

03

Экспериментальное изучение дрейфового движения молекул SF₆ под действием излучения CO₂-лазера

© А.А. Воскобоев, В.А. Кузьменко, В.С. Межевов, А.Р. Саутин

Троицкий институт инновационных и термоядерных исследований,
108840 Троицк, Московская обл., Россия
e-mail: kuzmenko@triniti.ru

Поступило в Редакцию 20 мая 2022 г.

В окончательной редакции 19 декабря 2022 г.

Принято к публикации 21 декабря 2022 г.

Продолжены эксперименты по изучению физической природы дрейфового движения молекул SF₆ в поле излучения импульсно-периодического CO₂-лазера. Для объяснения физической природы эффекта рассмотрены такие явления как изменение транспортного сечения при лазерном возбуждении молекул, явление оптического пинцета, термодиффузия. Однако наиболее обоснованным физическим объяснением природы данного эффекта признано фракционирование газовой смеси в результате газодинамической диффузии на фронте циклически расширяющегося газа (вариант бародиффузии).

Ключевые слова: фракционирование газовой смеси, термодиффузия, оптический пинцет, бародиффузия.

DOI: 10.21883/JTF.2023.02.54491.142-22

Введение

В работах [1–4] было обнаружено и изучено явление светоиндуцированного дрейфа атомов и легких молекул под действием излучения непрерывного лазера. Суть явления состоит в том, что при настройке длины волны лазера с красной (или голубой) стороны доплеровски уширенной линии поглощения атомов или молекул наблюдается направленная их диффузия навстречу (или вслед) лазерному лучу. Причиной этого является то, что при поглощении фотона транспортное сечение атомов или молекул увеличивается и соответственно уменьшается скорость их направленной диффузии.

В работе [5] были проведены похожие эксперименты по изучению дрейфа молекул гексафторида серы под действием излучения импульсно-периодического CO₂-лазера. Был обнаружен значительный эффект. Причем молекулы SF₆ всегда двигались навстречу лазерному лучу независимо от длины волны этого излучения. Физическая природа этого явления так и осталась непонятой.

Характер поглощения излучения импульсного CO₂-лазера большими тяжелыми молекулами (вроде SF₆) существенно отличается от характера поглощения его легкими молекулами NH₃ и CH₃F. В больших, тяжелых молекулах основную роль в поглощении импульсного излучения играют широкие лоренцевские крылья линий поглощения [6]. В SF₆ естественная ширина этих крыльев линий составляет около 4.5 cm⁻¹. В этом случае доплеровский сдвиг не играет никакой роли.

Увеличение транспортного сечения при колебательном возбуждении молекул SF₆, вероятно, имеет место. И этим можно было бы объяснить концентрирование молекул на входе в кювету, где есть наибольшая интенсивность излучения. Однако этому прямо противо-

речит утверждение авторов [5], что при использовании излучения непрерывного CO₂-лазера сравнимой средней мощности эффект полностью отсутствовал. Этот факт указывает на то, что в этом случае очень важную роль играет интенсивность лазерного излучения.

Приблизительно в то же время был обнаружен и получил широчайшее применение так называемый эффект оптического пинцета [7–9]. Здесь излучение непрерывного лазера фокусируется короткофокусной линзой и в ее каустике происходит захват и удержание атомов, молекул, частиц. Эффект имеет место в вакууме, газе и даже жидкости. Объяснение физической природы эффекта на основе классических представлений состоит в том, что атомы и молекулы могут поляризоваться. И в области большого градиента интенсивности лазерного излучения появляется сила, которая втягивает атомы и молекулы в область наибольшей интенсивности излучения.

Важной особенностью эффекта оптического пинцета является требование наличия высокой интенсивности лазерного излучения. Это свойство вполне согласуется с наблюдаемой зависимостью эффекта дрейфа молекул SF₆ от использования излучения импульсного или непрерывного CO₂-лазеров. В настоящей работе мы продолжили эксперименты, начатые в работе [5], с целью определения возможной роли там эффекта оптического пинцета. Нас интересовало движение молекул не вдоль лазерного луча, а поперек его.

1. Экспериментальная часть

Схема экспериментальной установки представлена на рис. 1. Кювета представляла собой стальную трубку с внутренним диаметром 14 mm и длиной 500 mm с приклеенными окнами из NaCl. Вблизи входного окна

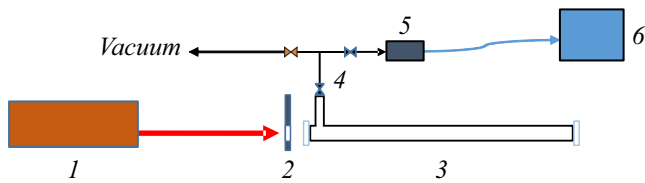


Рис. 1. Схема экспериментальной установки: 1 — CO₂-лазер, 2 — диафрагма диаметром 14 мм, 3 — кювета, 4 — натекатели, 5 — квадрупольный масс-спектрометр, 6 — компьютер.

