

ДИНАМИКА ЭЛЕКТРОННОГО И ЯДЕРНОГО ДВИЖЕНИЙ В МОЛЕКУЛЯРНОМ ИОНЕ ВОДОРОДА В СИЛЬНОМ ЛАЗЕРНОМ ПОЛЕ

Е. А. Волкова, А. М. Попов, О. В. Тихонова*

*Научно-исследовательский институт ядерной физики им. Д. В. Скобельцына
Московского государственного университета им. М. В. Ломоносова
119992, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 10 апреля 2003 г.

Методом численного моделирования исследуется динамика электронной и ядерной подсистем молекулярного иона водорода в поле излучения фемтосекундного титан-сапфирового лазера. Проанализирована зависимость вероятности ионизации и возбуждения различных электронных состояний H_2^+ от интенсивности излучения и от ориентации оси молекулы по отношению к направлению поляризации электрического поля волны. Показано, что в широком диапазоне интенсивностей излучения заселение всех электронных состояний молекулы, кроме основного и первого возбужденного, пренебрежимо мало. В такой ситуации, если вероятность ионизации системы также невелика, динамика колебательно-вращательного движения ядер в молекуле может быть рассмотрена в рамках приближения двух потенциальных поверхностей (термов). Продемонстрирована возможность эффективной ориентации молекулярной оси вдоль направления электрического поля волны в отсутствие процесса диссоциации системы.

PACS: 33.80.-b, 33.90.+h

1. ВВЕДЕНИЕ

Создание мощных фемтосекундных лазеров с длительностью импульса, сравнимой с характерным временным масштабом ядерного движения в молекуле, открывает новые возможности в управлении химическими реакциями и изучении механизмов их протекания [1]. Одним из основных процессов, который интенсивно исследуется в последнее время с этой точки зрения, является возможность выстраивания (ориентирования) молекулярной оси в заданном направлении в поле мощного лазерного импульса [2–10]. Возможность такого процесса неоднократно обсуждалась как с экспериментальной [3–6], так и с теоретической [7–9] точек зрения. Однако практически весьма важно, чтобы «ориентированная» молекула оставалась в связанном, а не продиссоциированном состоянии. В то же время в опубликованных к настоящему времени экспериментах [5, 10] сам факт ориентации молекул регистрируется, как правило, по направлению разлета продуктов диссоциа-

ции, образующихся при ионизации молекулярной системы. К тому же в ряде случаев до конца не ясной остается физика процесса: молекула ориентируется в сильном лазерном поле, а потом происходит ее ионизация и диссоциация, или же наблюдаемая угловая зависимость разлета продуктов ионизации связана с тем, что преимущественно ионизируются только молекулы, ориентированные в определенном направлении (в направлении вектора поляризации электрического поля волны) [4].

Из сказанного выше ясно, что исследование временной динамики электронно-ядерного движения в молекулах представляет собой актуальную задачу. Поскольку такая задача предполагает анализ многомерного уравнения Шредингера даже в случае простейших молекул, весьма важным представляется исследование возможности независимого рассмотрения эволюции в лазерном поле электронной и ядерной подсистем. Такое разделение электронной и ядерной степеней свободы в молекуле лежит в основе приближения Борна–Оппенгеймера и является следствием различного временного и энергетического масштабов движения электронной и ядер-

*E-mail: popov@mics.msu.su

ной подсистем. Однако в сильных электромагнитных полях в условиях интенсивной ионизации и существенной перестройки оптическим полем структуры электронных состояний молекулы в рамках приближения Борна–Оппенгеймера необходимо учитывать большое количество электронных термов, в том числе и прежде всего описывающих ионизованные состояния молекулы. Подобная задача сложна для численного моделирования. С другой стороны, несомненный интерес представляет изучение колебательно-вращательного движения молекулы в интенсивном электромагнитном поле в условиях, когда вероятность ионизации молекулы пренебрежимо мала, а потому при рассмотрении молекулярной динамики достаточно учитывать небольшое число электронных термов. Именно эта задача анализируется в данной работе численно для модельного двумерного (плоского) молекулярного иона водорода, находящегося в поле излучения Ti:Sa-лазера (энергия кванта $\hbar\omega = 1.55$ эВ). Найденны условия, позволяющие исследовать колебательно-вращательную динамику H_2^+ в приближении двух термов и продемонстрирована возможность эффективного выстраивания оси молекулы вдоль направления поляризации электрического поля волны в отсутствие процесса диссоциации.

2. МОДЕЛЬ МОЛЕКУЛЯРНОГО ИОНА ВОДОРОДА

Как известно, в рамках адиабатического приближения полная волновая функция молекулы представляется в виде разложения по электронным термам:

$$\Psi(\mathbf{r}, \mathbf{R}, t) = \sum \Phi_n(\mathbf{R}, t)\varphi_n(\mathbf{r}, \mathbf{R}). \quad (1)$$

Здесь \mathbf{r}, \mathbf{R} — совокупность координат электронной и ядерной подсистем, Φ_n — ядерная волновая функция, описывающая колебательно-вращательное движение ядерной подсистемы, соответствующее n -му электронному терму, $\varphi_n(\mathbf{r}, \mathbf{R})$ — электронная волновая функция, определяющая структуру n -го терма. В отсутствие внешнего воздействия в пределах каждого терма движение происходит независимо, а электромагнитное поле вызывает переходы между термами. При этом в выражении (1) суммирование подразумевает также интеграл по континууму электронных состояний, соответствующих ионизованному состоянию системы. Стационарные состояния $\varphi_n(\mathbf{r}, \mathbf{R})$ могут быть определены из решения

