

ДИССОЦИАЦИЯ КОЛЕБАТЕЛЬНО-ВОЗБУЖДЕННЫХ ГЕТЕРОЯДЕРНЫХ МОЛЕКУЛ ИНТЕНСИВНЫМ ИНФРАКРАСНЫМ ПОЛЕМ

*А. М. Попов, О. В. Тихонова, В. Ю. Харин**

*НИИ ядерной физики им. Д. В. Скобельцына,
Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова
119234, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 22 июля 2013 г.

Представлены результаты численного моделирования колебательно-вращательной динамики молекулярной системы в поле интенсивного инфракрасного лазерного импульса. Рассмотрены случаи квазимонохроматического и предельно короткого воздействия на ядерную подсистему. Обсуждается влияние когерентного перезаселения колебательно-вращательных состояний молекулы на фотодиссоциацию, а также особенности фотодиссоциации под действием импульса предельно короткой длительности. Результаты, полученные для квазимонохроматического воздействия, интерпретируются в терминах интерференционной стабилизации.

DOI: 10.7868/S0044451014030021

1. ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время в физике сверхсильных световых полей все большее внимание уделяется вопросам взаимодействия низкочастотного лазерного излучения с веществом. Поведение молекулярной системы в низкочастотном поле существенно отличается от динамики системы под действием видимого излучения. Это связано в первую очередь с существенной частотной отстройкой от резонансных переходов, например, между электронными уровнями (что при теоретическом описании соответствует квазистатическому пределу), а также с возможностью эффективного возбуждения ядерных степеней свободы, особенно гетероядерных молекул, в процессе взаимодействия с низкочастотным полем.

При этом большой интерес представляют динамика и структура сформированного в низкочастотном поле колебательно-вращательного волнового пакета, а также его устойчивость по отношению к процессу диссоциации. Подавление диссоциации молекул в сильных полях известно как явление фотостабилизации (относительно диссоциации) и является одним из наиболее ярких эффектов, выходящих за

рамки теории возмущений и проявляющихся в режиме сильного поля [1, 2]. В наиболее общей формулировке под стабилизацией понимается снижение скорости распада квантовомеханической системы при увеличении интенсивности лазерного излучения (либо другого квазипериодического воздействия). Стабилизация атомов относительно процесса ионизации в настоящее время — хорошо изученное [1–6] и экспериментально подтвержденное [1, 7] явление. Принято выделять два основных механизма стабилизации относительно ионизации — интерференционный механизм [2] и стабилизацию Крамерса–Хеннебергера [5, 6]. И в том, и в другом случае стабилизация возникает как следствие формирования набора квантовомеханических состояний, «одетых» полем. Такие состояния принципиально отличаются от собственных состояний невозмущенной системы своими свойствами. В случае интерференционной стабилизации ридберговских атомов относительно ионизации «одетые» состояния формируются в результате перекрытия ионизационных ширин близколежащих ридберговских уровней и дальнейшего когерентного перезаселения этих состояний посредством эффективных рамановских переходов Λ - и V -типов [3].

Стабилизация молекулярных систем относительно диссоциации в интенсивном лазерном поле также возможна и была обнаружена для не слишком

*E-mail: w.kharin@list.ru

низких частот лазерного излучения, при которых переходы между электронными термами молекулы играют важную роль. Ранее широко изучался вопрос об изменении эффективной формы молекулярных термов за счет формирования «одетых» электронных состояний, и, как следствие, изменении эффективного гамильтониана для ядерной подсистемы молекулы [8]. Это приводит к ослаблению связи (bond-softening) для одних термов и ее усилению для других (bond-hardening) [8, 9]. Также возможна интерференционная стабилизация молекулярных систем за счет рамановских переходов между связанными колебательными состояниями через колебательный континуум лежащего выше электронного терма [10].

В связи с этим чрезвычайно интересным и важным с фундаментальной точки зрения оказывается неисследованный пока вопрос о существовании режима интерференционной стабилизации молекулярных систем в низкочастотном поле, когда переходы между электронными термами сильно подавлены. В случае гетероядерных молекул поле может оказывать непосредственное действие на ядерную подсистему молекулы и приводить к когерентному перезаселению колебательно-вращательных уровней и к диссоциации системы в пределах исходного (основного) электронного терма.

В этих условиях особое значение приобретает взаимодействие колебательной и вращательной степеней свободы молекулы друг на друга в процессе их возбуждения лазерным полем, в том числе влияние динамического выстраивания молекулы на диссоциацию, а также роль эффективного колебательного возбуждения в процессе выстраивания и ориентирования молекулы лазерным полем. При этом особый интерес представляет случай ультракороткого лазерного воздействия, когда лазерный импульс сильно «возмущает» систему, а сама динамика происходит уже в постимпульсном режиме. В работах [11, 12] подробно проанализировано действие такого импульса на молекулу в приближении жесткого ротатора, т. е. в приближении фиксированного расстояния между ядрами. Однако одновременное возбуждение колебательных и вращательных степеней свободы и их влияние друг на друга может привести к существенному отличию динамики системы от предсказаний упрощенной модели жесткого ротатора.