кюветы была приварена трубка с внутренним диаметром 10 мм и длиной около 70 мм, которая выполняла роль балластного объема размером около 7% от общего объема кюветы. Через натекатели газовая смесь поступала в квадрупольный масс-спектрометр, и состав газа в балластном объеме в реальном времени регистрировался компьютером.

Использовался импульсно-периодический CO₂-лазер с неселективным резонатором и генерацией на линии 10P20. При использовании газовой смеси с составом CO₂:N₂:He = 2:1:5 и давлением 0.5 atm сильно модулированный лазерный импульс имел длительность около 100 ns на полувывоте и низкоинтенсивный хвост длительностью около 0.3 μs, в котором содержалось около 30% энергии (рис. 2, *a*). Для сравнения в некоторых экспериментах использовался длинный лазерный импульс (газовая смесь с составом CO₂:N₂:He = 1:4:4 и давлением 0.2 atm (рис. 2, *b*)). В этом случае в пике импульса содержалось менее 10% энергии. Соответственно в низкоинтенсивном хвосте импульса общей длительностью около 10 μs содержалось более 90% энергии.

Использовался нефокусированный лазерный пучок с плотностью энергии излучения около 100 мДж/см². Частота

следования импульсов обычно составляла 50 Hz. Еще использовался непрерывный CO₂-лазер с неселективным резонатором и мощностью около 30 W.

2. Результаты экспериментов и их обсуждение

На рис. 3 представлены результаты типичного эксперимента. При включении импульсно-периодического CO₂-лазера концентрация молекул SF₆ в балластном объеме падает, а концентрация атомов гелия растет. Через приблизительно 30 s достигается стационарное состояние. Таким образом, мы видим, что молекулы SF₆ втягиваются в лазерный луч, а атомы гелия выталкиваются из него. При использовании длинного импульса (рис. 2, *b*) эффект отсутствовал. На 363 s (рис. 3) натекатель масс-спектрометра был закрыт и дальнейшие показания демонстрируют фон прибора.

На рис. 4 представлены аналогичные рис. 3 результаты эксперимента при использовании излучения непрерывного CO₂-лазера. Внутри кюветы поступало излучение мощностью около 20 W. Это почти в три раза больше усредненной мощности излучения от импульсно-периодического CO₂-лазера при 50 Hz. Кроме того, излучение непрерывного лазера поглощается существенно лучше, чем излучение импульсного лазера. Так, при давлении газовой смеси 8 mm Hg излучение непрерывного лазера (в отличие от излучения импульсного лазера) полностью поглощалось в кювете. Таким образом, при энерговыкладе от непрерывного лазера почти на порядок больше, чем от импульсно-периодического, эффект втягивания молекул SF₆ в лазерный луч полностью отсутствовал. Наоборот, наблюдалось небольшое (~ 10%) увеличение сигнала от молекул SF₆. Это может

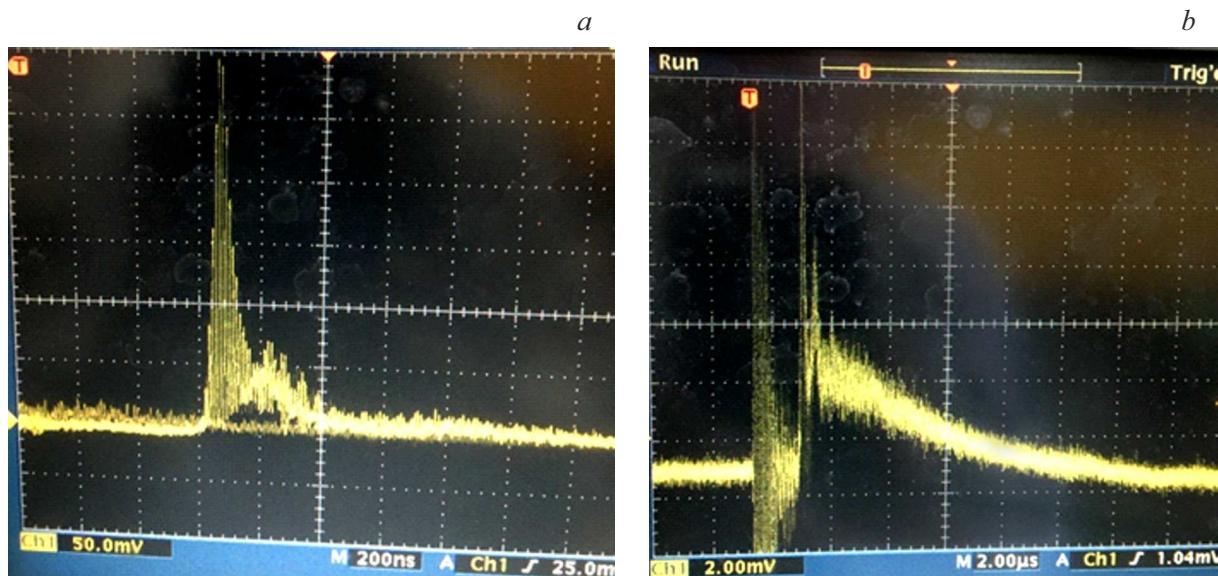


Рис. 2. Форма импульсов CO₂-лазера.