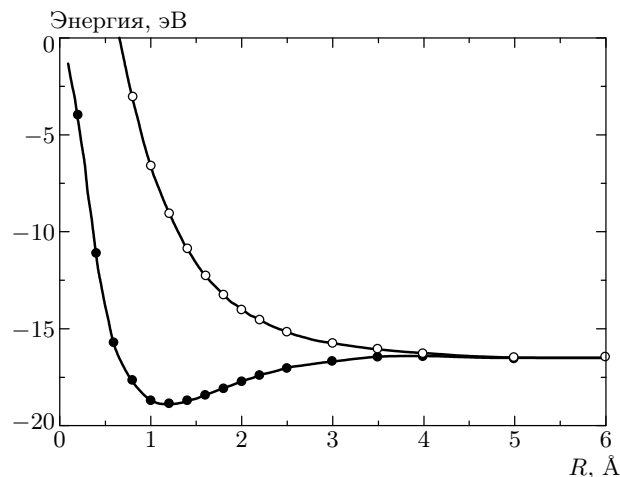


Рис. 1. Потенциальные кривые, соответствующие двум нижним электронным состояниям двумерного H_2^+

Таблица 1. Энергии нижних электронных состояний модельного иона H_2^+ при равновесном значении межъядерного расстояния $R_0 = 1.2$ Å

Состояние	Энергия, эВ
1⟩	-29.8
2⟩	-19.7
3⟩	-14.7
4⟩	-10.7
5⟩	-8.4

задачи на собственные значения для гамильтониана электронной подсистемы молекулы

$$\hat{H}_e(\mathbf{r}, R)\varphi_n(\mathbf{r}, R) = E_n(R)\varphi_n(\mathbf{r}, R). \quad (2)$$

Здесь $E_n(R)$ — энергия стационарного состояния, соответствующая функции $\varphi_n(\mathbf{r}, R)$.

В двумерном приближении гамильтониан электронной подсистемы молекулярного иона H_2^+ записывается в виде

$$\hat{H}_e = -\frac{\hbar^2}{2m} \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) - \frac{e^2}{\sqrt{(x - R/2)^2 + y^2 + \alpha^2}} - \frac{e^2}{\sqrt{(x + R/2)^2 + y^2 + \alpha^2}}. \quad (3)$$

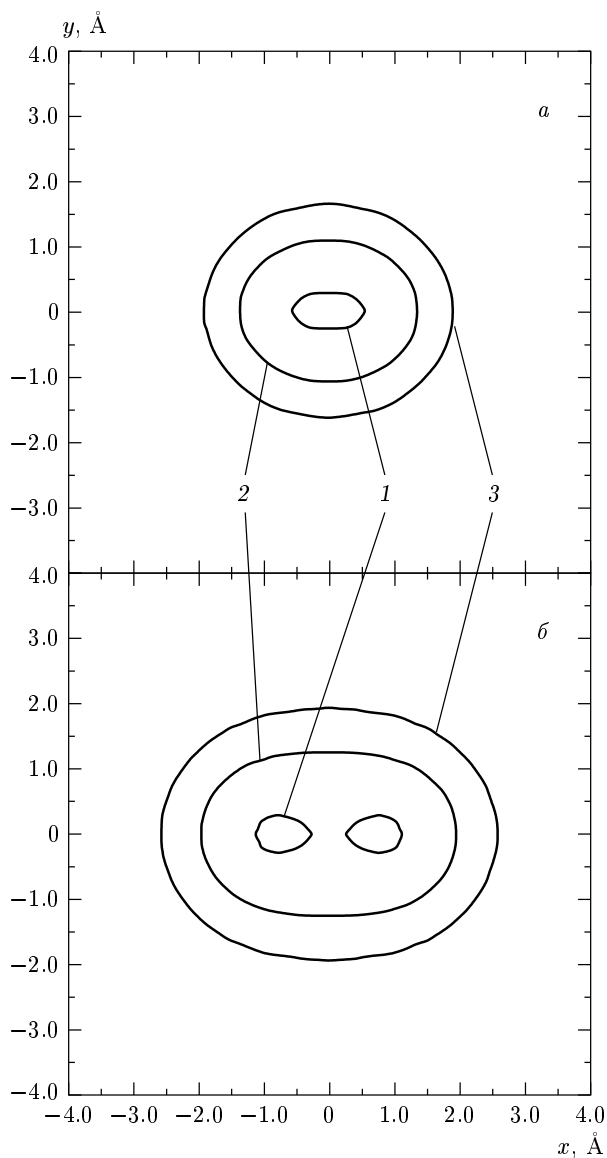


Рис. 2. Распределение электронной плотности в основном состоянии молекулы для значений межъядерного расстояния $R = 1.2$ (а) и 2.0 \AA (б). Линии уровня (в относительных единицах): 1 (1), 0.1 (2), 0.01 (3)

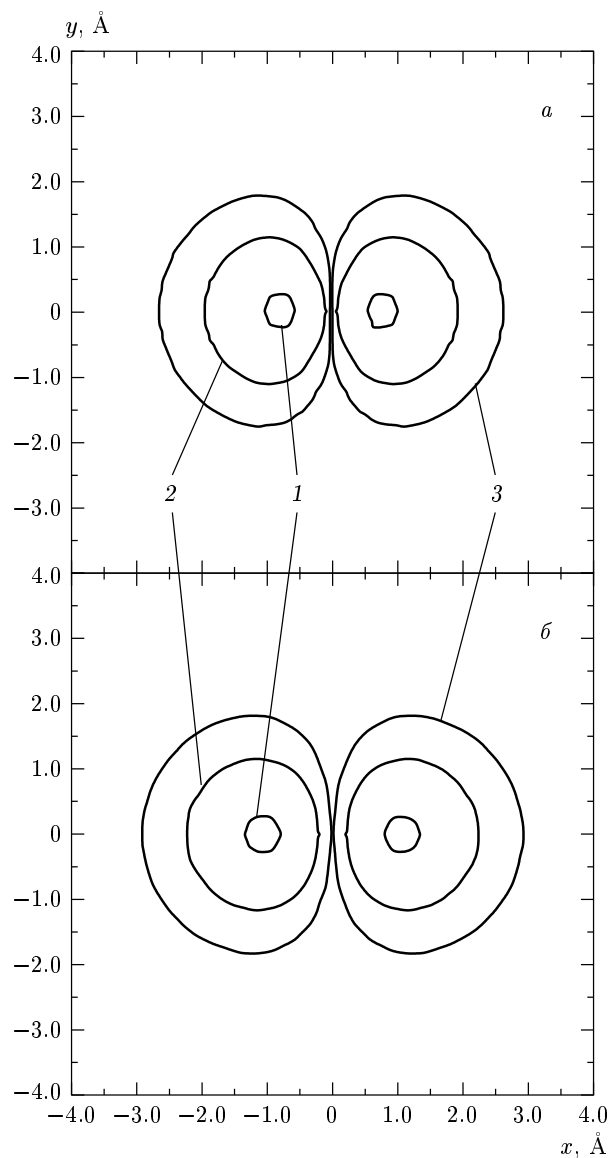


Рис. 3. Распределение электронной плотности в первом возбужденном состоянии молекулы для значений межъядерного расстояния $R = 1.2$ (а) и 2.0 \AA (б). Линии уровня (в относительных единицах): 1 (1), 0.1 (2), 0.01 (3)