В данной работе на основе численного решения нестационарного уравнения Шредингера исследуется колебательно-вращательная динамика гетероядерной молекулы в низкочастотном лазерном поле,

в том числе ультракороткой длительности. Частота лазерного излучения выбиралась достаточно малой, чтобы обеспечить пренебрежимо малое возбуждение электронных термов молекулы в процессе лазерного воздействия. Анализируется режим интерференционной стабилизации молекулярной системы относительно процесса диссоциации, продемонстрирована роль переходов Λ - и V -типа в лазерном поле. Исследуется взаимовлияние колебательных и вращательных возбуждений в процессе лазерного воздействия, а также возможность эффективного выстраивания молекулы лазерным импульсом в условиях одновременного эффективного колебательного возбуждения.

2. ЧИСЛЕННАЯ МОДЕЛЬ

В случае гетероядерных молекул возможно непосредственное действие лазерного поля на ядерную подсистему молекулы, поскольку имеется отличный от нуля суммарный дипольный момент ядер. В условиях, когда из-за низкой частоты воздействия лазерного поля перезаселение лежащих выше электронных термов (кроме исходного) оказывается пренебрежимо мало, в рамках приближения Борна–Оппенгеймера правомерно рассмотрение колебательно-вращательной динамики молекулы (включая ее диссоциацию) в пределах одного электронного терма. В этом случае эволюция ядерной подсистемы двухатомной молекулы во внешнем поле определяется нестационарным уравнением Шредингера:

$$i\hbar \frac{\partial \psi}{\partial t} = -\frac{\hbar^2}{2\mu} \Delta \psi + V(r)\psi - q\mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(t)\psi. \quad (1)$$

Здесь первое слагаемое в правой части содержит трехмерный оператор Лапласа, характеризующий кинетическую энергию как колебаний, так и вращений молекулы, $V(r)$ — потенциальная энергия колебаний ядер, r — межъядерное расстояние, μ — приведенная масса молекулы, q — эффективный заряд, характеризующий дипольный момент ядерной подсистемы молекулы, $\mathbf{E}(t)$ — напряженность внешнего лазерного поля. Полагая поле линейно поляризованным и выбирая ось квантования момента импульса молекулы по направлению поля, удобно представить волновую функцию в сферических координатах в виде разложения по сферическим гармоникам:

$$\psi(r, \theta, \phi, t) = \sum_{j=0}^{\infty} \sum_{m=-j}^j \frac{u_j^m(r, t)}{r} Y_j^{(m)}(\theta, \phi). \quad (2)$$

Если излучение линейно поляризовано, то проекция момента импульса ядерной подсистемы на направление поля является интегралом движения и решения, соответствующие различным значениям m , могут рассматриваться независимо. Тогда подстановка (2) в (1) приводит к следующей системе уравнений для функции u_j^m при фиксированном m :

$$i\hbar \frac{\partial u_j}{\partial t} = -\frac{\hbar^2}{2\mu} \frac{\partial^2 u_j}{\partial r^2} + \left(V(r) + \frac{\hbar^2 j(j+1)}{2\mu r^2} \right) u_j - qrE(t) \left(\beta_{j+1}^j u_{j+1} + \beta_{j-1}^j u_{j-1} \right). \quad (3)$$

В частности, для $m = 0$ коэффициенты β задаются выражениями [13]

$$\beta_{j+1}^j = \frac{j+1}{\sqrt{(2j+1)(2j+3)}}, \quad (4)$$

$$\beta_{j-1}^j = \frac{j}{\sqrt{(2j-1)(2j+1)}}. \quad (5)$$

В соответствии с основными результатами работы [3], для интерференционной стабилизации в атомах необходимо перекрытие ионизационных ширин

состояний. С учетом этого в случае гетероядерной молекулы режим интерференционной стабилизации относительно диссоциации возможен при достаточно плотном спектре высоко лежащих колебательных состояний и эффективных переходах в колебательный континуум из этих состояний под действием лазерного поля. Исходя из этих требований, были выбраны параметры молекулярной системы, приближенно соответствующие молекуле ИВг. В качестве потенциала, характеризующего колебательную энергию ядер, был взят потенциал Морзе с энергией связи 1.3 эВ, равновесным межъядерным расстоянием 2.5 Å и показателем $\alpha = 5$. Частота лазерного излучения выбиралась достаточно низкой, чтобы обеспечить малое заселение всех электронных термов, кроме исходного. В расчетах она полагалась равной 0.1 эВ. Лазерное поле задавалось в виде импульса

$$E(t) = E_0(t) \cos \omega t, \quad (6)$$

где огибающая выбиралась в форме «сглаженной трапеции»:

$$E_0(t) = \begin{cases} A \sin^2 \frac{\pi t}{2T_f}, & t \leq T_f, \\ A, & T_f < t \leq T_f + T_p, \\ A \cos^2 \frac{\pi(t - T_f - T_p)}{2T_t}, & T_f + T_p < t \leq T_f + T_p + T_t, \\ 0, & t > T_f + T_p + T_t. \end{cases} \quad (7)$$

