

ИЗМЕРЕНИЕ СЕЧЕНИЯ ПОСТУПАТЕЛЬНОЙ РЕЛАКСАЦИИ ПО СУЖЕНИЮ ДИКЕ В КАРС СПЕКТРАХ МОЛЕКУЛЫ D₂

М.Р.Маликов, А.Д.Савельев, В.В.Смирнов

Приводятся результаты исследования с разрешением 0,001 см⁻¹ зависимости ширин линий Q₀ и Q₂ молекулы D₂ от плотности в диапазоне от 0,01 до 40 амага. Выделен вклад в ширину линий обусловленный поступательной релаксацией и измерено сечение этого процесса.

Одним из интересных спектральных проявлений столкновительных молекулярных процессов, исследованных в последнее время, является эффект сужения контура спектральной линии в условиях увеличивающейся плотности газа. (Сужение доплеровского контура – "сужение Дике", впервые рассмотренное в работе ¹ и сужение контура изотропной Q-ветви, впервые объясненное в работе ²). Их важность обусловлена той дополнительной информацией, которая извлекается из наличия и вида сужающейся с плотностью ширины линии при выделении вкладов в форму контура различных столкновительных процессов и определение из сечений.

Основной целью настоящей работы является измерение сечения поступательной релаксации молекулы D₂, проведенное на основе детального изучения уширения с плотностью линий Q₀ и Q₂ колебательно-вращательных переходов в области "сужения Дике". Теоретическое рассмотрение формы, ширины и сдвига контура линии при переходе от доплеровского уширения к однородному столкновительному с учетом сужения Дике было проведено в работах ^{1, 3 – 6}. Экспериментально, в спектрах КР этот эффект наблюдался лишь для молекул H₂ и D₂ ^{7, 8}. Детальные экспериментальные исследования контуров отдельных вращательных линий в газах низкой плотности в спектрах КР были ранее затруднены ввиду ограниченности спектрального разрешения и чувствительности спектроскопии спонтанного КР. Однако, развитие метода когерентного антистоксового рассеяния света (КАРС) существенно изменило ситуацию и дало возможность проводить исследование контура линий с аппаратурным разрешением 0,001 см⁻¹ в диапазоне плотностей 10⁻² – 10² амага ^{9 – 11}. Применение метода КАРС позволило нам прослеживать форму контура в динамическом диапазоне 10³ – 10⁴, что соответствует отстройкам от центра линии в сотни полуширин. Фрагменты экспериментальных спектров для линии Q₂ представлен на рис. 1. Измеренные на основе подобных спектров зависимости ширин линий Q₀ и Q₂ от плотности в ди-

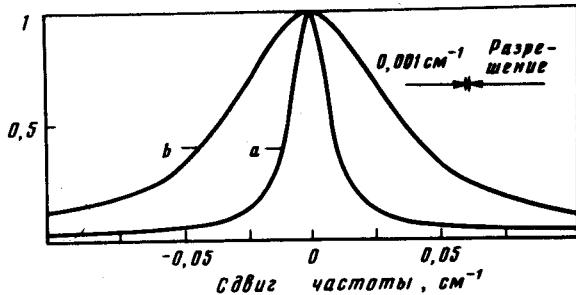


Рис. 1. Форма контура линии Q (2) КАРС спектра дейтерия полученная при плотности: a – 0,1 амага, b – 15 амага

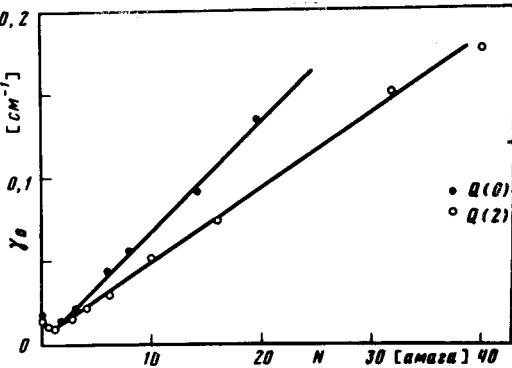


Рис. 2. Зависимость ширин линий Q (0) и Q (2) дейтерия от плотности

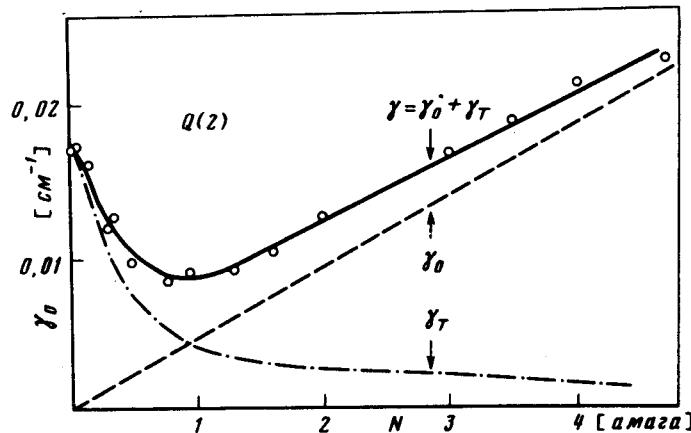


Рис. 3. Зависимость ширин γ , γ_0 и γ_T для линии Q (2) дейтерия в области сужения Дике