Здесь полагается, что ось x направлена вдоль оси молекулы, R — межъядерное расстояние, а α — параметр сглаживания, подбираемый таким образом, чтобы максимально приблизить характеристики нашей модельной системы к экспериментально наблюдаемым¹⁾.

С помощью численного решения задачи на собственные значения (2) для гамильтониана (3) были

¹⁾ В наших расчетах полагалось $\alpha = 0.35 \text{ \AA}$.

найжены волновые функции стационарных состояний электронной подсистемы $\varphi_n(x, y, R)$, параметрически зависящие от межъядерного расстояния R , и построена система электронных термов молекулы

$$V_{eff}^{(n)}(R) = \frac{e^2}{R} + E_n(R), \quad (4)$$

где n — номер электронного состояния. Всего в наших расчетах анализировалось 12 электронных состояний ($n = 1, \dots, 12$). Полученные с помощью (4)

потенциальные кривые для двух нижних состояний приведены на рис. 1. Как видно из этих данных, равновесное межъядерное расстояние в нашей модели $R = R_0 = 1.2 \text{ \AA}$. Энергии нескольких первых электронных состояний, рассчитанные при $R = R_0$, содержатся в табл. 1, а распределение электронной плотности для основного и первого возбужденного состояний при значениях $R = R_0$ и $R = 2 \text{ \AA}$ — на рис. 2, 3. Отметим, что, в отличие от структуры возбужденного состояния, распределение электронной плотности $|\varphi_1(x, y, R)|^2$ для двух указанных выше значений R оказывается существенно различным. Так, при $R = R_0$ распределение $|\varphi_1(x, y, R_0)|^2$ является приблизительно изотропным, а максимум электронной плотности находится посередине между ядрами. При увеличении межъядерного расстояния до 2 \AA возникает дихотомическая структура волновой функции с максимумами электронной плотности, локализованными приблизительно в области нахождения ядер. В результате с увеличением межъядерного расстояния возникает анизотропия электронной плотности, приводящая к особенностям динамики электронного и ядерного движений в зависимости от угла ориентации оси молекулы по отношению к направлению электрического поля волны.

3. ИОНИЗАЦИЯ ИОНА H_2^+ В СИЛЬНОМ ПОЛЕ

Обычно считается, что эволюция электронной подсистемы происходит в гораздо меньшем временном масштабе, чем в случае ядерной подсистемы. Поэтому в первом приближении процесс ионизации молекулы в коротком импульсе, казалось бы, можно рассмотреть в приближении «замороженных» ядер, т. е. зафиксировав межъядерное расстояние и ориентацию оси молекулы по отношению к направлению действия электрического поля волны. В этом случае, полагая, что ось x направлена вдоль оси молекулы, для волновой функции электронной подсистемы имеем

$$i\hbar \frac{\partial \psi_e(x, y, R, t)}{\partial t} = \left(\hat{H}_e - e(x \cos \theta + y \sin \theta) \varepsilon(t) \cos(\omega t) \right) \times \psi_e(x, y, R, t). \quad (5)$$

Здесь $\varepsilon(t)$ — огибающая лазерного импульса, θ — угол между направлением электрического поля и осью молекулы.

В наших расчетах динамики электронной подсистемы молекулы полагалось, что импульс имеет

сглаженную трапецеидальную форму (см. [11]) с длительностями фронтов $\tau_f = 2T$ и «плато» генерации $\tau_{pl} = 5T$ ($T = 2\pi/\omega$ — длительность одного оптического цикла). Полагалось также, что в начальный момент система находится в основном электронном состоянии. Решение уравнения (5) позволяет определить вероятности ионизации и возбуждения различных состояний системы в зависимости от параметров лазерного импульса, а также от ориентации оси молекулы по отношению к направлению поляризации электрического поля волны и величины межъядерного расстояния.

Уравнение (5) решалось численно методом конечных элементов в декартовой системе координат в области размером $|x, y| \leq L$, $L = 40 \text{ \AA}$. Чтобы предупредить отражение тока вероятности от границ пространственной области, в приграничной области вводилось поглощение электронной плотности, обеспечивающее эффективное «съедание» волновой функции.

Вероятности возбуждения различных электронных состояний определялись как проекции рассчитанной функции $\psi_e(x, y, t)$ на волновые функции стационарных состояний электронной подсистемы $\varphi_n(x, y)$ в момент времени, соответствующий окончанию лазерного импульса ($t = t_{fin}$):

$$W_n = |\langle \psi_e(x, y, t_{fin}) | \varphi_n(x, y) \rangle|^2. \quad (6)$$

Для расчета вероятности ионизации использовалось несколько методик. Во-первых, эта величина рассчитывалась как

$$W_i = 1 - \sum_n W_n, \quad (7)$$

где учитывались 12 различных электронных связанных состояний молекулы. Во-вторых, естественно предположить, что связанные состояния молекулы соответствуют локализации электрона в области малых значений $r = \sqrt{x^2 + y^2}$. Поэтому вероятность обнаружить систему в связанном состоянии может быть определена путем интегрирования электронной плотности по области

$$r = \sqrt{x^2 + y^2} \leq r_0.$$

Для вероятности ионизации соответственно имеем

$$W_i = 1 - \int_{r \leq r_0} |\psi_e(x, y)|^2 dx dy. \quad (8)$$

И, наконец, в третьих, интегрируя по времени поглощенный вблизи границ пространственной области потока электронной плотности, мы также