Здесь T_f , T_p и T_t — длительности соответственно фронта, «плато» и «хвоста» импульса, A — амплитудное значение поля. В расчетах полагалось, что фронт и «хвост» импульса имеют одинаковую длительность $T_f = T_t$. Система уравнений (3) решалась численно разностным методом с использованием явно-неявной схемы с последующим итерированием. Начальное состояние выбиралось в виде суперпозиции колебательно-вращательных состояний с нулевой проекцией момента импульса $m = 0$. Из полученной нестационарной волновой функции системы определялись вероятность диссоциации молекулы

$$W_d = 1 - \sum_{v,j} |\langle \psi | \phi_{v,j} \rangle|^2, \quad (8)$$

вероятности заселения различных колебательных и вращательных состояний соответственно

$$W_v = \sum_j |\langle \psi | \phi_{v,j} \rangle|^2, \quad W_j = \sum_v |\langle \psi | \phi_{v,j} \rangle|^2,$$

а также двумерное распределение плотности вероятности в зависимости от межъядерного расстояния и угла θ

$$\rho(r, \theta, t) = |\psi(r, \theta, t)|^2.$$

Здесь v и j — колебательные и вращательные квантовые числа, $\{\phi_{v,j}\}$ — соответствующий набор стационарных волновых функций связанных состояний, который находился отдельно из решения стационарного уравнения Шредингера с гамильтонианом

$$\hat{H} = -\frac{\hbar^2}{2\mu} \Delta_{r,\theta,\varphi} + V(r). \quad (9)$$

Отметим, что решение такой стационарной задачи представляет отдельную проблему, так как для каждого квантового числа j имеется свой набор колебательных состояний, характеризующихся плотным спектром по энергии и сильной изрезанностью по координате для больших v .

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

При исследовании действия квазимонохроматического излучения на модельную молекулярную систему был обнаружен режим интерференционной стабилизации относительно процесса диссоциации. В этом случае в качестве начального состояния была взята суперпозиция высоковозбужденных колебательных состояний с квантовыми числами $v = 37$ и $v = 39$ с одинаковой амплитудой вероятности, характеризующихся энергиями связи $E_{37} = 0.082$ эВ и $E_{39} = 0.058$ эВ.

В численном эксперименте стабилизация проявляется в первую очередь в существенном отклонении вероятности диссоциации как функции интенсивности лазерного воздействия от зависимости, предсказываемой теорией возмущений. В рамках пертурбативного подхода вероятность диссоциации в импульсе с характерной длительностью τ может быть представлена в следующем виде:

$$W_d(I) = 1 - \exp(-\Gamma(I)\tau).$$

Здесь $\Gamma(I)$ — скорость диссоциации, зависящая от лазерной интенсивности и вычисляемая в соответствии с золотым правилом Ферми. Полученная зависимость представлена на рис. 1 штриховой кривой. При этом коэффициент пропорциональности между скоростью диссоциации и интенсивностью определялся из наклона линейной зависимости вероят-

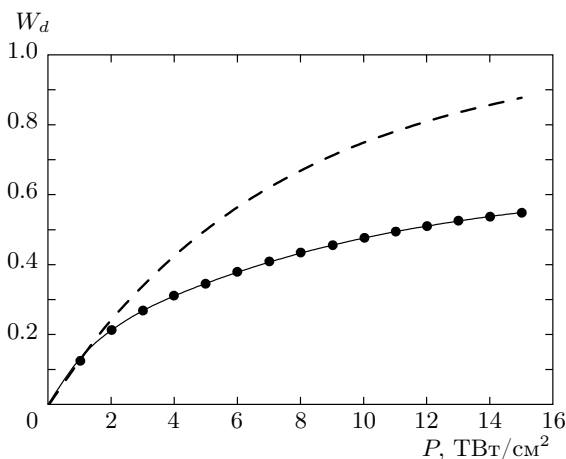


Рис. 1. Зависимости вероятности диссоциации от интенсивности лазерного импульса с длительностями фронтов и плато соответственно 2 и 40 оптических циклов: сплошная кривая — результат численного расчета, штриховая кривая — зависимость, полученная в рамках теории возмущений (см. обсуждение в тексте)

ности диссоциации от интенсивности в слабых полях, полученной в численном счете (рис. 1, сплошная кривая). Данные, представленные на рис. 1 свидетельствуют о существенном подавлении процесса диссоциации в сильных полях. Интерференционная природа обнаруженной стабилизации подтверждается динамикой вероятности диссоциации в процессе лазерного воздействия, представленной на рис. 2 для различных интенсивностей лазерного импульса. В случае сильных полей на зависимости вероятности диссоциации от времени в течение импульса наблюдается биэкспоненциальный распад состояния, характеризующийся сначала быстрым, а затем гораздо более медленным переходом в колебательный континуум (рис. 2).

