

07;10;12

©1993

**ПЕРСПЕКТИВЫ ПРИМЕНЕНИЯ ЛАЗЕРОВ  
НА СВОБОДНЫХ ЭЛЕКТРОНАХ  
С МОДУЛИРОВАННОЙ ИНЖЕКЦИЕЙ  
ЭЛЕКТРОННОГО ПУЧКА ДЛЯ ВОЗБУЖДЕНИЯ,  
ДИССОЦИАЦИИ И ИОНИЗАЦИИ  
НЕЭКВИДИСТАНТНЫХ МНОГОУРОВНЕВЫХ  
МОЛЕКУЛЯРНЫХ СИСТЕМ**

*Ф. Ф. Барышников*

1. Резонансное воздействие электромагнитного излучения на молекулярные системы является наиболее эффективным средством целенаправленного изменения их свойств (многофотонная бесстолкновительная диссоциация, многоступенчатая ионизация, селективное возбуждение) [1-2].

Применение метода резонансного многочастотного воздействия [3-6] сдерживалось отсутствием источника излучения с широкодиапазонной перестройкой длины волны и гибким управлением.

В настоящей работе предлагается в качестве такого источника использовать лазер на свободных электронах (ЛСЭ) на базе электронного ускорителя с периодической инжекцией электронного пучка в ондулятор и с синхронным изменением параметров электронного пучка и оптического резонатора. Таким ускорителем может быть, например, разрезной микротрон [7], формирующий электронные импульсы с длиной порядка нескольких сантиметров и с частотой от нескольких мегагерц до нескольких гигагерц.

2. Известно [8], что световой импульс в оптическом резонаторе ЛСЭ синхронизован с электронным сгустком и его длина, примерно равная длине электронного сгустка, значительно меньше длины резонатора.

При достаточно большой длине оптического резонатора ЛСЭ и высокой частоте инжекции электронов в резонаторе могут одновременно находиться несколько световых импульсов.

Параметры этих импульсов, связанные с характеристиками электронного пучка и оптического резонатора, могут изменяться независимо.

В оптическом резонаторе при этом будут формироваться несколько независимых световых мод с частотами, резонансными соответствующим молекулярным переходам.

3. Возможность реализации метода рассмотрим на примере ЛСЭ на базе разрезного микротрона [7,9]. Для того чтобы в резонаторе существовали одновременно несколько световых сгустков, необходимо:

$$2 \cdot L \cdot n = c \cdot N, \quad (1)$$

где  $N$  — число световых сгустков,  $L$  — база резонатора,  $n$  — частота инъекции,  $c$  — скорость света. Полагая  $L = 50$  м,  $N = 5$ , получим  $n = 15$  МГц. Эта частота позволяет использовать для управления световыми пучками не только электрооптические, но и пьезо- и акусто-устройства [10].

Хорошо известно [8], что ЛСЭ излучает на частоте  $\nu \propto \gamma^2$ , где  $\gamma = E/Mc^2$ ,  $E$  и  $M$  — энергия и масса электрона. Величина  $\gamma$  может изменяться при установке до и после ондулятора дополнительных ускоряющих элементов, например, дополнительных ВЧ-резонаторов, причем второй резонатор, находясь в момент прохождения пучка в противофазе, снимает проблему согласования параметров электронного пучка с аксептансом ускорителя при последующей рекуперации энергии [7,9].

Существуют и другие способы оперативного управления частотными характеристиками излучения ЛСЭ, в частности, управление фазой инъекции электронного пучка, управление магнитным полем группирователя оптического клистрона, использование сложных управляемых оптических дисперсионных систем и сложных управляемых магнитных группирователей [9,12]. Остановимся для оценок на методе прямого изменения энергии электронного пучка. Для конкретного проекта [9] излучаемые частоты (2–20 мкм) перекрывают диапазон колебательного возбуждения для большинства молекулярных систем. Однако диапазон оперативной перестройки существенно уже. Для возбуждения  $N$  последовательных переходов в молекуле с характерной расстройкой  $\Delta_{\text{eff}}$  необходимо обеспечить диапазон перестройки  $\Delta \propto N \cdot \Delta_{\text{eff}}$ . Если взять  $N = 5$ ,  $\Delta_{\text{eff}} = 3 \text{ см}^{-1}$ , то получим  $\Delta = 15 \text{ см}^{-1}$ . При этом относительное изменение энергии электрона

$$\frac{\delta E}{E} \propto 0.5 \frac{\Delta}{\nu}, \quad (3)$$

что для  $\nu \sim 10^3 \text{ см}^{-1}$  оказывается меньше 1%. В проекте [9] двойная амплитуда набора энергии в ВЧ-резонаторе составляет 5% от полной энергии.

4. Световые импульсы после выведения из резонатора могут быть вначале пространственно разделены с помощью, например, отражающего зеркала на пьезодержателях

[10], а затем направлены в одном пакете на образец с оптимальной временной задержкой.

Время однократного колебательного возбуждения [13]

$$t = G^{-1}, \quad (4)$$

где  $G = d \cdot E / \hbar$  — частота Раби рассматриваемого перехода,  $d$  — матричный элемент дипольного момента,  $E$  — амплитуда лазерного поля,  $\hbar$  — постоянная Планка. После прохождения дискретного участка спектра для продвижения в энергетическом квазиконтинууме можно использовать вспомогательный  $\text{CO}_2$  лазер, причем требование к резонансности переходов при этом снимается. Напомним, что, хотя длительность одного пакета порядка нескольких десятков пикосекунд, время между пакетами  $2L/c$  порядка нескольких микросекунд. Ясно, что для пренебрежения столкновительной  $UU$ -релаксации без вспомогательного лазера необходимо давление меньше одного тора.