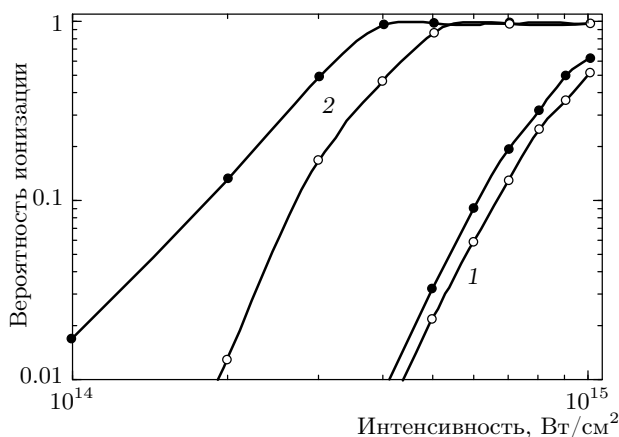


Рис. 4. Зависимости вероятности ионизации H_2^+ от интенсивности излучения в лазерном импульсе с $\tau_f = 2T$ и $\tau_{pl} = 5T$ для значений межъядерного расстояния $R = 1.2$ (1) и 2.0 \AA (2). Сплошные и полые кружки соответствуют случаям продольной и поперечной ориентации оси молекулы по отношению к вектору поляризации электрического поля волны

можем получить вероятность ионизации системы. В последнем случае весьма важно продолжать вычисления после окончания действия лазерного импульса вследствие задержки во времени поглощения электронной плотности вблизи границ области счета относительно процесса ионизации системы в течение импульса. Очевидно, эта задержка определяется временем движения электрона в пределах пространственной области счета и зависит от ее размера L и характерной скорости фотоэлектрона в континууме.

Специально проведенные расчеты показали, что все указанные способы определения вероятности ионизации приводят к совпадающим результатам, причем в качестве размера центральной зоны удобно взять $r_0 = 5 \text{ \AA}$. Указанный размер r_0 соответствует области локализации примерно десяти нижних электронных состояний молекулы.

Основные результаты расчета электронной динамики молекулярного иона H_2^+ представлены на рис. 4. На этом рисунке приведены зависимости вероятности ионизации H_2^+ от интенсивности излучения, рассчитанные для двух значений межъядерного расстояния, а также продольной и поперечной ориентации оси молекулы по отношению к вектору поляризации поля. Отметим прежде всего эффект резкого увеличения вероятности ионизации (особенно в случае относительно слабых полей) с увеличением межъядерного расстояния. Этот эффект был обнаружен в [12] и неоднократно обсуждался в ли-

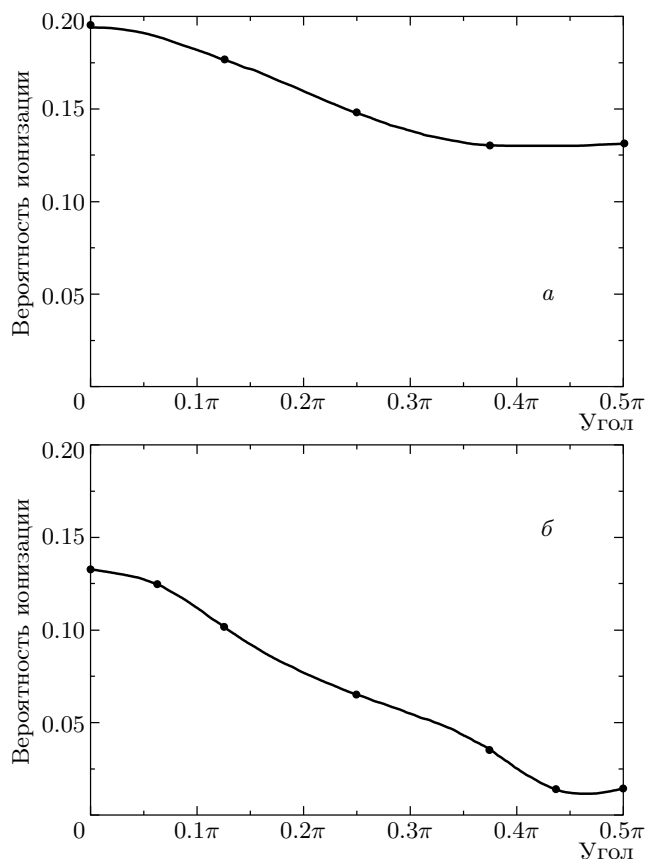


Рис. 5. Зависимости вероятности ионизации H_2^+ от ориентации оси молекулы по отношению к вектору поляризации электрического поля волны для значений: *a* — $R = 1.2 \text{ \AA}$, $P = 7 \cdot 10^{14} \text{ Вт/см}^2$; *б* — $R = 2.0 \text{ \AA}$, $P = 2 \cdot 10^{14} \text{ Вт/см}^2$

тературе [13, 14]. С другой стороны, для $R = R_0$ в области $P \leq 4 \cdot 10^{14} \text{ Вт/см}^2$ вероятность ионизации оказывается пренебрежимо мала. Заметим также, что в рассматриваемом случае вероятность ионизации достаточно слабо зависит от ориентации молекулы по отношению к направлению поляризации электрического поля волны, особенно для равновесного межъядерного расстояния. Соответствующие зависимости для конкретных значений интенсивности представлены на рис. 5. Мы полагаем, что такая плавная зависимость связана с высокой степенью пространственной симметрии начального состояния (см. рис. 2), и фактическим отсутствием выделенного направления в системе при значении $R = R_0$. Увеличение межъядерного расстояния ведет к потере симметрии (см. рис. 3), появлению выделенного направления и, следовательно, более резкой угловой зависимости вероятности ионизации (см. рис. 5). Отметим, что угловая зависимость ионизации $W_i(\theta)$