Суперпозиция различных колебательных состояний в начальный момент времени приводит к тому, что в слабом поле имеют место осцилляции вероятности диссоциации с течением времени, что хорошо согласуется с результатами работы [3], посвященной интерференционной стабилизации атомов относительно процесса фотоионизации. Однако в нашем случае, в отличие от [3], сильного влияния относительной фазы начально заселенных состояний на процесс диссоциации не наблюдается, что говорит о существенной роли рамановских переходов V-типа и резонансного перезаселения уровней. Несмотря на то что приведенные кривые хорошо согласуются с аналогичными зависимостями для ионизации атомов, сами по себе они являются достаточно косвенными свидетельствами в пользу стабилизации Λ- или V-типов. Для более детального анализа интерференционной природы возникающей стабилизации необходимо рассмотреть распределение заселенности по вращательным и колебательным состояниям, возникающее в результате лазерного воздействия.

В процессе диссоциации связанные колебательно-вращательные уровни энергии приобретают дополнительную ширину вследствие конечного времени жизни. Соответствующие им «полосы» по энергии заселяются в диссоциационном континууме. При увеличении амплитуды внешнего поля ширина полос возрастает до тех пор, пока в диссоциационном континууме не наступает их перекрытие. Перекрытие диссоциационных ширин приводит к открытию канала множественных рамановских переходов Λ-типа через диссоциационный континуум. Эти переходы подчиняются правилам отбора, вследствие чего при стабилизации Λ-типа следует ожидать перехода от ситуации, когда преимущественно заселяются состояния всего с двумя значениями $j = 0$ (для связанных состояний) и $j = 1$ (для диссоциацион-

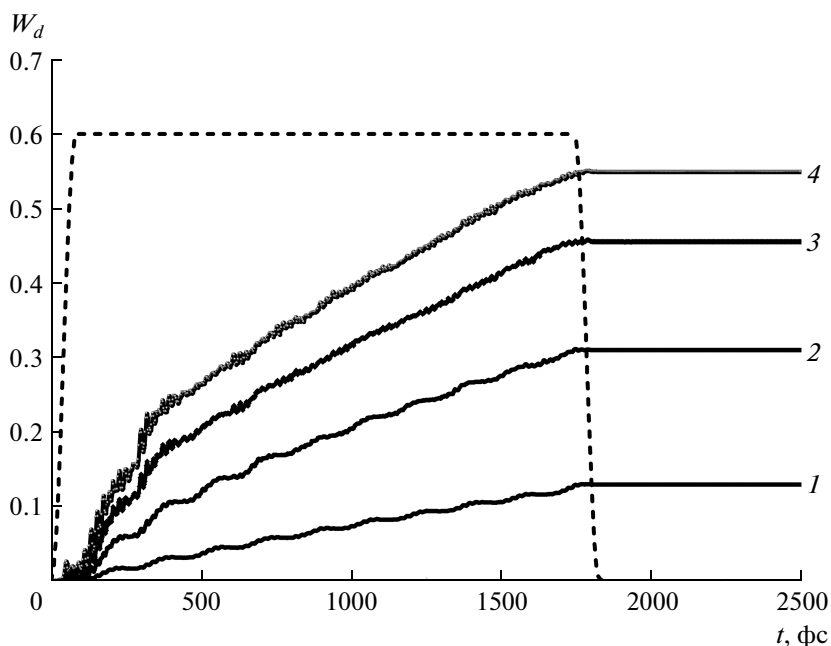


Рис. 2. Зависимость вероятности диссоциации от времени для различных интенсивностей излучения 1 (1), 4 (2), 9 (3), 15 (4) ТВт/см². Штриховая линия — огибающая лазерного импульса с длительностью фронтов и плато соответственно 2 и 40 оптических циклов

ного континуума), к режиму, при котором происходит множественное заселение состояний с различными j . При этом в данные переходы могут быть вовлечены различные колебательные состояния как в дискретном спектре, так и в континууме, однако связанные состояния характеризуются только четными j , а состояния колебательного континуума — нечетными, что как раз свидетельствует о переходах Λ -типа. Качественно схема возникающих переходов изображена на рис. 3. Результаты расчетов полностью подтверждают возникновение Λ -переходов. Заселения состояний в зависимости от квантового числа j приведены на рис. 4. Как видно, континуум действительно характеризуется преобладающим заселением состояний с нечетными вращательными квантовыми числами, а связанные состояния преимущественно имеют четные j . Однако имеет место и незначительное заселение остальных состояний, что в первую очередь связано с наличием резонансных переходов в лежащие ниже состояния в дискретном спектре. Такие резонансные состояния играют роль в переходах V -типа, которые оказываются крайне эффективными в гетероядерных молекулах. В этом состоит существенное отличие ядерной подсистемы молекулы от электронной подсистемы атома. Дело в том, что в молекулярной системе в си-