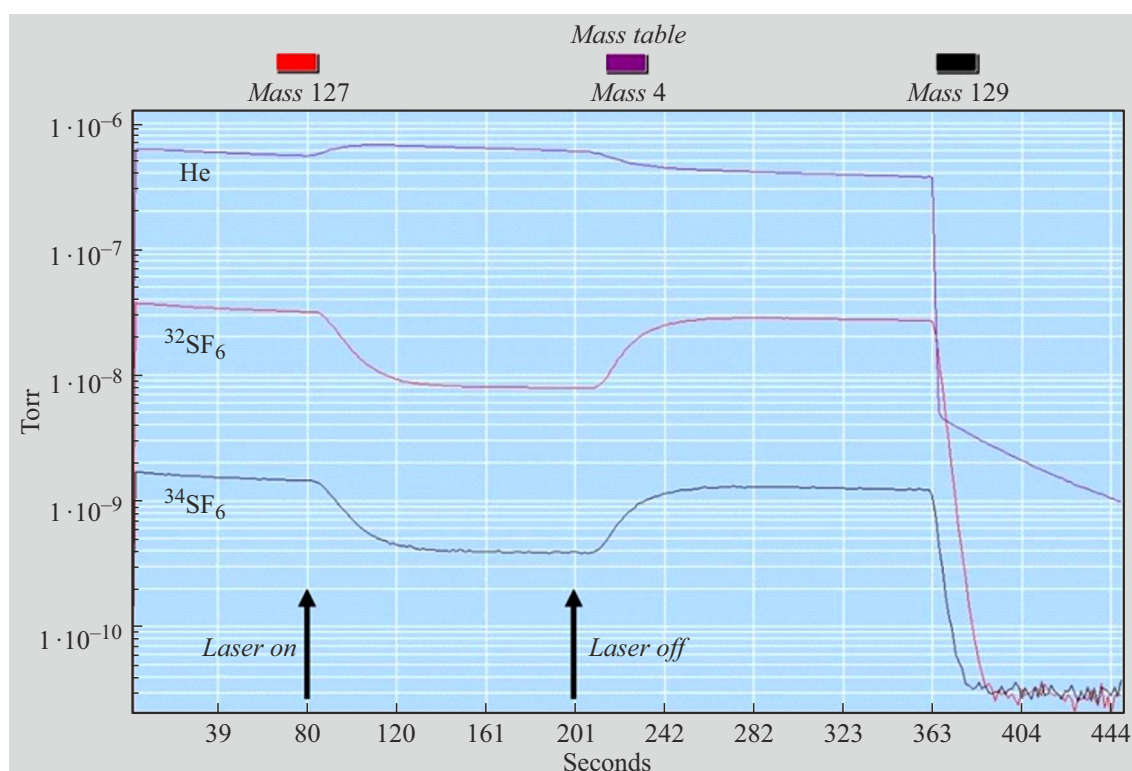


Рис. 3. Показания масс-спектрометра в реальном времени при облучении газовой смеси SF₆:He = 1:10 и давлении 8 mm Hg излучением импульсно-периодического CO₂-лазера с частотой следования импульсов 50 Hz.