молекулярной системы исследовалась как аналитически [15, 16], так и численно [17] в различных предельных случаях. Результаты наших расчетов качественно наиболее близки к данным, полученным в работе [17]. В этой работе методом численного моделирования исследовалась угловая зависимость вероятности ионизации трехмерного H_2^+ в туннельном режиме. В приближении перестроенных в поле молекулярных термов были рассчитаны вероятности ионизации H_2^+ в единицу времени для двух нижних u - и g -состояний. Было обнаружено, что, в отличие от модели [15], зависимость вероятности ионизации от угла между осью молекулярного иона и поляризацией излучения является слабой, причем для нижнего перестроенного g -состояния скорость ионизации больше в случае ориентации молекулы вдоль направления электрического поля волны для межъядерных расстояний, не превышающих четырех боровских радиусов. Этот результат находится в хорошем качественном согласии с данными, полученными для $R \approx R_0 = 1.06 \text{ \AA}$ и представленными на рис. 4 (кривая 1). Отметим, что прямое сопоставление результатов нашей работы с данными о скоростях ионизации перестроенных состояний не представляется физически осмысленным, поскольку в нашем случае определялась вероятность ионизации за импульс, а заселение различных «одетых» состояний молекулы не исследовалось.

Остановимся теперь на результатах расчетов вероятности возбуждения различных электронных состояний молекулы. Оказалось, что во всем исследуемом диапазоне параметров вероятность заселения всех электронных состояний, кроме нижнего возбужденного ($n = 2$), пренебрежимо мала и не превышает $3 \cdot 10^{-3}$. Поскольку в условиях наших расчетов в области $P \geq 3 \cdot 10^{14} \text{ Вт/см}^2$ параметр Келдыша $\gamma \leq 1$, т. е. можно говорить о туннельном механизме ионизации H_2^+ , такая маленькая вероятность возбуждения молекулы представляется естественной.

Полученные данные оказываются принципиально важными для построения модели, описывающей движение ядерной подсистемы молекулы. Действительно, проведенные расчеты показывают, что в области значений интенсивностей $P \leq 2 \cdot 10^{14} \text{ Вт/см}^2$ процессами ионизации молекулы и возбуждения всех ее состояний, кроме нижнего возбужденного ($n = 2$), можно пренебречь. Это означает, что динамика ядерной подсистемы может быть рассмотрена в рамках приближения, учитывающего всего два нижних электронных терма молекулы.

4. ЭВОЛЮЦИЯ ЯДЕРНОЙ ПОДСИСТЕМЫ H_2^+ В ЛАЗЕРНОМ ПОЛЕ

В рамках приближения двух термов полная волновая функция молекулярного иона водорода записывается в виде (1), причем в сумму входят всего два слагаемых:

$$\Psi(\mathbf{r}, \mathbf{R}, t) = \Phi_1(R, \theta, t)\varphi_1(x, y, R) + \Phi_2(R, \theta, t)\varphi_2(x, y, R). \quad (9)$$

Здесь $\mathbf{r} = (x, y)$, $\mathbf{R} = (R, \theta)$ — совокупность координат электронной и ядерной подсистем соответственно, а индексы «1» и «2» соответствуют основному и первому возбужденному электронным состояниям молекулы. Воздействие внешнего электромагнитного поля, как уже отмечалось, вызывает переходы между термами, вероятность которых определяется матричным элементом дипольного оператора \mathbf{r}_{12} . С учетом разложения (9) система уравнений, описывающая колебательно-вращательную динамику молекулы под действием внешнего электромагнитного поля, имеет вид

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial \Phi_1(R, \theta, t)}{\partial t} &= [\hat{T}_N + V_{eff}^{(1)}(R)] \Phi_1(R, \theta, t) - \\ &- e\varepsilon(t) \cos \omega t [x_{12}(R) \cos(\theta) + \\ &+ y_{12}(R) \sin \theta] \Phi_2(R, \theta, t), \\ i\hbar \frac{\partial \Phi_2(R, \theta, t)}{\partial t} &= [\hat{T}_N + V_{eff}^{(2)}(R)] \Phi_2(R, \theta, t) - \\ &- e\varepsilon(t) \cos \omega t [x_{12}(R) \cos(\theta) + \\ &+ y_{12}(R) \sin \theta] \Phi_1(R, \theta, t). \end{aligned} \quad (10)$$

Здесь

$$\hat{T}_N = -\frac{\hbar^2}{2\mu} \left\{ \frac{1}{R} \frac{\partial}{\partial R} R \frac{\partial}{\partial R} + \frac{1}{R^2} \frac{\partial^2}{\partial \theta^2} \right\}$$

— оператор кинетической энергии ядерного движения (причем первое слагаемое отвечает за энергию колебательного, а второе — вращательного движения), μ — приведенная масса молекулы, $V_{eff}^{(1,2)}$ задается выражением (4). Величины $e x_{12}$, $e y_{12}$ представляют собой матричные элементы проекций дипольного оператора на молекулярную ось и перпендикулярное оси направление. Как уже отмечалось, с учетом симметрии волновых функций двух нижних электронных состояний перпендикулярная компонента $y_{12}(R) \equiv 0$, зависимость величины x_{12} от межъядерного расстояния приведена на рис. 6. Для основного колебательного состояния вероятность перехода определяется значением $x_{12}(R_0) \approx 0.65 \text{ \AA}$. При численном решении системы (10) полагалось,

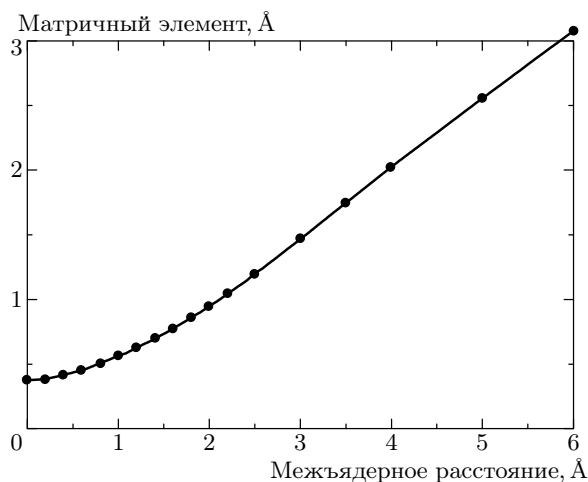


Рис. 6. Зависимость матричного элемента проекции электронного дипольного момента перехода на ось молекулы x_{12} от межъядерного расстояния

что в начальный момент времени молекула находилась на нижнем терме в основном колебательно-вращательном состоянии.

