар колебательных уровней. При этом с учетом (2) весь процесс взаимодействия поля с рассматриваемой многоуровневой системой можно разбить на последовательные интервалы времени, внутри которых эволюция волновой функции молекулы сводится к зависимости

$$\Psi(t) = \sum_{j, j', m, m'} a_{njm}(t) \Psi_{njm} + a_{n+1, j' m'} \Psi_{n+1, j' m'} \quad (2)$$

где Ψ_{njm} — невозмущенная волновая функция n -го колебательного стационарного состояния этой молекулы со значением j полного момента и значением m проекции этого момента на направление вектора поляризации поля.

Уравнение Шредингера для $\Psi(t)$ с учетом правил отбора для дипольных переходов и дополнительного требования $\Delta j = +1$, связанного с тем, что частота поля подходит к частоте данного колебательного перехода сверху (и одновременно выполняется (2б)), сводится к системе независимых уравнений для пар коэффициентов $a_{njm}, a_{n+1, j+1, m'}$ описывающих поведение невырожденных двухуровневых систем в поле адиабатической накачки. Исходя из решения соответствующих уравнений (см., например, [3]), находим ²⁾

$$|a_{n+1}|^2 - |a_n|^2 = - \frac{\kappa \hbar}{d_{12} \mathcal{E}_0} \frac{|\tilde{\alpha}_n|^2}{\sqrt{1 + \frac{\kappa^2 \hbar^2}{d_{12}^2 \mathcal{E}_0^2}}} \quad (3)$$

где $|a_k|^2$ — полная заселенность k -го колебательного уровня. Формула (3) определяет эволюцию во времени соответствующей разности заселенностей n -го и $n+1$ -го колебательных уровней в рассматриваемом интервале времени при условии, что заселенность n -го уровня, достигнутая за предыдущие интервалы времени, равна a_n^2 . Тем самым ра-

²⁾ Можно показать также, что при учете постоянного дипольного момента, возможного в стационарных состояниях молекул, выражение подобного вида остается справедливым и при комбинационном резонансе $\omega_0 + \kappa(t) \approx$

$$\approx \frac{1}{2} \omega_{n, n+1}$$

венство (3) дает рекуррентное соотношение, из которого видно, что в условиях (2) при изменении частоты внешнего поля от значения, превышающего частоту основного перехода $0 \rightarrow 1$, до частоты перехода $N - 1 \rightarrow N$ происходят последовательные полные (в рассматриваемых приближениях) переходы молекул с предыдущего уровня на соседний вышележащий уровень, так что к концу процесса практически все молекулы оказываются сосредоточенными на заданном уровне с номером N . При этом, очевидно, распределение молекул по вращательным подуровням, вообще говоря, становится тоже неравновесным³⁾.

Рассмотрим численный пример. Примем $d_{12} = 0,3 \cdot D$, $2X_e \omega_e \sim \Delta \omega_{вр} = 10^{12}$ рад/сек, давление газа $P = 10^{-2}$ тор (при этом можно положить $\tau_{ред} \sim 10^{-6}$ сек [4]), $\tau_{имп} = 0,3 \cdot 10^{-6}$ сек. Тогда для селективного возбуждения колебательного уровня с номером N в условиях (2) достаточно следующее значение интенсивности $\mathcal{E}_0^2 = 3N \cdot 10^2$ CGSE при

$$\left| \frac{dk}{dt} \right| \sim \frac{2X_e \omega_e N}{\tau_{имп}}. \text{ Например, при } N = 10 \text{ находим } \mathcal{E}_0^2 = 3 \cdot 10^3 \text{ CGSE}$$

$$\text{(т. е. } I_0 \approx 3 \cdot 10^5 \text{ вт/см}^2\text{)}, \left| \frac{dk}{dt} \right| \approx 3 \cdot 10^{19} \text{ рад/сек}^2.$$

В заключение заметим, что при возбуждении достаточно высокого колебательного уровня может представлять интерес, также, процесс последующей диссоциации молекул под влиянием столкновений с остальными молекулами или дополнительного внешнего воздействия.

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

Поступила в редакцию
21 февраля 1975 г.

Литература

- [1] Н.В. Карлов, Ю.Б. Конев, А.М. Прохоров. Письма в ЖЭТФ, **14**, 178, 1971; С.С. Алимпов, Н.В. Карлов, А.М. Прохоров, Б.Г. Сарпанов. Письма в ЖЭТФ, (в печати).
- [2] А.Н. Ораевский, А.А. Степанов, В.А. Щеглов. Квантовая электроника, **1**, 1117, 1974; **1**, 1585, 1974.
- [3] E. V. Treacy. Phys. Lett., **27A**, 421, 1968.
- [4] M. M. T. Loy. Phys. Rev. Lett., **32**, 814, 1974.

³⁾ Заметим, что наложенное выше требование $\Delta j = +1$ вообще оправдано лишь при дополнительном условии $\Delta \omega_{вр} > 2X_e \omega_e$. При другом условии: $\Delta \omega_{вр} \leq 2/3 X_e \omega_e$ результирующий вращательный подуровень, как легко видеть, отвечает требованию $\Delta j = 0$. При этом эволюция заселенностей колебательных уровней описывается системой соотношений вида (3), поэтому описанные результаты сохраняют силу и в данном случае за исключением того, что в этих условиях распределение молекул в данном колебательном уровне неравновесно лишь по значениям магнитного квантового числа.