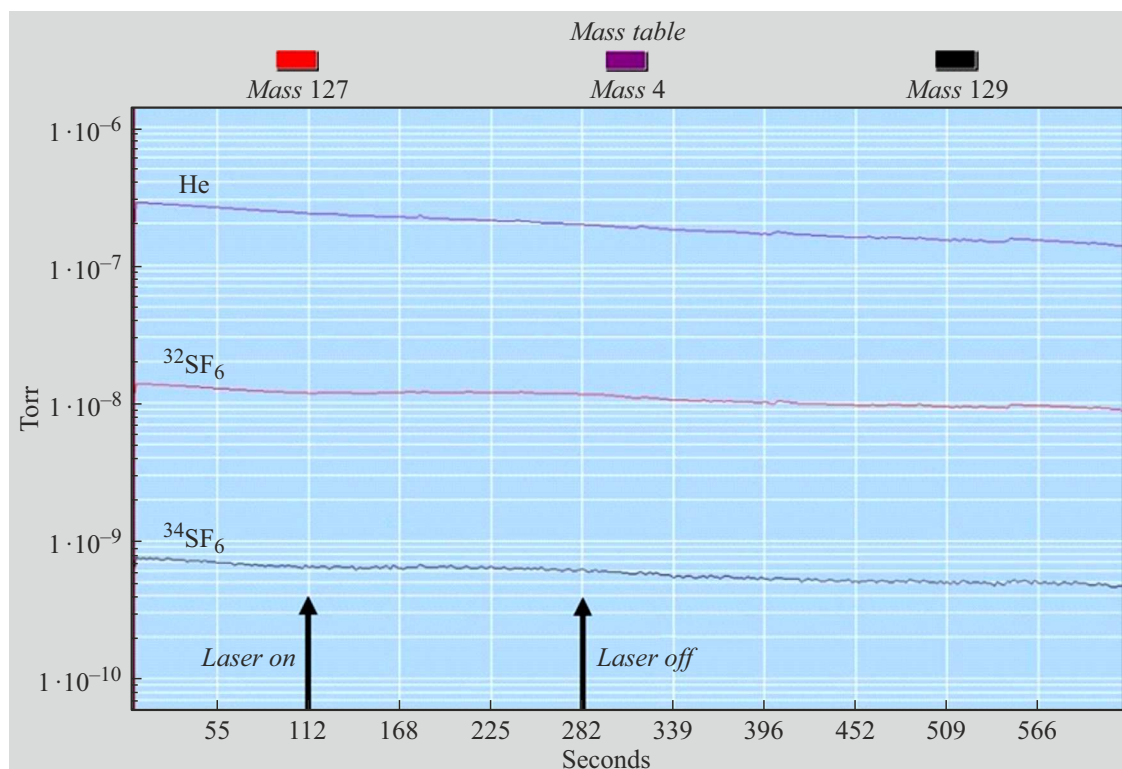


Рис. 4. Показания масс-спектрометра в реальном времени при облучении газовой смеси SF₆:He = 1:10 и давлении 8 mm Hg излучением непрерывного CO₂-лазера.

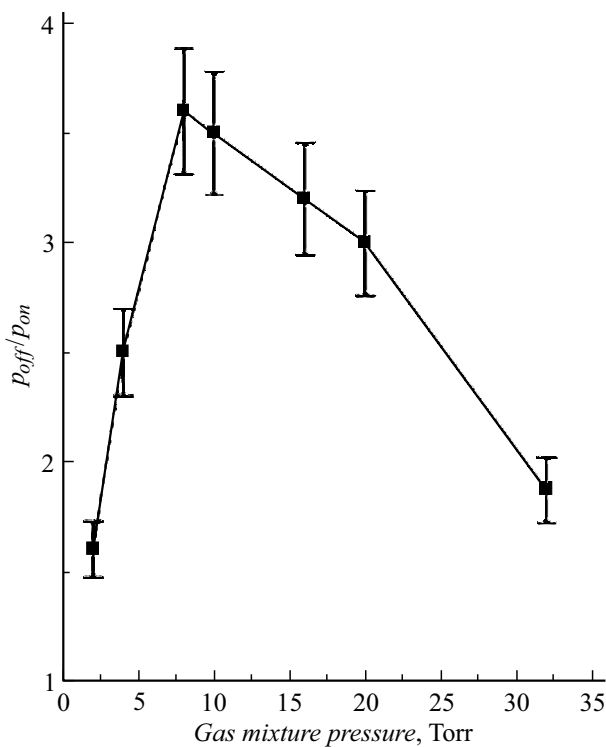


Рис. 5. Зависимость степени уменьшения концентрации молекул SF_6 в балластном объеме от давления газовой смеси при облучении излучением импульсно-периодического CO_2 -лазера с частотой следования импульсов 50 Hz.

быть следствием как термодиффузии, так и следствием увеличения давления газа в кювете из-за ее нагрева. Входная часть кюветы за 2 min нагревалась излучением непрерывного лазера до 60–70°C.

Результаты рис. 3 внешне похожи на проявление эффекта оптического пинцета. Однако другие результаты в эту гипотезу не укладываются. В первую очередь это зависимость эффекта от давления газовой смеси.

На рис. 5 представлена зависимость степени уменьшения концентрации молекул SF_6 в балластном объеме от давления газовой смеси с составом $SF_6:He = 1:10$. Максимальной величины в данных условиях эффект достигал при давлении смеси 8–10 mm Hg. Физический смысл этой зависимости не понятен.

На рис. 6 представлены аналогичные рис. 3 результаты эксперимента при использовании газовой смеси $SF_6:He = 1:1$ и давлении 4 mm Hg. Здесь эффект существенно меньше, при этом он направлен в противоположную сторону!

