

# Math-Net.Ru

Общероссийский математический портал

В. Е. Зуев, Ю. Н. Пономарев, Б. А. Тихомиров, Изменение поглощения на колебательно-вращательных переходах дипольных молекул под действием резонансного излучения линейной поляризации,  
*Докл. АН СССР*, 1984, том 277, номер 2, 347–350

<https://www.mathnet.ru/dan46642>

Использование Общероссийского математического портала Math-Net.Ru подразумевает, что вы прочитали и согласны с пользовательским соглашением

<https://www.mathnet.ru/rus/agreement>

Параметры загрузки:

IP: 18.97.14.87

14 мая 2025 г., 12:22:52



Академик В.Е. ЗУЕВ, Ю.Н. ПОНОМАРЕВ, Б.А. ТИХОМИРОВ

### ИЗМЕНЕНИЕ ПОГЛОЩЕНИЯ НА КОЛЕБАТЕЛЬНО-ВРАЩАТЕЛЬНЫХ ПЕРЕХОДАХ ДИПОЛЬНЫХ МОЛЕКУЛ ПОД ДЕЙСТВИЕМ РЕЗОНАНСНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ ЛИНЕЙНОЙ ПОЛЯРИЗАЦИИ

Исследования взаимодействия интенсивного лазерного излучения с колебательно-вращательными переходами молекул в основном электронном состоянии актуальны как для понимания природы взаимодействия света со сложными квантовыми системами, так и для решения прикладных задач, связанных с прохождением лазерного излучения через поглощающие газы и атмосферу. Особый интерес в последнем случае представляют исследования зависимости коэффициентов поглощения основных молекулярных поглотителей атмосферы — паров  $H_2O$  и  $CO_2$  — от интенсивности лазерного излучения. Этот интерес обусловлен прежде всего тем, что в используемых на практике лазерных системах локации, дальнометрирования, зондирования параметров атмосферы и т.п. мощности лазерных импульсов достигают значений, характерных для проявления различных нелинейных спектроскопических эффектов.

Для проведения указанных исследований в Институте оптики атмосферы СО АН СССР создан комплекс уникальных оптико-акустических спектрометров с мощными узкополосными лазерами на рубине (длина волны излучения  $\lambda = 0,69$  мкм), стекле с неодимом ( $\lambda = 1,06$  мкм) и  $CO_2$  ( $\lambda = 10,6$  мкм) [1–3], позволяющих исследовать зависимость поглощенной газом энергии лазерного пучка от входной энергии или интенсивности последнего даже для переходов, характеризующихся малыми значениями коэффициентов поглощения  $k \leq 10^{-5}$  см $^{-1}$ . Характеристики спектрометров и методика оптико-акустических измерений при больших интенсивностях лазерного излучения описаны в [1, 2].

Результаты проведенных экспериментальных исследований зависимости коэффициента поглощения на колебательно-вращательных переходах в  $CO_2$  и  $H_2O$  от интенсивности (энергии), длины волны и поляризации лазерного излучения, взаимодействующего со средой, оказались нетривиальными и потребовали качественно нового подхода к их интерпретации, что и является основной целью данной статьи.

При интерпретации результатов указанных исследований использовано отношение доли поглощенной газом энергии к энергии лазерного импульса на входе в ячейку оптико-акустического спектрометра, характеризуемое параметром  $A$ , измеряемым в эксперименте,

$$A(\lambda, I) = \frac{\int_0^T k(\lambda, I) I(t) dt}{\int_0^T I(t) dt},$$

где  $\lambda$  — длина волны излучения;  $k$  — зависящий от интенсивности коэффициент поглощения;  $T$  — время действия на среду светового импульса. Как показано в [4], поведение  $A(\lambda, I)$  при возрастании интенсивности излучения коррелирует

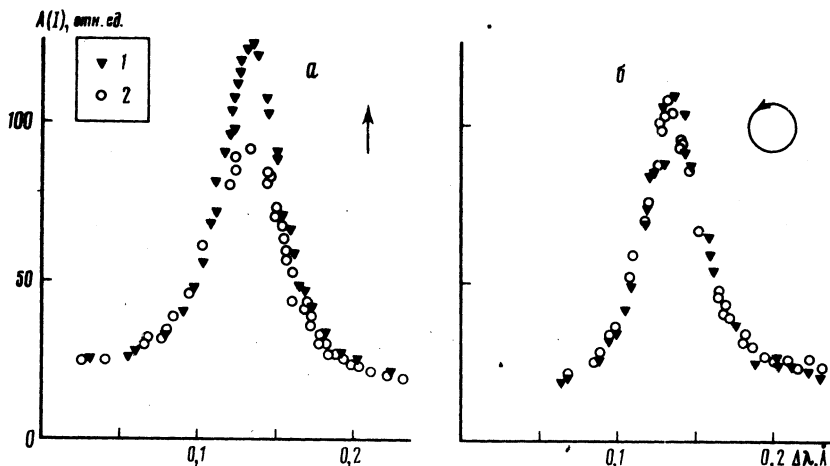


Рис. 1. Зависимость энергии, поглощенной на колебательно-вращательном переходе  $\text{H}_2\text{O}$  ( $\lambda_D = 694,38$  нм) для смеси  $\text{H}_2\text{O} + \text{воздух}$  ( $P_{\text{общ}} = 300$  тор), от интенсивности излучения линейной (а) и круговой (б) поляризации.  $I = 5 \pm 1$  (1) и  $35 \pm 5$  МВт/см<sup>2</sup> (2)

с поведением истинного коэффициента поглощения  $\kappa(\lambda, I)$ . В случае действия спектроскопического эффекта насыщения максимум распределения  $A(\lambda, I)$  уменьшается, а ширина увеличивается.

