

07;10;12

©1994

ВОЗБУЖДЕНИЕ НЕЛИНЕЙНЫХ МОЛЕКУЛЯРНЫХ КОЛЕБАНИЙ ИЗЛУЧЕНИЕМ ЦИКЛИЧЕСКОГО ЛАЗЕРА НА СВОБОДНЫХ ЭЛЕКТРОНАХ

Ф. Ф. Барышников, В. В. Перебейнос, Н. В. Чебуркин

1. Многочастотное резонансное (МЧР) излучение, воздействуя на молекулу, увеличивает эффективность возбуждения, его изотопическую селективность, что существенно для решения задач лазерной химии [1-5]. В работе [6] предложено использовать для формирования МЧР излучения лазер на свободных электронах (ЛСЭ) с периодической высокочастотной инжекцией электронного пучка. При этом можно сформировать повторяющиеся пакеты импульсов излучения с заданными и стабильными характеристиками. Число импульсов N в пакете не может превышать числа импульсов в оптическом резонаторе. В [7] это число равнялось 34. Мы будем рассматривать последовательное расположение импульсов в пакете в соответствии с меняющейся частотой без существенного временного разделения. Длительность пакета $N\tau$. Частота следования пакетов при этом равна ΩN , где τ — длительность одного импульса, а Ω — частота инжекции. Число N определяется номером уровня, начиная с которого процесс возбуждения становится необратимым вследствие, например, диссоциации. Будем считать, что возбуждение, не достигшее уровня N , релаксирует до основного состояния за время N/Ω , но что эффективная релаксация γ влияет на динамику возбуждения за время прохождения пакета импульсов, т.е.

$$\frac{\Omega}{N} \ll \gamma \ll \frac{1}{N\tau}. \quad (1)$$

2. Использование МЧР режима для возбуждения молекулярных колебаний позволяет резко снизить интенсивность излучения, поскольку уже не нужно преодолевать ангармонический барьер α за счет полевого уширения G . Будем предполагать, что выполнено условие

$$G \lesssim \alpha, \quad (2)$$

при котором внешнее поле эффективно связывает только соседние состояния. Если внешние импульсы, составляющие

пакет, пространственно разделены, то задача сводится к возбуждению двухуровневых атомов, если нет, то задача близка к возбуждению эквидистантного осциллятора резонансной внешней силой.

3. Для совмещенных импульсов примем для оценки, что матричные элементы дипольного момента равны матричным элементам для гармонического осциллятора. Это заведомо хорошее приближение для небольших N . При этом для среднего значения уровня возбуждения классика и квантовый подход дают одинаковый результат ([8], стр. 80; [9], стр. 245), из которого в резонансе имеем для минимального значения $G = G_1$, необходимого для возбуждения N -го уровня

$$G_1 = \frac{2\sqrt{N}}{\tau}. \quad (3)$$

4. Для разделенных импульсов пакета рассмотрим вначале когерентное возбуждение π -импульсами, при котором интеграл площадей. ([10], стр. 60) равен

$$G\tau = \pi. \quad (4)$$

В случае точного резонанса каждая отдельная двухуровневая система испытывает полную инверсию. При этом при выполнении условия (1) вероятность возбуждения N -го состояния равна единице. Для минимального значения $G = G_2$ получаем из (4)

$$G_2 = \frac{\pi}{\tau}. \quad (5)$$

5. В случае медленного изменения частоты в окрестности каждого резонанса возможна полная инверсия состояния, как и в случае когерентного возбуждения [11], см. также [10], стр. 77. Условием этого является $p \gtrsim 1$, где p — характерный множитель $p = 2\pi G^2/\dot{\omega}$, [1], стр. 404, а $\dot{\omega}$ скорость изменения частоты в окрестности резонанса. Полагая для оценки $p \simeq 1$, получим, как и выше,

$$G_3 = \left(\frac{\dot{\omega}}{2\pi} \right)^{1/2}. \quad (6)$$

$\dot{\omega}$ не может быть сколь угодно малой, так как за время τ частота должна пройти эффективный интервал G . Из условий $G \sim \dot{\omega}\tau$ и $p \sim 1$ получаем $\dot{\omega} \sim 1/(2\pi\tau^2)$, а вместо (6)

$$G_3 = \frac{1}{2\pi\tau} \quad (7)$$

6. Из (3), (5), (7) легко найти соответствующие интенсивности излучения

$$I_k = c\hbar^2 A_k / (4\pi\mu^2\tau^2), \quad (8)$$

где $A_1 = 4N$, $A_2 = \pi^2$, $A_3 = 1/(2\pi)$. Как это следует из (8), наименьшая интенсивность необходима в случае адиабатического возбуждения, наибольшая — в случае некогерентного одновременного действия отдельных импульсов пакета, причем это различие растет с ростом N . С учетом зависимости μ от номера перехода интенсивность для более высоких переходов уменьшается.