На рис. 7 представлены результаты эксперимента со смесью газов $SF_6:Kr:He = 1:2:8$ при суммарном давлении 11 mm Hg. Из рисунка видно, что тяжелые молекулы гексафторида серы и тяжелые атомы криптона втягиваются в лазерный луч, а атомы легкого гелия выталкиваются из него. Были выполнены аналогичные эксперименты со смесью $SF_6:Kr = 1:10$ при общем давлении смеси 10 mm Hg. Результат аналогичен результату на рис. 3,

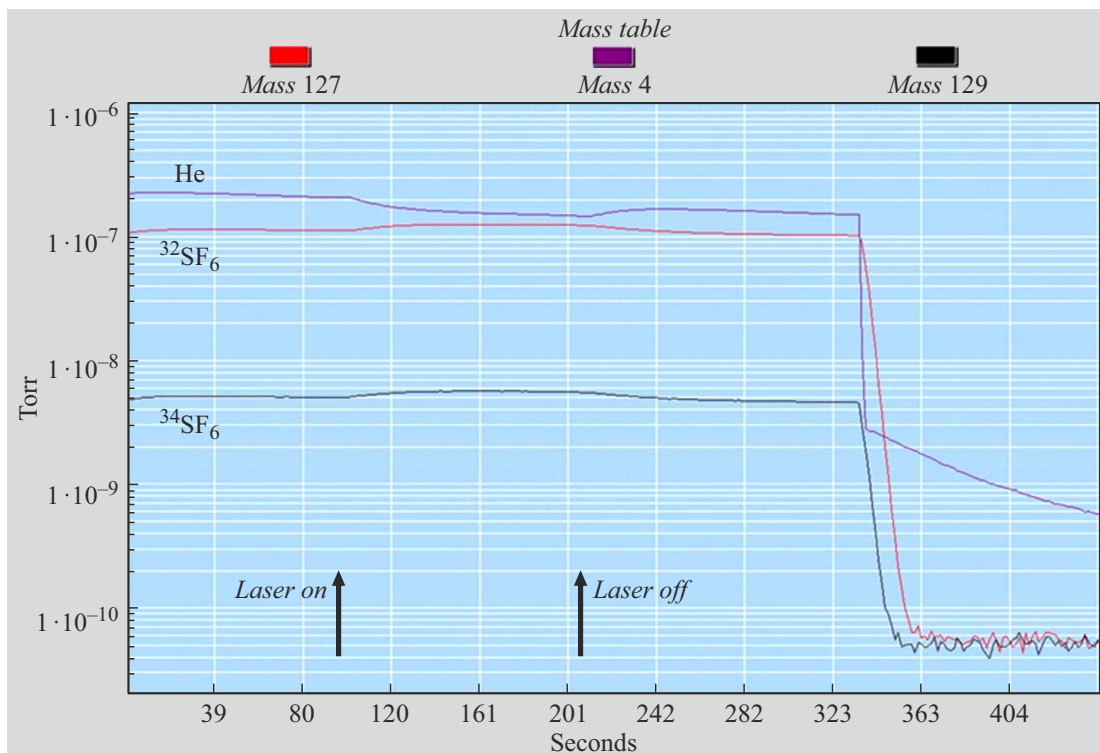


Рис. 6. Показания масс-спектрометра в реальном времени при облучении газовой смеси $SF_6:He = 1:1$ и давлении 4 mm Hg излучением импульсно-периодического CO_2 -лазера с частотой следования импульсов 50 Hz.