Для анализа результатов численного интегрирования системы (10) нами были рассчитаны волновые функции стационарных колебательно-вращательных ядерных состояний, удовлетворяющие уравнению

$$[\hat{T}_N + V_{eff}^{(1)}(R)] \phi_{vm}(R, \theta) = E_{vm} \phi_{vm}(R, \theta). \quad (11)$$

Здесь v, m — колебательное и вращательное квантовые числа. Заметим, что ядерная функция стационарного состояния представима в виде

$$\phi_{vm}(R, \theta) = \chi_{vm}(R) \frac{\exp(im\theta)}{\sqrt{2\pi}}, \quad (12)$$

причем функция колебательного движения $\chi_{vm}(R)$ может быть найдена из решения задачи на собственные значения

$$-\frac{\hbar^2}{2\mu} \frac{1}{R} \frac{\partial}{\partial R} R \frac{\partial \chi_{vm}}{\partial R} + \left\{ V_{eff}^{(1)}(R) + \frac{\hbar^2 m^2}{2\mu R^2} \right\} \chi_{vm} = E_{vm} \chi_{vm}. \quad (13)$$

Некоторые из результатов расчетов колебательно-вращательного спектра ядерной подсистемы, полученные из (13), содержатся в табл. 2. Как видно из представленных данных, для малых значений колебательных и вращательных квантовых чисел

Таблица 2. Энергии колебательно-вращательных уровней модельного иона H_2^+ , принадлежащих основному электронному терму

v	m			
	0	1	2	8
0	-2.267	-2.264	-2.256	-2.087
1	-2.012	-2.010	-2.000	-1.843
2	-1.763	-1.760	-1.752	-1.601
3	-1.529	-1.526	-1.519	-1.3741
4	-1.309	-1.307	-1.299	-1.161
5	-1.103	-1.098	-1.094	-0.960
6	-0.911	-0.908	-0.902	-0.773

полученный спектр хорошо аппроксимируется выражением

$$E_{vm} = \hbar\Omega(v + 1/2) + Bm^2, \quad (14)$$

$$v = 0, 1, 2, \dots, \quad m = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$$

Здесь $\hbar\Omega = 0.255$ эВ — колебательный квант, соответствующий переходу

$$|v = 0, m = 0\rangle \rightarrow |v = 1, m = 0\rangle,$$

$B = \hbar^2/2\mu R_0^2$ — вращательная постоянная, вычисленная для равновесного межъядерного расстояния. Отметим, что в силу выполнения условия $B \ll \hbar\Omega$ влиянием вращательного движения молекулы на величину колебательного кванта можно пренебречь.

Как видно из данных, приведенных в табл. 3, основные параметры двумерного H_2^+ близки к экспериментально измеренным значениям параметров реального трехмерного молекулярного иона.

Перейдем к обсуждению результатов расчетов колебательно-вращательной динамики ядерного движения, полученных в рамках двухтермового приближения. Основная часть расчетов была проведена для начального ядерного состояния $|v = 0, m = 0\rangle$. Типичный пример эволюции ядерной плотности вероятности, рассчитанной для импульса с $\tau_f = 5T$, $\tau_{pl} = 10T$ и $P = 10^{14}$ Вт/см², приведен на рис. 7. Как видно, начальное состояние является полностью делокализованным по углу, и в процессе лазерного воздействия возникает локализация ядерного пакета преимущественно в направлении вектора поляризации электрического поля волны, которая на заднем фронте импульса генерации

Таблица 3. Сравнение параметров модельного (двумерного) и реального (трехмерного) ионов H_2^+

	2D	3D
Равновесное межъядерное расстояние, $R_0, \text{Å}$	1.2	1.06
Энергия диссоциации, эВ	2.3	2.64
Колебательный квант, $\hbar\Omega, \text{эВ}$	0.25	0.28
Энергия перехода между нижними электронными термами при $R = R_0, \text{эВ}$	10	11.5
Потенциал ионизации, эВ	29.8	29.9

сменяется сложной вращательной динамикой, возникающей вследствие заселения большого числа вращательных состояний нижнего электронного состояния молекулы. При этом структура ядерного волнового пакета, представленная на рис. 7, свидетельствует о том, что область локализации пакета по радиусу практически не меняется. Это означает, что молекула остается преимущественно в основном колебательном состоянии. Поскольку основное колебательное состояние локализовано по радиальной координате R в области

$$\Delta R \approx \sqrt{\hbar/\mu\Omega} \approx 0.18 \text{ Å} \ll R_0,$$

эффектом возрастания скорости ионизации с увеличением R можно пренебречь. Это лишний раз подтверждает обоснованность двухтермового приближения в рассматриваемых условиях. Степень ориентирования молекулы относительно направления поля ε удобно характеризовать средним по квантовому состоянию значением квадрата косинуса угла θ [11]. Это значение вычислялось нами по формуле

$$\langle \cos^2 \theta \rangle = \int \cos^2 \theta \{ |\Phi_1(R, \theta, t)|^2 + |\Phi_2(R, \theta, t)|^2 \} \times R dR d\theta, \quad (15)$$

где Φ_1 и Φ_2 — решения системы (10). Для приведенных выше параметров временная динамика $\langle \cos^2 \theta \rangle$ представлена на рис. 8 и демонстрирует существенную «выстроенность» системы к концу «полки» лазерного импульса. Последующая «разориентация» состояния в значительной степени связана с падением интенсивности излучения на заднем фронте генерации. Способность лазерного поля удерживать молекулы в выстроенном состоянии в течение длительного времени с очевидностью следует из данных, представленных на рис. 9. В этом случае длительность «полки» составляет $\tau_{pl} = 50T$, и в течение все-

го этого времени молекула остается преимущественно выстроенной вдоль направления поля волны, хотя степень ориентации и меняется со временем. Особо важным представляется тот факт, что степень электронного и колебательного возбуждений молекулы оказывается малой. Это дает принципиальную возможность управлять пространственной ориентацией молекулы без изменения ее электронного и колебательного состояний, что представляется весьма перспективным для современной лазерной фемтохимии.