ду специфики колебательно-вращательного спектра при выполнении условий для стабилизации Λ -типа оказывается практически невозможной существенная отстройка от резонансной связи с лежащими ниже состояниями. Это обстоятельство сильно влияет на распределение заселенности по колебательным состояниям. Большой интерес представляет также более сложный случай многофотонной связи начального состояния с колебательно-вращательным континуумом. Такая ситуация представлена на рис. 5. График соответствует начально заселенному состоянию $|v = 20, j = 0\rangle$ с энергией связи 0.45 эВ, что соответствует энергии связи, превышающей $4\hbar\omega$. На нем отчетливо видны пики заселенности, разделенные энергией, равной энергии кванта внешнего поля. Все сказанное выше в значительной мере относится и к последней зависимости с тем отличием, что в этой ситуации переходы Λ -типа через диссоциационный континуум играют существенно меньшую роль, чем когерентное перезаселение через связанные состояния. Таким образом, режим диссоциации молекулы в сильном поле сопровождается эффективными рамановскими переходами Λ - и V -типа между колебательно-вращательными состояниями, что приводит к частичному подавлению диссоциации по интерференционному механизму. При этом в

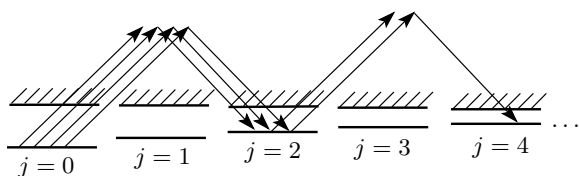


Рис. 3. Схема перезаселения вращательных состояний при наличии переходов Λ-типа

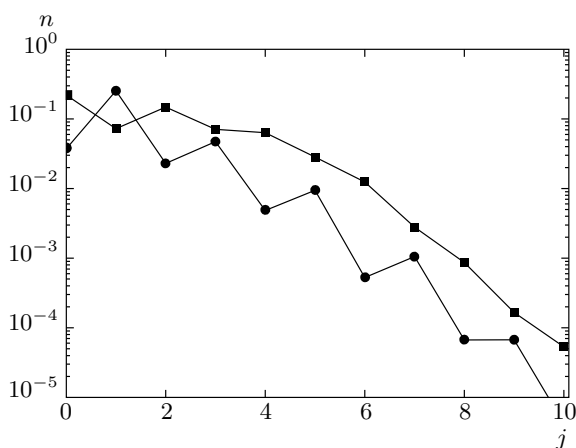


Рис. 4. Распределение заселенности состояний по вращательному квантовому числу, возникающее по окончании лазерного импульса интенсивностью 15 ТВт/см² и длительностью 10 оптических циклов при начальном заселении двух связанных колебательно-возбужденных состояний с $j = 0$, $v = 37, 39$: квадраты — связанные колебательно-вращательные состояния, кружки — состояния в колебательном континууме

силу специфики колебательного спектра молекулы переходы V-типа играют существенную роль и вызывают смещение заселения связанных состояний в сторону лежащих ниже колебательных состояний с малыми значениями колебательного квантового числа v .

Эффективное перезаселение вращательных состояний отражается и на распределении плотности вероятности молекулы по углу. Если в случае слабого поля практически все продукты диссоциации имеют вращательное квантовое число $j = 1$ и, следовательно, угловое распределение вида $\cos^2 \theta$, то в случае сильного поля угловое распределение гораздо более узкое. Продиссоциировавшая часть волнового пакета оказывается выстроенной вдоль поля, а связанная часть — перпендикулярно направлению поля (рис. 6).

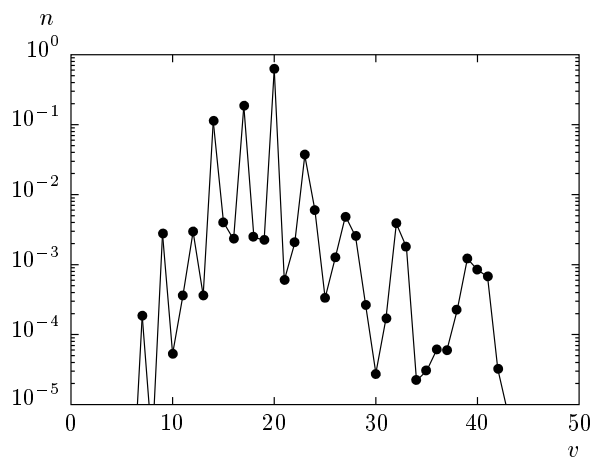


Рис. 5. Заселенность различных состояний в зависимости от колебательного квантового числа, формирующаяся в сильном поле (15 ТВт/см²). Начально заселено состояние с $v = 20$. Пики соответствуют резонансному заселению состояний с поглощением и испусканием целого числа квантов поля