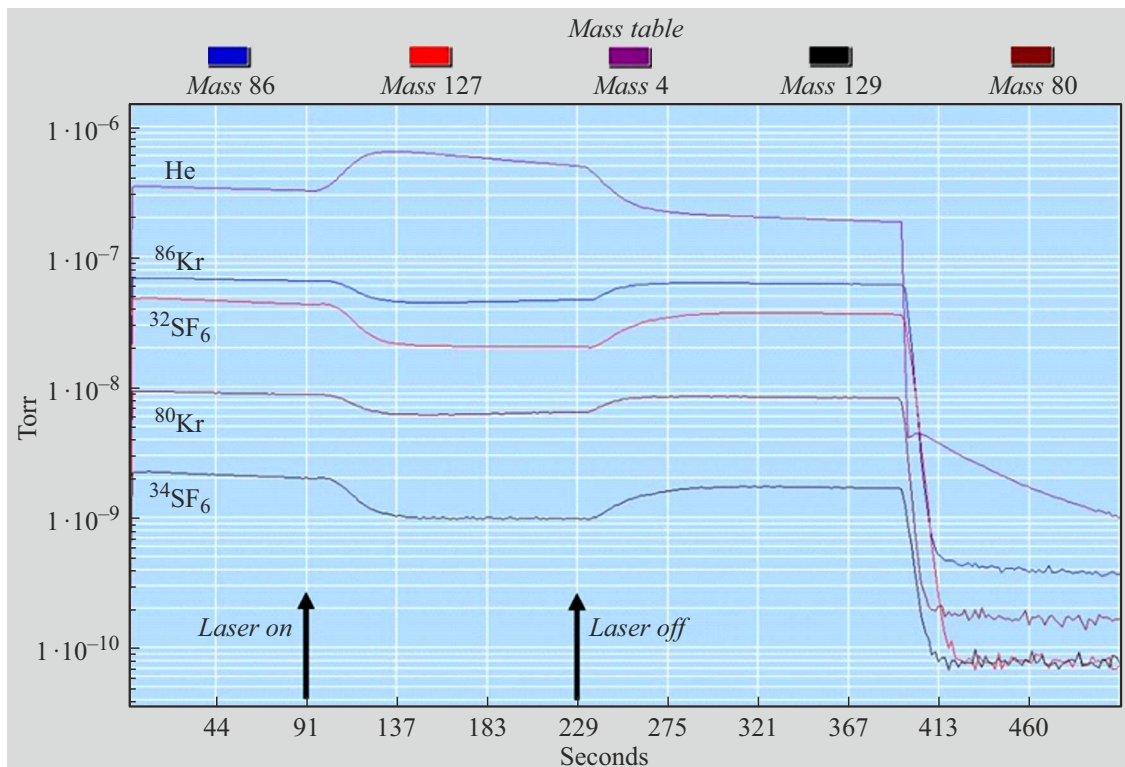


Рис. 7. Показания масс-спектрометра в реальном времени при облучении газовой смеси SF₆:Kr:He = 1:2:8 при суммарном давлении 11 mm Hg излучением импульсно- периодического CO₂-лазера с частотой следования импульсов 50 Hz.

но степень уменьшения концентрации SF₆ в буферном объеме была меньше и составляла около 40%.

Данные рис. 7 очень похожи на результат термодиффузии. Только холодный участок в этом случае должен находиться в облучаемом объеме. Гипотетически такое охлаждение возможно. Известно, что с помощью лазерного излучения в определенных условиях можно охлаждать атомы и молекулы.

С целью проверить эту гипотетическую возможность термодиффузии при охлаждении облучаемого объема мы провели ряд экспериментов по контролю стационарной температуры используемых газовых смесей. Для этого использовалась отдельная стальная ювета с внутренним диаметром 36 mm, длиной 140 mm с четырьмя окнами. В центр лазерного луча была введена тонкая хромель — копелевая термопара (из термопарной лампы ПМТ-2). Время установления стационарной температуры составляло 1–2 s (частота следования импульсов 50 Hz). На рис. 8 представлены зависимости этой стационарной температуры от давления и состава газовых смесей.

Зависимость 1 характеризует прямой нагрев термопары лазерным излучением. Нас интересовали какие-либо аномалии зависимостей в области давлений около 10 mm Hg. Однако на рисунке мы видим только монотонное увеличение температуры при использовании смеси SF₆:He = 1:10 (2) или монотонное уменьшение температуры при добавлении гелия к SF₆ (3). Это говорит о том,

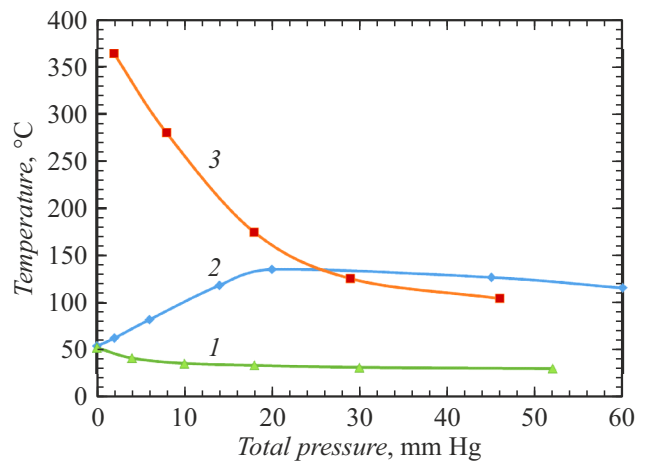


Рис. 8. Зависимость стационарной температуры от давления и состава газовых смесей: 1 — только гелий, 2 — газовая смесь SF₆:He = 1:10, 3 — 2 mm Hg SF₆ и гелий.

что сколь-нибудь заметное гипотетическое охлаждение газовой смеси отсутствует.