Увеличение интенсивности излучения до значений $P \geq 2 \cdot 10^{14} \text{ Вт/см}^2$ существенно меняет картину процесса. В этом случае происходит значительное заселение колебательного континуума нижнего терма, приводящее к развалу молекулы. Соответствующие данные по вероятности обнаружить молекулу на нижнем электронном терме, в том числе в связанном, а не продиссоциированном состоянии, в зависимости от интенсивности излучения приведены на рис. 10. Как видно, для заданных параметров лазерного импульса ($\tau_f = 5T, \tau_{pl} = 10T$) возможность управлять пространственной ориентацией оси молекулы без ее диссоциации ограничена интенсивностями $P \leq 1.5 \cdot 10^{14} \text{ Вт/см}^2$.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, в данной работе исследуется динамика электронной и ядерной подсистем простейшей молекулы H_2^+ в сильном лазерном поле. Показано, что для равновесного значения межъядерного расстояния вероятность ионизации системы достаточно плавно зависит от угловой ориентации оси молекулы по отношению к направлению поляризации электрического поля волны. При этом даже в режиме интенсивной ионизации

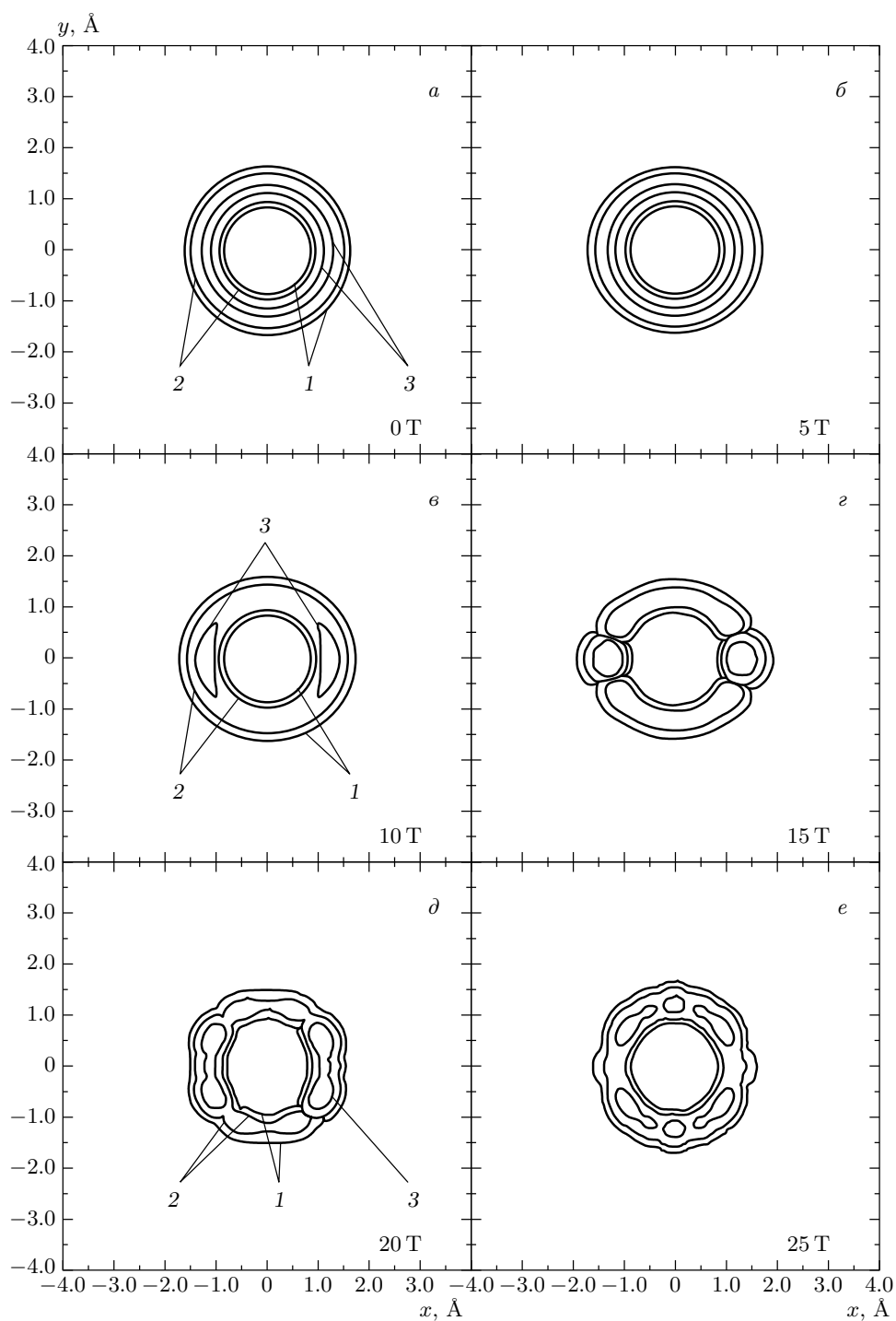


Рис. 7. Динамика ядерного волнового пакета в поле лазерного излучения с интенсивностью $P = 10^{14}$ Вт/см² и параметрами $\tau_f = 5T$ и $\tau_{pl} = 10T$. Линии равной плотности вероятности (в относительных единицах): 1 (1), 0.1 (2), 0.01 (3)

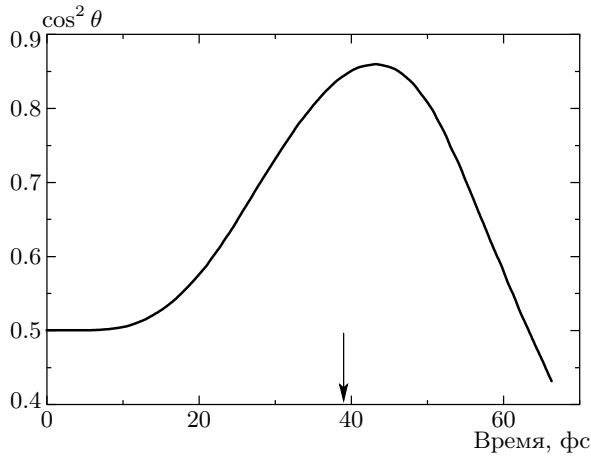


Рис. 8. Среднее значение квадрата косинуса угла между осью молекулы и направлением поляризации электрического поля волны в зависимости от времени для импульса с $\tau_f = 5T$, $\tau_{pl} = 10T$ и $P = 10^{14}$ Вт/см². Стрелкой указано окончание «полки» лазерного импульса