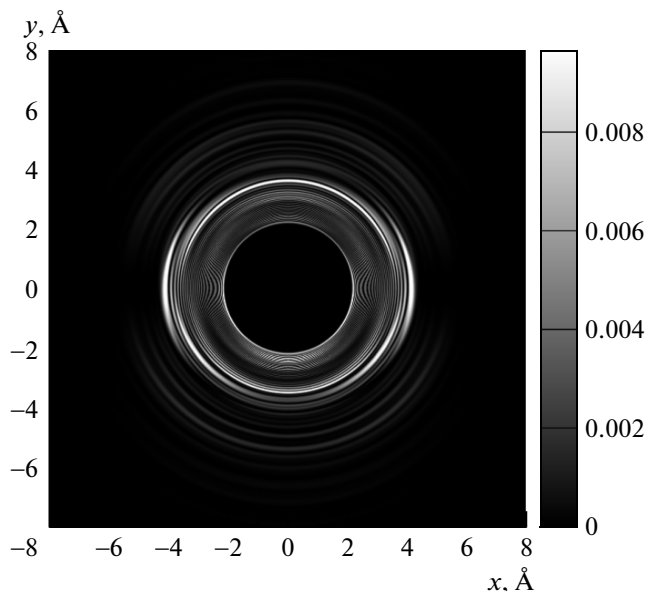


Рис. 6. Зависимость плотности вероятности от угловой и радиальной координат при воздействии интенсивного импульса. Расходящиеся волны соответствуют продуктам диссоциации

После импульса происходит дефазировка углового волнового пакета, в результате которой недиссоциировавшая фракция молекул становится снова практически неориентированной, а затем очередное выстраивание (имеет место периодическое восстановление волнового пакета — достигается так на-

зываемое квантовое восстановление (revival)). Период квантовомеханического восстановления волнового пакета определяется в первую очередь разностью вращательных энергий связанных состояний и приближенно может быть оценен как \hbar/B , где B — вращательная постоянная молекулы, которая для данной системы равна 0.02 мэВ.

Таким образом, режим интерференционной стабилизации влияет не только на выход продуктов диссоциации, но и определяет свойства молекулярной среды — распределение заселенностей состояний и пространственно-угловую плотность вероятности. При этом отдельный интерес представляют эксперименты с воздействием на среду последовательности импульсов, получившие название экспериментов по схеме накачка–зондирование (pump–probe). В подобных схемах первый импульс «готовит» среду определенным образом, а пробный импульс служит для определения новых сформированных свойств среды.

Простейшая реализация схемы pump–probe — воздействие последовательностью из двух одинаковых импульсов с переменной задержкой между ними. В указанной схеме оказывается возможным провести измерение характеристик самого волнового пакета. Поскольку относительные фазы состояний, формирующих волновой пакет, изменяются со временем в соответствии со свободной динамикой амплитуд заселенностей, результаты воздействия пробного импульса существенно зависят от задержки и могут значительно различаться в зависимости от того, какова фазовая структура волнового пакета в данный момент времени. В частности, вероятность диссоциации, обусловленная вторым (пробным) импульсом, оказывается явной функцией задержки τ , что проиллюстрировано на рис. 7.

В определенные моменты времени фазовая структура эволюционирующего волнового пакета оказывается такова, что имеет место частично деструктивная интерференция переходов в колебательный континуум из различных состояний, формирующих волновой пакет. В этом случае реализуется минимум вероятности диссоциации, а вероятность диссоциации за второй импульс оказывается существенно меньше, чем за первый. В общем случае в зависимости суммарной вероятности диссоциации за оба импульса от задержки между ними можно выделить два характерных временных масштаба. Первый связан с колебательным движением ядер, соответствующие изменения происходят на временах порядка десятков фемтосекунд. Второй обеспечивается минимальной величиной разности

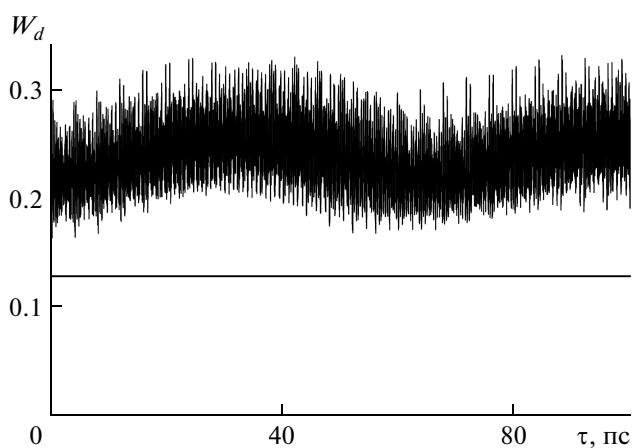


Рис. 7. Зависимость суммарной вероятности диссоциации молекул, регистрируемой в схеме pump–probe, от задержки между импульсами. Использовались одинаковые импульсы длительностью 5 циклов и интенсивностью 12 ТВт/см²

вращательных энергий, характерные величины — сотни пикосекунд. Минимумы на приведенной на рис. 7 зависимости соответствуют формированию волнового пакета, стабильного по отношению к фотодиссоциации. Таким образом, каждая молекулярная система имеет свой уникальный набор пар импульс–задержка, при которых вероятность диссоциации во втором импульсе оказывается значительно меньше, чем в первом.