Следует отметить, что эффект втягивания резонансно возбуждаемых атомов в облучаемую область наблюдался ранее в экспериментах по светоиндуцированному дрейфу атомов [10]. Здесь резонансно возбуждаемые атомы натрия втягиваются в область, облучаемую непре-

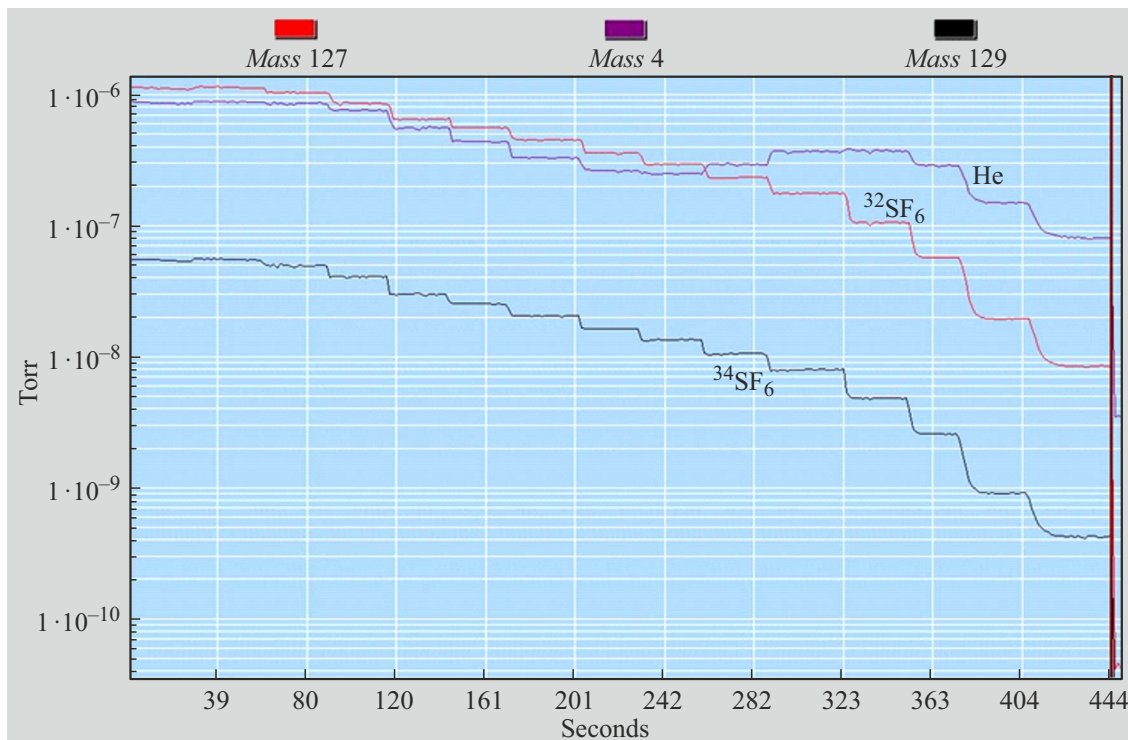


Рис. 9. Показания масс-спектрометра в реальном времени при ступенчатом уменьшении давления газовой смеси $\text{SF}_6:\text{He} = 1:10$ перед натекателем от 450 до 2 mm Hg.

равно действующим лазером. Физическое объяснение эффекта понятно: увеличивается транспортное сечение у возбужденных атомов и замедляется их диффузия. Такое объяснение не подходит для наших экспериментов с гексафторидом серы. Во-первых, эффект отсутствует при использовании непрерывного лазерного излучения. Во-вторых, в облучаемую область втягиваются не только резонансно возбуждаемые молекулы ($^{32}\text{SF}_6$), но и молекулы ($^{34}\text{SF}_6$) и атомы (Kr), которые лазерное излучение не поглощают (рис. 7), т.е. тут важно не резонансное возбуждение молекул, а размеры или масса молекул и атомов.

Таким образом, ни возможное изменение транспортного сечения возбужденных молекул, ни явление оптического пинцета, ни термодиффузия не могут физически объяснить совокупность полученных экспериментальных фактов. Для понимания природы наблюдаемого эффекта важное значение имеют экспериментальные результаты, представленные на рис. 9.

Здесь мы видим переход от вязкого режима течения газовой смеси в режим молекулярной диффузии в узкой щели натекателя. В диапазоне давлений 450–100 mm Hg количество гексафторида серы и гелия убывает после натекателя приблизительно одинаково. А в диапазоне давлений 50–2 mm Hg наблюдается значительная фрагментация газовой смеси. Изменение относительных концентраций компонентов составляет около 10 раз. В режиме молекулярной диффузии в капилляре натекателя атомы гелия из области высокого давления в область

низкого давления диффундируют значительно быстрее, чем молекулы гексафторида серы. Похожая зависимость наблюдается и для смеси с составом $\text{SF}_6:\text{He} = 1:1$.