В [3] исследована зависимость поглощения атмосферного  $\text{CO}_2$  от интенсивности излучения импульсного  $\text{CO}_2$ -лазера, работающего на фиксированной частоте 10,6 мкм. Длительность неполяризованного моноимпульсного излучения  $\text{CO}_2$ -лазера равнялась 300 нс. Интенсивность излучения на входе в кювету достигала 2 МВт/см<sup>2</sup>. В эксперименте наблюдалось отчетливое уменьшение поглощения при возрастании интенсивности. При  $I \sim 1,0$  МВт/см<sup>2</sup>  $A(I)/A(0) \sim 0,7$ . Оценки уменьшения поглощения за счет насыщения колебательно-вращательного перехода Р20, выполненные в соответствии с [5] для условий описываемого эксперимента ( $p_{\text{CO}_2} \ll p_{\text{возд}} = 100$  тор), дают для пороговой интенсивности импульса длительностью 300 нс значение  $I_S \sim 0,5$  МВт/см<sup>2</sup>, хорошо согласующееся с результатами экспериментов по наблюдению насыщения поглощения в смеси  $\text{CO}_2 + \text{Ar}$  [6].

При измерении зависимости от интенсивности поглощенной на колебательно-вращательном переходе  $4_{-3}-5_{-4}$  полосы 000–103 молекулы  $\text{H}_2\text{O}$  ( $\lambda_0 = 6941,38$  нм), имеющей постоянный дипольный момент  $d = 1,94$  CGSE, использовался моноимпульсный перестраиваемый по длине волны рубиновый лазер с шириной спектра  $\leq 0,01$  см<sup>-1</sup>, длительностью импульса 40 нс и линейной поляризацией излучения. В этом случае зарегистрировано уменьшение поглощения в максимуме исследуемой линии при  $I \sim 20$  МВт/см<sup>2</sup> как для смеси  $\text{H}_2\text{O} + \text{воздух}$ , так и для смеси  $\text{H}_2\text{O}-\text{N}_2$  (рис. 1а, табл. 1) и полное отсутствие уширения контура распределения  $A(\lambda, I)$  с ростом интенсивности. Как показывает проведенная в соответствии с работой [5] оценка, в рассматриваемом случае должно выполняться условие  $I_S \geq 10^9$  Вт/см<sup>2</sup>. В этой оценке для рассматриваемого перехода взяты сечение резонансного поглощения  $\sigma = 8 \cdot 10^{-21}$  см<sup>2</sup> и время вращательной релаксации  $\sim 2 \cdot 10^{-9}$  с при  $p_{\text{возд}} \sim 300$  тор.

Таким образом, в отличие от случая взаимодействия неполяризованного излучения  $\text{CO}_2$ -лазера с молекулой  $\text{CO}_2$ , не обладающей дипольным моментом, результаты эксперимента по изменению поглощения на переходах  $\text{H}_2\text{O}$  расходятся с оценкой для пороговой интенсивности эффекта насыщения почти на два порядка. Кроме того, в последнем случае не наблюдается уширения регистрируемого рас-

Т а б л и ц а 1

Зависимость параметров контура  $A(\lambda, I)$  от интенсивности излучения при поглощении в линии  $H_2O$  ( $\lambda_0 = 694,38$  нм)

Уширяющий газ	$\rho$ , мм.рт.ст.	$I_{\text{лаз}}$ , МВт/см <sup>2</sup>	$A^{\text{max}}(I)$ , отн.ед	$\gamma_{\text{изм}}$ , см <sup>-1</sup> ( $\pm 10^{-2}$ см <sup>-1</sup> )
Воздух	750	$5 \pm 0,5$	6,5	0,20
		$35 \pm 3,5$	5,1	0,21
	500	$3 \pm 0,3$	9,5	0,16
		$8,5 \pm 0,8$	8,5	0,17
	270	$25 \pm 2,5$	7,6	0,17
		$5 \pm 0,5$	10,7	0,11
Азот	470	$35 \pm 3,5$	6,0	0,10
		$6 \pm 0,6$	6,5	0,14
	300	$23 \pm 2,3$	5,5	0,13
		$4 \pm 0,4$	8,0	0,11
		$24 \pm 2,4$	5,6	0,10

Примечание. Погрешность измерения  $A^{\text{max}}$  в относительных единицах не превышает 5%. Под  $\gamma_{\text{изм}}$  понимается полная ширина распределения  $A(\lambda)$  на уровне  $0,5 A^{\text{max}}$ .