Если понятие интерференционной стабилизации относится в первую очередь к квазиэнергетическим состояниям и к действию квазимонохроматического излучения на систему, то при воздействии на систему предельно коротких импульсов реализуется совершенно иной режим. Интерес к такой ситуации обусловлен генерацией в эксперименте все более коротких импульсов длительностью вплоть до нескольких оптических циклов [14], а также получением так называемых «субцикловых» импульсов, имеющих резкий «всплеск» поля и продолжительный «хвост» противоположной полярности. Слабая и медленно меняющаяся часть импульса может быть подавлена с помощью нелинейного поглотителя, в результате чего получается короткий и интенсивный монополярный импульс [15]. Интеграл от электрического поля в таком импульсе уже не равен нулю и характеризует момент импульса, переданный молекуле в процессе ультракороткого воздействия. Выстраивание молекул такими «полуцикловыми» импульсами представляет собой важную и интересную задачу. Ранее эффективное выстраива-

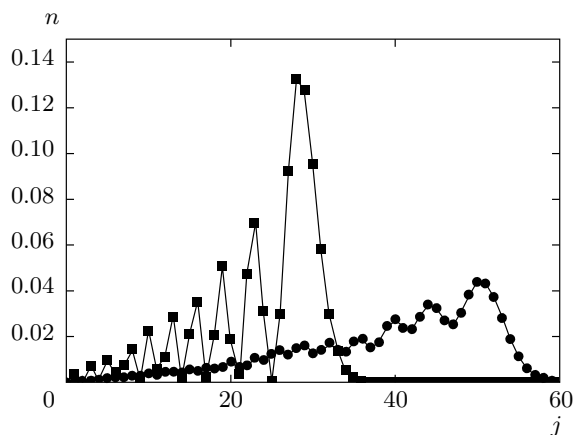


Рис. 8. Зависимости заселенности состояний от вращательного квантового числа, полученные при воздействии интенсивным полуцикловым импульсом. Эффективное значение интенсивности — 4 ТВт/см² при длительности 15 фс. Квадраты — модель жесткого ротатора, кружки — численное решение нестационарного уравнения Шредингера

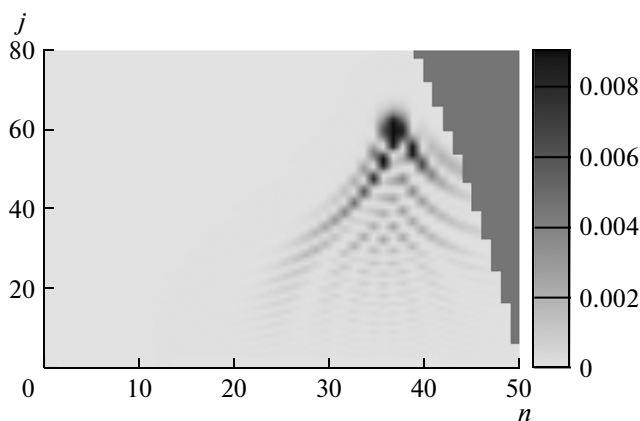


Рис. 9. Распределение заселенности по состояниям молекулы после воздействия сверхкороткого импульса. Серая область — колебательный континуум молекулы. Эффективный импульс, переданный молекуле, 15 Å⁻¹

ние молекул дельта-импульсами исследовалось при учете только вращательных состояний [11]. Как показали проведенные нами расчеты, включение в рассмотрение колебательных состояний оказывает существенное влияние на картину вращательных возбуждений, особенно при большой интенсивности воздействия (рис. 8).

По результатам расчетов при длительности импульса $\tau \leq \hbar/5B$ заселенности соответствующих вращательных состояний практически не зависят