Аналогичная ситуация существует при вытекании газовой смеси из сопла в вакуум. Легкие атомы или молекулы покидают центральную часть струи быстрее, чем тяжелые.

Подобная ситуация, вероятно, реализуется и в настоящих экспериментах с дрейфом молекул SF_6 . Поглощение излучения импульсного лазера приводит к быстрому нагреву облучаемой области газа и увеличению давления в ней. Газ начинает расширяться в область балластного объема, где излучения нет и давление ниже. На границе расширяющегося газа проявляются свойства так называемой бародиффузии [11–13]. Затем следует стадия медленного охлаждения облучаемой области газа и уменьшения давления в ней. Если скорость бародиффузии на границе расширяющегося газа нелинейно зависит от разности давлений двух областей газа, то вполне возможно существование такой замысловатой зависимости эффекта от давления и состава газовой смеси, которая наблюдается в наших экспериментах.

Детальное изучение и математическое моделирование бародиффузии в условиях циклического лазерного воздействия на газовую смесь не было целью настоящей работы. Мы лишь искали возможные свидетельства присутствия здесь явления оптического пинцета, но не нашли их.

Нас интересовала также возможность лазерного разделения изотопов. С точностью нашего масс-спектрометра ($\pm 0.5\%$) мы не обнаружили изменения изотопного состава молекул SF₆ в балластном объеме. Это не удивительно. Сам процесс разделения компонент газовой смеси происходит в диффузионном режиме. Это медленный процесс и начальная изотопическая селективность лазерного возбуждения молекул здесь полностью теряется. Изотопическая селективность собственно молекулярной диффузии невелика.

Заключение

С целью объяснения физической природы эффекта проведен ряд экспериментов по изучению дрейфового движения молекул SF₆ в поле излучения импульсно-периодического CO₂-лазера. Полученные результаты нельзя объяснить ни изменением транспортного сечения молекул при их лазерном возбуждении, ни явлением оптического пинцета, ни термодиффузией. Наиболее подходящим физическим объяснением природы данного эффекта признано фракционирование газовой смеси в результате газодинамической диффузии на фронте циклически расширяющегося газа (вариант бародиффузии).

Благодарности

Авторы выражают благодарность С.П. Яцкову за помощь в подготовке экспериментов.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] F.Kh. Gel'mukhanov, A.M. Shalagin. *Sov. Phys. JETP*, **50** (2), 234 (1979).
- [2] S.N. Atutov, P.L. Chapovsky, A.M. Shalagin. *Opt. Commun.*, **43** (4), 265 (1982).
- [3] В.Н. Панфилов, В.П. Струнин, П.Л. Чаповский, А.М. Шалагин. *Письма в ЖЭТФ*, **33** (1), 52 (1981).
- [4] П.Л. Чаповский, А.М. Шалагин. *Квант. электрон.*, **14** (3), 574 (1987).
- [5] В.Ю. Баранов, Е.П. Велихов, А.М. Дыхне, С.А. Казаков, В.С. Межевов, М.Ю. Орлов, В.Д. Письменный, А.И. Стародубцев, А.Н. Старости. *Письма в ЖЭТФ*, **31** (8), 475 (1980).
- [6] V.A. Kuz'menko. *The Role of Intense Line Wings in the Process of Infrared Multiple-Photon Excitation of Polyatomic Molecules*, <https://doi.org/10.48550/arXiv:physics/0204003>
- [7] A. Ashkin. *Phys. Rev. Lett.*, **24** (4), 156 (1970).
- [8] A. Ashkin, J. M. Dziedzic, J.E. Bjorkholm, S. Chu. *Opt. Lett.*, **11** (5), 288 (1986).
- [9] J. Gieseller, J.R. Gomez-Solano, A. Magazzu, I.P. Castillo, L.P. Garcia, M. Gironella-Torrent, X. Viader-Godoy, F. Ritort, G. Pesce, A.V. Arzola, K. Volke-Sepulveda, G. Volpe. e-print, arXiv:2004.05346.
- [10] С.Н. Атутов, С.П. Подъячев, А.М. Шалагин. *ЖЭТФ*, **91** (2), 416 (1986).
- [11] Ю.В. Бржазовский, Л.С. Василенко, Н.Н. Рубцова. *Письма в ЖЭТФ*, **35** (12), 527 (1982).
- [12] V.B. Bozhdankevich, A.M. Dykhne, A.F. Pal', V.D. Pis'mennyi, V.V. Pichugin, A.N. Starostin, M.D. Taran. *DAN SSSR*, **288** (3), 605 (1986).
- [13] В.М. Жданов. *ЖТФ*, **89** (5), 646 (2019). DOI: 10.21883/JTF.2019.05.47463.288-18 [V.M. Zhdanov. *Tech. Phys.*, **64** (5), 596 (2019). DOI: <https://doi.org/10.1134/S106378421905027X>]