5. Как показано в [12], ширина спектра излучения ЛСЭ может быть доведена до Фурье-предельного значения (в обратных сантиметрах):

$$\delta\nu \approx 1/2\sigma\tau. \quad (5)$$

Полагая  $\tau = 30$  пс, получим  $\delta\nu = 0.5 \text{ см}^{-1}$ , что в большинстве случаев достаточно и для эффективного прохождения ангармонического барьера и для изотопически-селективного воздействия. Так, изотопическое расщепление в молекуле  $\text{VCl}_3(10/11)$  равно  $39 \text{ см}^{-1}$ , хотя для  $\text{UF}_6(235/238)$  эта величина равна всего  $0.7 \text{ см}^{-1}$ .

Условие сохранения селективности  $2G \lesssim \delta\nu$  ( $2G$  — полевое уширение) может вступить в противоречие с условием возбуждения (4). Ясно, что во избежание этого необходимо

$$2 \cdot \delta\nu \cdot \tau \gtrsim 1. \quad (6)$$

Если  $\delta\nu \sim 0.5 \text{ см}^{-1}$ , то из (6) следует  $\tau \gtrsim 30$  пс. Из (4) можно также оценить энергетические характеристики лазерного импульса. Полагая  $\tau = 30$  пс,  $d = 0.3$  Дебая, получим для интенсивности излучения  $J = 0.6 \text{ МВт/см}^2$ , вполне умеренную величину.

Поскольку столкновительная релаксация возбужденных уровней препятствует эффективному возбуждению, необходимо либо уменьшать длительность импульсов, вступая, в силу условия (5), в противоречие с требованием селективности, либо работать с объектами, для которых можно пренебречь столкновительной релаксацией. Это молекулы в

газовой фазе пониженного давления, молекулы, адсорбированные твердой поверхностью, и молекулы в криогенных матрицах. Здесь возможен процесс возбуждения колебательных состояний с последующей диссоциацией, а в случае многоатомных молекул при сильном перевозбуждении выше порога диссоциации и ионизацией [1,2].

6. Основной интерес описанная методика, объединяющая высокую селективность ( $\delta\nu \sim 0.5 \text{ см}^{-1}$ ) и кратковременность воздействия ( $\tau = 10-100 \text{ пс}$ ), может найти в разделении изотопов, в лазерной химии для управления протеканием химических реакций, возможно, для селективного возбуждения отдельных колебательных мод и т.д. Важным практическим результатом для лазерной химии могла бы быть демонстрация лазерной диссоциации двухатомных гетерополярных молекул, которые из-за сильного ангармонизма и неразвитого энергетического квазиконтинуума не поддаются диссоциации одночастотным лазерным излучением.

Автор благодарен С.С.Алимпиеву и В.Н.Баграташвили (ИОФАН, Москва) за стимулирующее обсуждение, А.К.Петрову (ИХКиВ СО РАН, Новосибирск) за интерес к задаче и Н.А.Винокурову (ИЯФ СО РАН, Новосибирск) за многочисленные полезные обсуждения.

### 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] Аскаръян Г.А., Намиот В.А. // Письма в ЖЭТФ. 1975. Т. 21. В. 11. С. 646-649.
- [4] Амбарцумян Р.В., Горохов Ю.А., Летохов В.С., Макаров Г.Н., Пурецкий А.А., Фурзиков Н.П. // Письма в ЖЭТФ. 1976. Т. 23. В. 4. С. 217-220.
- [5] Акулин В.М., Алимпиев С.С., Карлов Н.В., Прохоров А.М., Сартаков Б.Г., Хохлов Э.М. // Письма в ЖЭТФ. 1977. Т. 25. В. 9. С. 428-431.
- [6] Letokhov V.S., Mishin V.I. // Opt. Comm. 1979. V. 29. N 2. P. 168-171.
- [7] Лебедев А.Н., Шальнов А.В. Основы физики и техники ускорителей. М.: Энергоатомиздат, 1991. 528 с.
- [8] Маршалл Т. Лазеры на свободных электронах. М.: Мир, 1987. 240 с.
- [9] Gaurilov N.G., Gorniker E.I., Kulipanov G.N. Kuptsov I.V., Kurkin G.Ya., Oreshkov A.D., Petrov V.M., Pinaev I.V., Sedlyarov I.K., Skrinisky A.N., Sokolov A.S., Veshchervich V.G., Vinokurov N.A., Vobly P.D. // IEEE J. QE. 1991. V. 27. N 12. P. 2626-2628.
- [10] Анохов С.П., Марусий Т.Я., Соскин М.С. Перестраиваемые лазеры. М.: Радио и Связь, 1982. 360 с.

- [11] Бенуэлл К. Основы молекулярной спектроскопии. М.: Мир, 1985. 384 с.
- [12] Litvinenko V.N., Coupric M.E., Gavrilov N.G., Kulipanov G.N., Pinaev I.V., Popik V.M., Skrinisky A.N., Vinokurov N.A. // IEEE J. QE. 1991. V. 27. N 12. P. 2560-2565.
- [13] Базь А.И., Зельдович Я.Б., Переломов А.М. Рассеяние, реакции и распады в нерелятивистской квантовой механике. М.: Наука, 1971. 544 с.

Поступило в Редакцию  
12 августа 1993 г.

---