пределения  $A(\lambda, I)$  с ростом интенсивности излучения, как это должно быть при насыщении поглощения в условиях нестационарного взаимодействия [4].

Далее нами были выполнены измерения поглощения в тех же условиях для той же линии 694,38 нм  $H_2O$  с интенсивным излучением круговой поляризации, для чего перед входным окном ячейки ОАС ставилась пластинка  $\lambda/4$ . Результаты этих измерений показаны на рис. 1б, убедительно иллюстрирующем отсутствие изменения как ширины распределения, так и  $A^{\text{max}}$  в центре линий от интенсивности излучения круговой поляризации.

Совокупность описанных выше экспериментальных результатов по исследованию поглощения интенсивного лазерного излучения на колебательно-вращательном переходе в дипольной молекуле  $H_2O$  и сопоставление их с результатами по поглощению излучения 10,6 мкм на переходах в молекуле  $CO_2$  позволяют сделать вывод, что причиной уменьшения поглощения в  $H_2O$  не является спектроскопический эффект насыщения, т.е. выравнивание заселенностей уровней, взаимодействующих с излучением.

На наш взгляд, причиной уменьшения поглощательной способности  $H_2O$  под действием интенсивного излучения линейной поляризации может быть ориентирование молекул, обладающих постоянным электрическим моментом, полем световой волны.

Возможность такого ориентирования показана в работах [7, 8]. Оно может привести к изменению потенциала межмолекулярного взаимодействия, вращательной энергии и распределения молекул по вращательным подуровням нижнего колебательного состояния и, как следствие, наблюдаемому в эксперименте уменьшению поглощения.

В соответствии с работой [7] для молекулы  $H_2O$  и ее наибольшего момента инерции  $J \approx 3 \cdot 10^{-40}$  г · см<sup>2</sup> при  $I = 50$  МВт/см<sup>2</sup> время ориентирования

$$\tau_{\text{ор}} \sim \left( \frac{dE}{2J} \right)^{-1/2} \sim 10^{-12} \text{ с,}$$

а соответствующее пороговое значение напряженности электрического поля

$$E_{\text{ор.пор}} \geq \frac{18J}{\tau_{\text{пр}} d} \sim 100 \text{ В/см,}$$

где  $\tau_{\text{пр}}$  — время свободного пробега молекул, которое для условий наших экспериментов составляет  $\sim 10^{-10}$  с. Отношение  $\tau_{\text{ор}} : \tau_{\text{пр}} : T = 10^{-12} : 10^{-10} : 4 \cdot 10^{-8}$  говорит о том, что за время действия импульса его поле успевает к каждому последующему столкновению ориентировать частицы среды определенным образом и за это же время ориентированные частицы успевают многократно провзаимодействовать, что может привести к изменению усредненного межмолекулярного потенциала. Рассмотренный физический механизм объясняет и резкое расхождение результатов эксперимента для  $\text{H}_2\text{O}$  с оценкой эффекта насыщения, и отсутствие уменьшения поглощения для поля круговой поляризации, когда ориентирование не осуществляется, и отсутствие уширения контура линии поглощения.

Окончательное подтверждение справедливости предложенного нами механизма уменьшения поглощения дипольных молекул в поле линейной поляризации требует соответствующих дополнительных экспериментальных исследований, например, одновременной регистрации большого числа вращательных переходов одной колебательной полосы методом внутривибрационной спектроскопии [9] при наложении на ячейку с газом внешнего электрического поля. В зависимости от напряженности поля в этом случае станет возможной регистрация относительных изменений интенсивности линий в спектре поглощения.

Институт оптики атмосферы  
Сибирского отделения Академии наук СССР, Томск

Поступило  
14 III 1983

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Ageev B.G., Zuev V.E., Ponomarev Yu.N., Tikhomirov B.A. — Abstr. of Intern. conf. and school. Lasers and applications. Bucharest, 1982, vol. 2, p. 1–3.
2. Лопасов В.П., Пономарев Ю.В., Пономарева С.Б., Тихомиров Б.А. — Квантовая электроника, 1980, т. 7, № 12, с. 2582–2588.
3. Агеев Б.Г., Пономарев Ю.Н., Чистякова Л.К. — Изв. вузов. Физика, 1982, № 10, с. 49–51.
4. Пономарев Ю.Н., Пономарев С.Б. — Оптика и спектроскопия, 1981, т. 51, № 3, с. 529–534.
5. Летохов В.С., Макаров А.А., Рябов Е.А. — ДАН, 1973, т. 212, № 1, с. 75–78.
6. Рябов Е.А. — Квантовая электроника, 1975, т. 2, № 1, с. 138–140.
7. Гайдук В.И. О релаксационных свойствах средней энергии и поглощения ансамбля жестких ротаторов в поле излучения. Препринт ИРЭ АН СССР, 1972, № 97.
8. Браун П.А., Мирошниченко Г.П. — Оптика и спектроскопия, 1979, т. 47, № 4, с. 657–662.
9. Зуев В.Е., Лопасов В.П., Синица Л.Н. — Там же, 1978, т. 45, № 3, с. 590–594.