7. О б с у ж д е н и е. Особенностью возбуждения молекулярных колебаний излучением ЛСЭ является работа в пакетном режиме при сравнительно небольшой частоте следования пакетов. С другой стороны, для ЛСЭ на базе ВЧ-ускорителей характерны малые длительности излучения τ , что при выполнении второй части условия (1) позволяет зафиксировать возбуждение уже при воздействии одного пакета. Для этого необходима высокая эффективность возбуждения отдельными импульсами, которая обеспечивается выбором специальных режимов работы: когерентный режим (режим π -импульсов) и режим адиабатически медленного прохождения резонансов. Оказывается, что обычные методы МЧР воздействия не дают желаемого результата. При одновременном действии импульсов мало эффективное время возбуждения, а при последовательном некогерентном возбуждении для больших N мала конечная эффективность возбуждения. Только в случае когерентной и адиабатической накачки при согласовании уровня возбуждения и частоты удается возбудить молекулу одним пакетом импульсов, причем заселяется только состояние, заданное числом импульсов N , что может оказаться важным в приложениях. Оценим характерные интенсивности. Примем, что $\tau \simeq 10^{-10}$ с, $N \sim 10$, $\mu \sim 3 \cdot 10^{-19}$ сгс, тогда для некогерентного режима $I_1 = 12$ мвт/см², для когерентного режима $I_2 = 3$ мвт/см², для адиабатического режима $I_3 = 0.01$ мвт/см². Примечательно, что I_3 заметно меньше I_1 и I_2 , даже если принять во внимание некоторую численную произвольность при определении (7). При учете эффекта накопления ($\gamma \leq \Omega/N$) величина I_1 должна уменьшиться, что оставляет открытым вопрос об эффективности некогерентного режима. Для селективного заселения определенного уровня явно предпочтительнее режимы когерентного и адиабатического возбуждения, хотя с точки зрения изотопической селективности все три режима равноценны.

Список литературы

- [1] Аскаръян Г.А., Намиот В.А. // Письма в ЖЭТФ. 1975. Т. 21. В. 11. С. 646-649.
- [2] Bloembergen N. // Opt. Comm. 1975. V. 15. N 3. P. 416-418.
- [3] Амбарцумян Р.В., Горохов Ю.А., Летохов В.С., Макаров Г.В., Пурецкий А.А., Фурзиков Н.П. // Письма в ЖЭТФ. 1977. Т. 23. В. 4. С. 217-220.
- [4] Акулин В.М., Алимпиев С.С., Карлов Н.В., Прохоров А.М., Сартанов В.Х., Хохлов Э.М. // Письма в ЖЭТФ. 1977. Т. 25. В. 9. С. 42-431.
- [5] Letokov V.S., Mishin V.I. // Opt. Comm. 1979. V. 29. N 2. P. 168-171.
- [6] Барышников Ф.Ф. // Письма в ЖТФ. 1993. Т. 19. В. 20. С. 11-15.
- [7] Venson S.V., Madey J.M.J., Schultz J. et al. // Nucl. Instr. Meth. in Phys. Res. 1986. V. A250. N 1. P. 39-43.
- [8] Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Механика. М.: Наука. 1973. 208 с.
- [9] Базь А.И., Зельдович Я.В., Переломов А.М. Рассеяние, реакции и распады в нерелятивистской квантовой механике. М.: Наука, 1971. 544 с.
- [10] Аллен Л., Эберли Дж. Оптический резонанс и двухуровневые атомы. М.: Мир. 1978. 224 с.
- [11] Луговой В.Н., Стрельцов В.Н. // Письма в ЖЭТФ. 1975. Т. 21. В. 7. С. 442-445.
- [12] Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Квантовая механика. М.: Наука. 1974. 752 с.

Поступило в Редакцию
8 июня 1994 г.