

ВОЗБУЖДЕНИЕ КОЛЕБАНИЙ В МОЛЕКУЛАХ С ПОМОЩЬЮ ВАРИАЦИИ
ИНТЕНСИВНОСТИ ЛАЗЕРНОГО ИМПУЛЬСА

М. В. Кузьмин

УДК 539.196.05

Исследуется возбуждение колебаний в молекулах, моделируемых ангармоническим осциллятором, под действием лазерного импульса переменной интенсивности. Для возбуждения уровня n предлагается использовать импульс с частотой, близкой к $(E_n - E_0)/nh$. Показано, что наиболее эффективной для возбуждения является пилообразная форма импульса.

В связи с успешными экспериментами по разделению изотопов и стимулированию химических реакций с помощью лазеров ИК диапазона (см., например, обзор /1/), возрос интерес к возбуждению колебаний в молекулах. Однако эффективному набору энергии мешает ангармонизм колебаний: частота перехода в 0-ветви между колебательными уровнями n и $n + 1$ равна $\omega_{n+1, n} = \omega_{10} - \alpha n$. Поэтому излучение, находящееся в резонансе, например, с переходом $0 \rightarrow 1$, уже нерезонансно для последующих переходов. Для возбуждения высоких колебательных уровней в относительно слабых полях, когда $\gamma \equiv E d_{10} / \hbar \alpha \ll 1$ (E - напряженность поля, $d_{k, k-1}$ дипольный элемент перехода $k \rightarrow k - 1$), был предложен ряд методов, таких как адиабатическое сканирование лазерной частоты /2/, набор сфазированных импульсов /3/, модуляция частоты /4/. Однако, во всех этих работах не учитывалась зависимость от времени интенсивности I реального лазерного импульса; влияние этой зависимости на возбуждение молекул исследуется в настоящей работе.

Пусть молекула, моделируемая ангармоническим осциллятором, находится в поле $E \cos \omega_1 t$, причем E и ω_1 могут медленно изменяться со временем. Для каждого E и ω_1 рассмотрим систему КЭС (квазиэнергетических состояний) /5/. Пусть перед началом

лазерного импульса ($t = 0$) молекула находилась на уровне m , тогда при адиабатическом включении поля молекула будет в n -том КЭС, которое само медленно изменяется /5/. Воспользуемся разложением КЭС по стационарным состояниям, проведенном в /6/, для вероятности обнаружить молекулу на уровне n получим (для частот ω_1 вблизи многофотонного резонанса уровней m и n , когда $E_n - E_m \approx (n - m)\hbar\omega_1$ /6,7/):

$$P_n = \frac{1}{2} \left\{ 1 - \frac{(\omega^{nm} - \omega_1) \operatorname{sign}(\omega^{nm}(0) - \omega_1(0))}{[(\omega^{nm} - \omega_1)^2 + (\delta\omega^{nm})^2]^{1/2}} \right\}, \quad (I)$$

где $\delta\omega^{nm}$ - ширина резонанса

$$\delta\omega^{nm} = \left(\frac{n}{m!} \right)^{1/2} \frac{n - m}{(n - m)!^2} \gamma^{n-m} \alpha, \quad (2)$$

ω^{nm} - резонансная частота

$$\omega^{nm}(I) = \frac{E_n - E_m}{(n - m)\hbar} + \frac{(n + m + 1)}{[(n - m)^2 - 1]^2} \gamma^4 \alpha, \quad n - m \geq 3, \quad (3a)$$

$$\omega^{n, n-2}(I) = \frac{E_n - E_{n-2}}{2\hbar} + \frac{17(2n - 1)}{72} \gamma^4 \alpha, \quad (3б)$$

$$\omega^{n, n-1}(I) = \frac{E_n - E_{n-1}}{\hbar} + \frac{1}{2} \gamma^2 \alpha. \quad (3в)$$

В основе предлагаемого метода лежит тот факт, что резонансные частоты ω^{nm} зависят от интенсивности лазерного поля $I = \frac{c}{8\pi} E^2$ за счет малых поправок в (3).

Будем рассматривать возбуждение молекул из основного состояния (т.е. далее $n = 0$). Пусть ω_1 остается постоянной в течение импульса и удовлетворяет условию

$$\omega^{n0}(0) = \omega_{10} - \frac{n - 1}{2} \alpha < \omega_1. \quad (4)$$

Тогда адиабатически увеличивая I от 0 до I_{\max} мы будем, в силу (3), увеличивать $\omega^{n0}(I)$ и при

$$\omega^{n0}(I) > \omega_1 \quad (5)$$

получим инверсию уровней 0 и n. Вероятность P_n достигнет 1, если $\delta\omega^{n0}(I)$ много меньше сдвига резонансной частоты $\omega^{n0}(I) - (E_n - E_0)/\hbar$. Это условие будет выполнено, лишь если $n \geq 4$. При $n \leq 3$ можно получить $P_n \approx 1/2$ при

$$\omega_1 - \left| \omega_{10} - \frac{n-1}{2}\alpha \right| < \delta\omega^{n0}(I). \quad (6)$$

Мы получили возбуждение уровня n за счет сканирования резонансной частоты $\omega^{n0}(I)$ (при изменении I) относительно ω_1 , что значительно проще предложенного для однофотонного перехода в /2/ сканирования ω_1 относительно резонанса.