от формы импульса, что соответствует переходу к режиму ультракороткого воздействия. Роль эффективного параметра в данном случае играет величина импульса, переданного ядерной подсистеме молекулы. В случае достаточно высоких значений поля распределение заселенности по вращательным состояниям оказывается существенно шире, чем в модели жесткого ротатора, не учитывающей колебательную степень свободы. При этом особый интерес представляет структура волнового пакета, сформированного в таком дельтаобразном импульсе. На распределении, представленном на рис. 9, правая серая область соответствует состояниям колебательно-вращательного континуума молекулы. Максимальное заселение состояний характеризуется черными областями и соответствует состояниям с квантовыми числами в окрестности $j = 60$ и $v = 37$. При этом максимум распределения по колебательным состояниям практически совпадает с квантовым числом v начально заселенного состояния, в то время как распределение по вращательным состояниям существенно изменяется с увеличением импульса, переданного от поля. С ростом воздействия импульса на молекулу происходит смещение максимума распределения на рис. 9 в область более высоких вращательных квантовых чисел и одновременное уширение распределения по колебательным квантовым числам при малых значениях j (на «хвосте» распределения). Таким образом, можно выделить два основных канала диссоциации. Первый — разрыв связи за счет вращений — обеспечивается вертикальным движением максимума распределения заселенности. Для него характерно возникновение диссоциации за счет заселения состояний с высокими j (что возможно при превышении полем некоторого значения) и большие значения вероятности диссоциации. На распределении данная ситуация соответствует пересечению максимумом заселенности границы континуума по вертикали. Второй канал — диссоциация по колебательным состояниям. Она присутствует при любых ненулевых значениях интенсивности. На распределении она может быть проиллюстрирована как выход широкого по колебаниям «хвоста» за границу континуума по горизонтали. Поскольку заселенность этой области распределения небольшая, соответствующий вклад в диссоциацию невелик.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В настоящей работе проведен анализ свойств колебательно-вращательного волнового пакета, фор-

мируемого в процессе возбуждения и фотодиссоциации молекулы в сильном внешнем поле. Следует еще раз подчеркнуть фундаментальную роль стабилизации в данном явлении. Многократные переходы Λ - и V -типов приводят к значительному уширению распределения заселенности по вращательным состояниям молекулы. Это, в свою очередь, сказывается на ориентации молекул. В отличие от интерференционной стабилизации атомов, в молекулярных системах в условиях интерференционной стабилизации практически невозможной оказывается отстройка от резонансной связи с лежащими ниже связанными состояниями. Таким образом, в силу специфики спектра, говоря о ядерной подсистеме молекулы, невозможно выделить Λ -стабилизацию в чистом виде.

Как показывают результаты моделирования схемы pump-probe , действие на молекулу последовательностью импульсов в условиях стабилизации может являться эффективным инструментом для получения информации как о формируемом квантовомеханическом волновом пакете, так и о колебательно-вращательном спектре молекул. Поскольку волновой пакет оказывается сильно ориентированным и демонстрирует богатую колебательную динамику, дальнейший интерес могут представлять эксперименты по электронному возбуждению и ионизации молекул, в которых волновой пакет, соответствующий ядерной подсистеме играет роль так называемого «гейта».

Под действием интенсивного излучения происходит селекция наиболее стабильных квазиэнергетических состояний, поэтому при подборе задержки между pump - и probe -импульсами можно добиться высокой стабильности молекулярной системы по отношению к диссоциации в probe -импульсе. При этом соответствующее значение задержки, вследствие заселения большого числа колебательно-вращательных состояний, будет уникальным. Это также может быть использовано для разделения смесей газов.

Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ (гранты №№ 12-02-31232-мол_а,

14-02-31114-мол_а,
14-02-00389-а).

14-02-31084-мол_а,

ЛИТЕРАТУРА

1. M. V. Fedorov, *Atomic and Free Electrons in a Strong Light Field*, World Sci., Singapore (1997).
2. M. V. Fedorov and A. M. Movsesian, *J. Opt. Soc. Amer. B* **5**, 850 (1988).
3. Н. П. Полуэктов, М. В. Федоров, *ЖЭТФ* **117**, 913 (2000). [N. P. Poluektov and M. V. Fedorov, *JETP* **90**, 794 (2000)].
4. A. M. Popov, O. V. Tikhonova, and E. A. Volkova, *J. Phys. B: Atom. Mol. Opt. Phys.* **36**, R125 (2003).
5. M. Gavril, *J. Phys. B: Atom. Mol. Opt. Phys.* **35**, R147 (2002).
6. M. Pont and M. Gavril, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 2362 (1990).
7. U. Eichmann, T. Nubbemeyer, H. Rottke et al., *Nature* **461**, 1261 (2009).
8. A. Giusti-Suzor, X. He, O. Atabek et al., *Phys. Rev. Lett.* **64**, 515 (1990).
9. A. Giusti-Suzor and F. H. Mies, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 3869 (1992).
10. M. V. Fedorov, *J. Mod. Opt.* **50**, 513 (2003).
11. M. Leibscher, I. Sh. Averbukh, P. Rozmej et al., *Phys. Rev. A* **69**, 032102 (2004).
12. G. Casati, B. V. Chirikov, F. M. Izraelev et al., *Lect. Notes Phys.* **93**, 334, Springer, Berlin, Heidelberg (1979).
13. Х. Бете, Э. Солпитер, *Квантовая механика атомов с одним и двумя электронами*, Физматгиз, Москва (1960).
14. T. Fuji and Y. Nomura, *Appl. Sci.* **3**, 122 (2013).
15. D. You and P. H. Bucksbaum, *J. Opt. Soc. Amer. B* **7**, 1651 (1997).