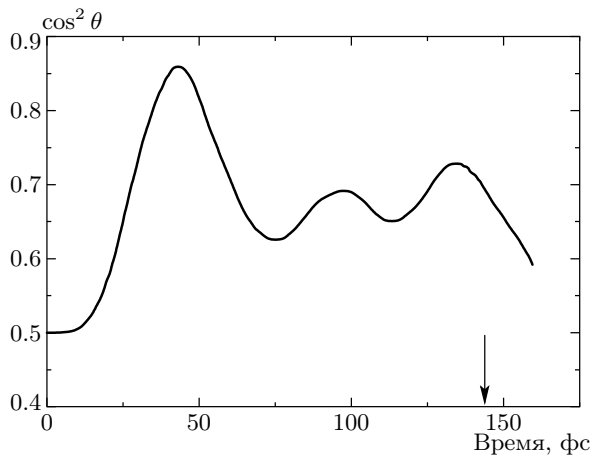


Рис. 9. То же, что на рис. 8, но для $\tau_{pl} = 50T$

ции ($W_i \geq 0.1$) вероятности возбуждения всех электронных состояний молекулы, кроме первого, оказываются пренебрежимо малы. Это позволяет в диапазоне полей, для которых вероятность ионизации системы невелика, исследовать колебательно-вращательную динамику молекулы в рамках приближения двух термов. Использование этого приближения позволило обнаружить диапазон параметров излучения, в котором возможно эффективное воздействие на вращательные состояния молекулы, не сопровождающиеся ее колебательным возбуждением или диссоциацией. Отметим также, что увеличение интенсивности излучения до зна-

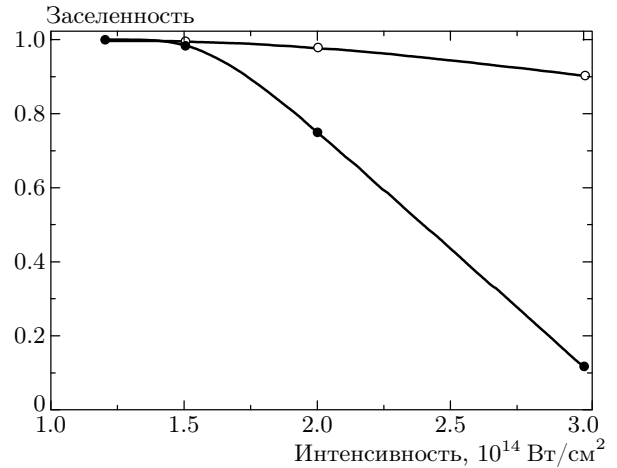


Рис. 10. Зависимости вероятности обнаружить систему после окончания лазерного импульса в основном электронном состоянии (полые кружки) и в том числе в непродиссоциированном состоянии (сплошные кружки) от интенсивности излучения для импульса с $\tau_f = 5T$, $\tau_{pl} = 10T$

чений, соответствующих существенной ионизации молекулы, делает практически трудно реализуемым анализ колебательно-вращательной динамики в рамках адиабатического приближения вследствие необходимости учета большого количества электронных состояний молекулы в континууме. В такой ситуации, по-видимому, предпочтительнее оказывается прямое решение нестационарного уравнения Шредингера для волновой функции молекулы за рамками приближения Борна–Оппенгеймера.

Авторы выражают благодарность С. Cornaggia и L. Roso за полезные обсуждения. Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант № 03-02-16234) и ИНТАС (грант № 99-1495).

ЛИТЕРАТУРА

1. V. A. Cho and R. B. Bernstein, *J. Phys. Chem.* **95**, 8129 (1991).
2. P. B. Corkum, C. E. Ellert, and M. Mehendale, *Faraday Discuss* **113**, 47 (1999).
3. L. J. Frasinski, K. Codling, P. A. Hatherly et al., *Phys. Rev. Lett.* **58**, 2424 (1987).
4. K. Codling, L. J. Frasinski, and P. A. Hatherly, *J. Phys. B* **22**, L321 (1989).

5. Ch. Ellert and P. B. Corkum, *Phys. Rev. A* **59**, R3170 (1999).
6. C. Cornaggia, J. Lavancier, D. Normand et al., *Phys. Rev. A* **44**, 4499 (1991); L. Quaglia, M. Brewczyk, and C. Cornaggia, *Phys. Rev. A* **65**, 031404(R) (2002).
7. E. Charron, A. Giusti-Suzor, and F. H. Mies, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 2815 (1995).
8. T. Seideman, *J. Chem. Phys.* **103**, 7887 (1995).
9. A. I. Andryushin and M. V. Fedorov, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **89**, 837 (1999).
10. M. Tsubouchi, B. Whitaker, L. Wang et al., *Phys. Rev. Lett.* **86**, 4500 (2001).
11. A. M. Popov, O. V. Tikhonova, and E. A. Volkova, *Laser Phys.* **13**, 435 (2003).
12. T. Zuo and A. D. Bandrauk, *Phys. Rev. A* **52**, R2511 (1995); S. Chelkowski and A. D. Bandrauk, *J. Phys. B* **28**, L723 (1995).
13. T. Seideman, M. Yu. Ivanov, and P. B. Corkum, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 2819 (1995).
14. A. M. Popov, O. V. Tikhonova, and E. A. Volkova, *Laser Phys.* **7**, 844 (1997).
15. Н. Б. Делоне, В. П. Крайнов, М. А. Сухарев, Труды ИОФ РАН, Наука, Москва (2000), т. 57.
16. A. A. Kudrin and V. P. Krainov *Laser Phys.* **13**(7) (2003).
17. M. Plummer and J. F. McCann, *J. Phys. B* **30**, L401 (1997).