Соотношения (1) - (5), верны и при медленном изменении частоты поля ω_1 , обобщают результаты работы /2/ на случай многофотонного перехода. Уровни 0 и n будут инвертированы при сканировании ω_1 , если $\omega_1 - (E_n - E_0)/\hbar$ за время импульса меняет знак. Необходимый для этого диапазон изменения частоты ω_1 мал по сравнению с диапазоном, необходимым при возбуждении по методу /2/, когда ω_1 меняется от ω_{10} до $\omega_{10} - n\alpha$.

Остановимся на условии адиабатичности. Нетрудно показать, что оно имеет вид

$$\frac{d}{dt} \{ \omega^{nm}, \omega_1 \} \ll (\delta\omega^{nm})^2. \quad (7)$$

Оценивая $dy/dt \sim \gamma_{\max}/\tau_f$ (τ_f - продолжительность фронта импульса), получим:

$$\tau_f \gg \frac{1}{2\gamma\alpha} \quad (\text{переход } 0 \rightarrow 1), \quad (8a)$$

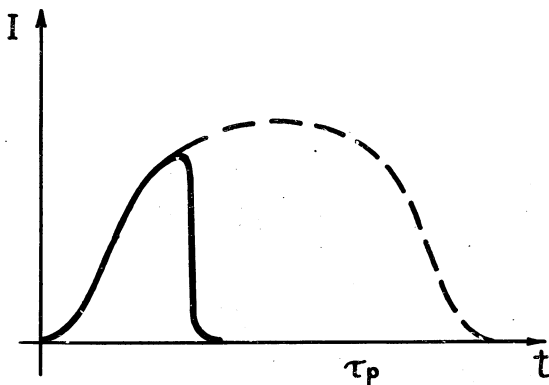
$$\tau_f \gg \frac{17}{16\gamma\alpha} \quad (\text{переход } 0 \rightarrow 2), \quad (8б)$$

$$\tau_f \gg \frac{2(n+1)n!^3}{\gamma\alpha(n^2-1)^2n^2} \gamma_{\max}^{4-2n} \quad (\text{переход } 0 \rightarrow n, n \geq 3). \quad (8в)$$

Для экспериментов, в которых наблюдалась радиационная диссоциация SF_6 , характерное $\alpha = 6 \text{ см}^{-1}$, $\gamma_{\max} = 1/5 \text{ /I/}$. При этом правые части (8) равны 0,01 нс для $n = 2$, 0,15 нс для $n = 3$, 50 нс для $n = 4$, что при $\tau_f \approx 100$ нс позволяет объяснить возбуждение $n = 3, 4$. Этого достаточно и для дальнейшего быстрого

набора энергии и диссоциации из-за резкого возрастания плотности состояний.

Если условие адиабатичности (7), (8) выполнено для всего импульса (см. рис. I, пунктир), то уровень n будет возбужден лишь



Р и с. I.

в течение времени $\sim \tau_p$, а после окончания импульса молекула вернется в основное состояние, что связано с когерентностью возбуждения. Для того, чтобы уровень остался возбужденным, необходимо использовать асимметричный во времени импульс (рис. I, сплошная линия), для заднего фронта которого выполнено условие, обратное (7), (8). В этом случае молекула останется возбужденной в течение времен релаксации $\sim T_{V-V}, T_{V-T}$. Несмотря на значительно меньшую энергию в асимметричном импульсе по сравнению с обычным, молекула останется возбужденной большее время (при $T_{V-V}, T_{V-T} > \tau_p$).

Используя последовательность асимметричных импульсов, настроенных на переходы $0 \rightarrow n, n \rightarrow 2n$, и т.д., можно возбудить молекулу до очень высоких уровней. При этом, в отличие от способов, предложенных в /3,4/, не требуется фазировки этих импульсов.

Автор благодарен В. Н. Сазонову за внимание к работе и ряд полезных предложений. Автор благодарит за обсуждение участников семинара В. Л. Гинзбурга, а также В. Ю. Финкельштейна.

Поступила в редакцию
31 марта 1977 г.

Л и т е р а т у р а

1. В. С. Летохов, С. Б. Мур, Квантовая электроника, 3, 248, 485, (1976); Н. Г. Басов, Э. М. Беленов, В. А. Исаков, Е. П. Маркин, А. Н. Ораевский, В. И. Романенко, УФН, 121, № 3 (1977).
2. В. Н. Луговой, В. Н. Стрельцов, Письма в ЖЭТФ, 21, 442 (1975).
3. Г. А. Аскаръян, В. А. Намиот, Письма в ЖЭТФ, 21, 646 (1975).
4. А. Н. Ораевский, Л. А. Степанов, В. А. Щеглов, ЖЭТФ, 69, 1991 (1975).
5. Я. Б. Зельдович, УФН, 110, 139 (1973); ЖЭТФ, 51, 1492 (1966); В. И. Ритус, ЖЭТФ, 51, 1544 (1966).
6. М. В. Кузьмин, Квантовая электроника, 5, (в печати).
7. D. M. Larsen, N. Bloembergen, Optics Commun., 17, 254 (1976).