

01;07;10;12

©1995

ВОЗБУЖДЕНИЕ АНГАРМОНИЧЕСКОГО ОСЦИЛЛЯТОРА УЛЬТРАКОРОТКИМИ ИМПУЛЬСАМИ ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

Ф. Ф. Барышников

1. Введение

Селективное воздействие резонансного излучения на молекулу позволяет возбуждать ее, ионизировать, диссоциировать, что может представлять значительный практический интерес для разработки новых высокоэффективных методов воздействия на вещество [1,2].

Для возбуждения колебательных состояний молекулы перспективным является многофотонное возбуждение многочастотным излучением инфракрасных лазеров на свободных электронах (ЛСЭ) [3]. Существенным препятствием при этом является релаксация возбуждения, например, из-за столкновений.

Для жидкостей характерное время релаксации может быть порядка нескольких или даже долей пикосекунд, поэтому возбуждение молекул в растворе, как правило, неэффективно. Для решения проблемы релаксации желательна максимально укорачивать длительность возбуждающего импульса. Развитие физики лазеров на свободных электронах (ЛСЭ) позволило приступить к экспериментам подобного рода [3].

Излучение электронов в ондуляторе ЛСЭ обладает относительно широким частотным спектром. Поэтому из исходного импульса излучения можно сформировать короткий импульс с длительностью, меньшей времени релаксации, используя обычную технику компрессии волновых пакетов. С другой стороны, наличие в спектре излучения набора частот благоприятно для возбуждения молекулы, поскольку реальная молекула не является идеальным линейным осциллятором. Вследствие ангармонизма молекулярного потенциала частоты последовательных переходов несколько отличаются друг от друга.

В настоящей работе приведены результаты теоретического рассмотрения задачи о возбуждении изолированной колебательной молекулярной моды короткими в масштабе

молекулярных времен лазерными импульсами. Результаты сравниваются с экспериментальными данными, полученными в Лаборатории ЛСЭ Дюкского университета, США [3].

2. Возбуждение ультракороткими световыми импульсами

Известно, что классическая механика позволяет точно учитывать даже существенно квантовые эффекты для идеального линейного осциллятора [4]. В работе [5] проанализированы аргументы в пользу классического подхода и для неидеального осциллятора. Для оценки эффективности возбуждения мы используем то, что энергия возбуждения линейного осциллятора выражается через классическую работу внешней силы. При определенных предположениях (см., например, [5]) это верно и для изолированной моды реальной молекулы. Для среднего значения номера колебательного уровня n , в котором окажется возбужденная молекула, получаем

$$n = \frac{1}{2 \cdot M \cdot \hbar \cdot \omega} \left| \int f(t) \cdot \exp(-i \cdot \omega_m \cdot t) \cdot dt \right|^2 = \frac{\pi \cdot \tau_0^2 \cdot f_0^2}{2 \cdot M \cdot \hbar \cdot \omega} \exp\left(-\left(\frac{\Delta\omega \cdot \tau_0}{2}\right)^2\right), \quad (1)$$

где внешняя сила выбрана в виде $f(l) = f_0 \cdot \exp(-(l/l_0)^2 + i \cdot \omega_r \cdot l)$, $\Delta\omega = \omega_r - \omega_m$, ω_r, ω_m — лазерная и молекулярные частоты, τ_0 — характерное время действия силы, M — приведенная молекулярная масса для рассматриваемого колебательного перехода. Мы также считаем, что энергия возбуждения равна $n \cdot \hbar \cdot \omega$. Если возбуждающий импульс достаточно короткий, т. е. $n \cdot \delta \cdot \tau \leq \hbar/2$, где δ — дефект ангармонизма или разность частот для соседних колебательных переходов, то можно опустить экспоненту и прийти к простому выражению

$$n = \frac{\pi \cdot \tau_0^2 \cdot f_0^2}{2 \cdot M \cdot \hbar \cdot \omega}. \quad (2)$$

В выражениях (1) и (2), естественно, предполагается, что релаксация возбуждения за время действия импульса не успевает проявиться, т. е. $y \cdot \tau_0 \leq 1$, где y — характерная константа релаксации возбуждения, например вследствие столкновений.

Для гетерополярных молекул $f_0 = e \cdot E$, где e — эффективный заряд, а E — амплитуда электрического поля волны,

поэтому получаем для интенсивности излучения, необходимой для возбуждения уровня n ,

$$I = I_0 \cdot n, \quad I_0 = \frac{\hbar \cdot M \cdot c^2}{\pi \cdot e^2 \lambda \tau^2}. \quad (3)$$

Поскольку значения n обычно невелики: $n \approx 3-5$, величина I_0 является удобной характеристикой рассматриваемого процесса. В эксперименте [3] наблюдалось многофотонное возбуждение молекулы порфирина в растворе четыреххлористого углерода квазирезонансным излучением с интенсивностью $I \approx 10^9$ Вт/см² и длительностью возбуждающих импульсов $\tau \approx (2-3) \cdot 10^{-13}$ с. Длина волны излучения была равна $\lambda \approx 6-7$ мк. Как нетрудно убедиться, для приведенных параметров значение $I_0 \approx 2 \cdot 10^{11}$ Вт/см², что довольно близко к результатам [3], учитывая их предварительный характер. Хотя интенсивность излучения довольно велика, в этом подходе удается в принципе решить проблему быстрой релаксации.

3. Заключение

Основные особенности ЛСЭ делают возможным управление в реальном масштабе времени частотными и временными характеристиками излучения, что можно использовать для организации потенциально эффективных режимов многофотонного молекулярного возбуждения, см. например, [6,7].

Для повышения производительности потенциального химического реактора желательно повышать плотность исходных материалов, а возникающую при этом проблему релаксации возбуждения можно решить при использовании достаточно коротких возбуждающих импульсов. Существенно, что высокая эффективность возбуждения позволяет достичь порогового уровня за время действия одного импульса, так что релаксация возбуждения между отдельными импульсами, которая в принципе может быть достаточно большой, не будет влиять на эффективность процесса в целом. С этой точки зрения весьма обнадеживающими представляются экспериментальные результаты [3], анализу которых и посвящена настоящая заметка.

Автор весьма признателен К. Штраубу за возможность ознакомиться с результатами исследований, проводимых в Лаборатории ЛСЭ Дюкского университета, до их опубликования.

Список литературы

- [1] *Молин Ю.Н., Панфилов В.Н., Петров А.К.* Инфракрасная фотохимия. Новосибирск: Наука, 1985. 254 с.
- [2] *Летохов В.С.* Лазерная фотоионизационная спектроскопия. М.: Наука, 1987. 318 с.
- [3] *Карл Д. Штрауб.* 1995. Частное сообщение.
- [4] *Базь А.И., Зельдович Я.Б., Переломов А.М.* Рассеяние, реакция и распады в нерелятивистской квантовой механике. М.: Наука, 1971.
- [5] *Барышников Ф.Ф.* // ЖЭТФ. 1995. Т. 107. В. 2. С. 349-359.
- [6] *Барышников Ф.Ф.* // Письма в ЖТФ. 1993. Т. 19. В. 20. С. 11-15.
- [7] *Барышников Ф.Ф., Перебейнос В.В., Чебуркин Н.В.* // Письма в ЖТФ. 1994. Т. 20. В. 17. С. 82-86.

ОКБ "Гранат"
Москва

Поступило в Редакцию
30 мая 1995 г.