апазоне от 0,01 до 40 амага приведены на рис. 2. Контуры линий при плотностях от 0,01 до 0,1 амага с хорошей точностью описываются гауссовым профилем (см. рис. 1, a) с шириной $\gamma = (18 \pm 1,5) \cdot 10^{-3}$ см⁻¹, что указывает на чисто додлеровский механизм уширения линии в этой области плотностей. При этом однородная ширина γ , скрытая додлеровским контуром, обусловлена вращательно-неупругими столкновениями (происходящими с сечениями σ_r) и упругими столкновениями, изменяющими вектор скорости (с сечениями σ_v) и фазу колебательного движения (с сечениями σ_ϕ). По мере увеличения плотности, когда частота столкновений становится сравнимой с додлеровской шириной контура, дальнейшее ее увеличение приводит к сужению додлеровского контура. При этом вклад в ширину контура, обусловленный поступательной релаксацией уменьшается и контур линии становится однородно уширенным лишь за счет вращательно-неупругих столкновений и столкновений, возмущающих фазу колебательного движения. Эта область соответствует экспериментальным плотностям от 10 амага и выше. Контур линии в этой области, как видно из рис. 1, b имеет форму, близкую к лоренцевой. При дальнейшем увеличении плотности ширина контура возрастает линейно с плотностью (см. рис. 2). По наклону этой зависимости были измерены коэффициенты уширения $d\gamma_0/dN$ линий Q_0 и Q_2 значения которых составляют

$$\frac{d\gamma_0}{dN}(Q_0) = (6,7 \pm 0,1) \cdot 10^{-3} \text{ см}^{-1}/\text{амага} \quad \text{и} \quad \frac{d\gamma_0}{dN}(Q_2) = (4,6 \pm 0,1) \cdot 10^{-3} \text{ см}^{-1}/\text{амага}.$$

Суммарное сечение рассчитанное из соотношения $\gamma_0 = \frac{N(\sigma_r + \sigma_v) < v >}{2\pi c}$, где $< v > = \sqrt{\frac{16kT}{\pi m}}$,

m – масса молекулы, N – плотность составляет $\sigma_{r+v}(Q_0) = (1,37 \pm 0,03) \cdot 10^{-16} \text{ см}^2$ и

$\sigma_{r+v}(Q_2) = (0,94 \pm 0,02) \cdot 10^{-16} \text{ см}^2$. В области промежуточных значений плотностей от 0,1 до 10 амага (см. рис. 2 и рис. 3) для линий Q_0 и Q_2 наблюдается сужение Дике с минимальными значениями ширин $\gamma(Q_0) = (10 \pm 1,5) \cdot 10^{-3} \text{ см}^{-1}$ и $\gamma(Q_2) = (9 \pm 1,5) \cdot 10^{-3} \text{ см}^{-1}$, достигаемыми соответственно при 0,75 и 0,9 амага. Следует отметить, что форма контура в этой области в пределах экспериментальной точности остается симметричной. Путем экстраполяции линейной зависимости γ_0 к нулевой плотности из общей ширины γ (см. рис. 3) была выделена доля уменьшающегося с плотностью вклада в ширину $\gamma_T = \gamma - \gamma_0$. Используя соотношение $\gamma_T = 4\pi \langle v \rangle v_0^2 / 3c^3 N \sigma_T^{-3}$, где $v_0 = 2986 \text{ см}^{-1}$ – частота колебательного перехода молекулы D_2 , нами было рассчитано сечение поступательной релаксации величина которой составляет $\sigma_T(Q_0) = (20,7 \pm 0,5) \cdot 10^{-16} \text{ см}^2$ и $\sigma_T(Q_2) = (21,1 \pm 0,5) \cdot 10^{-16} \text{ см}^2$. Для сравнения приводим значение сечения $\sigma_T = 20,2$, полученное на основе соотношения: $\eta = \langle v \rangle m / 3\sigma_T \sqrt{2}$ из экспериментов по измерению коэффициента вязкости η^{12} .

Литература

1. Dicke R.H. Phys. Rev., 1953, **89**, 472.
2. Алексеев В.А., Собельман И.И. ЖЭТФ, 1968, **55**, 1973.
3. Раутян С.Г., Собельман И.И. УФН, 1966, **90**, 209.
4. Galatry L. Phys. Rev. 1961, **122**, 1218.
5. Gersten J.I., Foley H.M. JOSA, 1968, **58**, 933.
6. Алексеев В.А., Малюгин В.А. ЖЭТФ, 1981, **80**, 897.
7. Murray J.R., Javan A. J. Mol. Spectroscopy, 1972, **42**, 1.
8. Lallement P., Simova P. J. Mol. Spectroscopy, 1968, **26**, 262.
9. De Martini F., Giuliani G.P., Santamato E. Opt. Comm., 1972, **5**, 126.
10. Henesian M.A., Kulevskii L., Byer R., Herbst R.L. Opt. Comm., 1976, **18**, 225.
11. Krynetsky B.B., Kulevskii L.A., Mishin V.A., Prokhorov A.M., Savel'ev A.D., Smirnov V.V. Opt. Comm., 1977, **21**, 225.
12. Менабе Н.Е. АЭ, 1965, **19**, 453.