НЕРЕЗОНАНСНОЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ УЛЬТРАКОРОТКИХ ЭЛЕКТРОМАГНИТНЫХ ИМПУЛЬСОВ С МНОГОУРОВНЕВЫМИ КВАНТОВЫМИ СИСТЕМАМИ

Э. М. Беленов, В. А. Исаков, А. В. Назаркин

Реферат статьи, опубликованной в журнале "Квантовая электроника" **20**, *1045 (1993).*

Прогресс в разработке методов генерации коротких световых импульсов привел к возможности сокращения их длительности до 5 – 10 фс, что составляет лишь несколько колебаний световой волны [1]. Картина взаимодействия столь коротких импульсов с веществом качественно отличается от случая возбуждения среды резонансным квазимонохроматическим излучением. Это вызвано тем обстоятельством, что длительность импульса оказывается короче таких характерных собственных времен среды как периоды молекулярных колебаний или колебаний оптических фононов в твердом теле и становится сравнимой с внутриатомными временами $\tau_a \sim \hbar^3/mZ^2e^4$. В частности, для эффективного возбуждения комбинационно активной среды стало достаточным использование единственного фемтосекундного импульса, поскольку его широкий спектр изначально содержит стоксовы и антистоксовы компоненты поля.

В работе изучаются особенности взаимодействия с многоуровневыми квантовыми системами лазерных импульсов, длительность которых удовлетворяет условию $\tau_p\omega_{mn} << 1$, где ω_{mn} – частота перехода между уровнями m и n, и показано, что это взаимодействие может характеризоваться особым типом селективности, не связанным с резонансными свойствами вещества. Суть эффекта состоит в том, что при $\tau_p << \omega_{mn}^{-1}$ вероятность перехода между квантовыми уровнями становится интегральной функцией временной структуры $\mathcal{E}(t)$ реального поля, а не его медленной амплитуды как в случае резонансного квазимонохроматического излучения. При этом уравнения распространения электромагнитных волн сами накладывают определенные физические ограничения на интегральные величины типа $\int\limits_{-\infty}^{\tau} \mathcal{E}(t)dt$. Как показано в работе [2], поле электромагнитной волны с ограниченной поперечной апертурой в свободном пространстве характеризуется нулевой "площадью" $\int\limits_{-\infty}^{\infty} \mathcal{E}(t)dt = 0$ (следствие интегральной теоремы Гаусса для волны, распространяющейся в пространстве без зарядов). Поскольку в дипольном приближении вероятность перехода между уровнями пропорциональна "площади" электрического поля волны, то при воздействии рассматриваемых импульсов на вещество складывается нетривиальная ситуация, когда уровни, переход на которые разрешен правилами отбора, оказываются незаселенными, в то время как запрещенный переход может быть эффективно возбужден.

Рассмотрен простейший случай трехуровневой системы $E_1 < E_2 < E_3$, причем правила отбора таковы, что разрешены переходы $1 \to 2$ и $2 \to 3$, а переход $1 \to 3$ запрещен. Если до появления ультракороткого импульса ($t = -\infty$) система находилась на уровне 1, то при включении взаимодействия переходы на уровень 2 будут обусловлены быстроосциллирующим и не имеющим постоянной составляющей полем $\mathcal{E}(t)$, в то время как переход $1 \to 3$ связан с квадратичным по полю взаимодействием, для которого $\overline{\mathcal{E}^2(t)} \neq 0$. После прохождения импульса заселенности уровней определяются следующими выражениями:

$$n_1(\infty) = \cos^2\left(\frac{r_{13}}{2\hbar}\int\limits_{-\infty}^{\infty} \mid E \mid^2 dt\right),$$

$$n_2(\infty) = \frac{1}{\hbar^2}[\mu_{12}^2 n_1(\infty) + \mu_{23}^2 n_3(\infty)]\left(\int\limits_{-\infty}^{\infty} \mathcal{E}(t)dt\right)^2 = 0,$$

$$n_3(\infty) = \sin^2\left(\frac{r_{13}}{2\hbar}\int\limits_{-\infty}^{\infty} \mid E \mid^2 dt\right),$$

где μ_{ij} – дипольные моменты переходов $i \to j$, r_{13} – составной матричный элемент второго порядка, связанный с переходом $1 \to 3$ через удаленные виртуальные уровни. Таким образом, воздействие на трехуровневую систему нерезонансного ультракороткого импульса носит ярко выраженный селективный характер, при котором перераспределение населенностей происходит на запрещенных переходах, в то время как уровень, связанный с основным состоянием разрешенным переходом, остается незаселенным и на переходе $3 \to 2$ возникает инверсия. Если энергия импульса такова, что $\psi_\infty = \frac{r_{13}}{2\hbar}\int\limits_{-\infty}^{\infty} \mid E \mid^2 dt = \frac{\pi}{2}(2n+1)$, $n = 0, 1, 2, \ldots$, система оказывается в состоянии 3 и всю запасенную энергию можно извлечь, например, с помощью последовательности двух π-импульсов, резонансных соответствующим переходам. При начальном распределении частиц $n_{10} > n_{20} > n_{30}$ инверсия на переходе $2 \to 3$ возникает, если энергия импульса такова, что $\psi_\infty > (n_{20}/n_{10})^{1/2}$. Оце́нки, сделанные для молекулы CO_2 (основное состояние 00°0 и первые два уровня деформационных колебаний 01°0 и 02°0), показывают, что при длительности возбуждающего импульса $\tau_p \simeq 10$ *фс* интенсивность, обеспечивающая инверсию на переходе 02°0 → 01°0, составляет $\sim 10^{12}$ *Вт/см*^{2}, что соответствует возможностям современной фемтосекундной лазерной техники.

Возможность эффективного нерезонансного возбуждения высоких колебательных уровней делает актуальным вопрос о трансформации, в частности, диссоциации молекул под действием мощного ультракороткого импульса. Постановка задачи здесь близка к рассмотренной А. Б. Мигдалом эффективности возбуждения и ионизации атома при мгновенной передаче скорости его ядру [3]. В нашем случае волновые функции колебательного гамильтониана молекулы в основном состоянии до и после воздействия на нее δ-импульса нерезонансного излучения оказываются связанными соотношением $\Phi_0(Q, t = \infty) = \Phi_0(Q, t = -\infty)\exp\left(i\frac{\mathcal{P}Q}{\hbar}\right)$, где Q – колебательная координата молекулы, а $\mathcal{P} = -\frac{1}{4}\left(\frac{\partial \kappa_0}{\partial Q}\right)\int\limits_{-\infty}^{\infty} | E(t) |^2 \, dt$ имеет смысл импульса, переданного молекуле в результате мгновенного воздействия на нее ультракороткого импульса, κ_0 – поляризуемость молекулы. Состояние $\Phi_0(Q, t = \infty)$, однако, уже не является стационарным состоянием молекулы и переход к стационарному состоянию сопровождается заселением колебательных уровней, причем вероятность этого процесса определяется коэффициентами разложения $\Phi_0(Q, t = \infty)$ гамильтониана. Очевидно, чем выше сообщаемая молекуле колебательная скорость, тем дальше ее начальное состояние от стационарного и, следовательно, выше вероятность возбуждения высоких колебательных уровней. В работе в рамках модели ангармонического осциллятора Морза получено следующее выражение для вероятности обнаружить молекулу на v-ом колебательном уровне:

$$\omega_{0,v} = \frac{\pi\beta}{(2N-1)! \sin\mathrm{h}(\pi\beta)} \frac{\prod\limits_{n=1}^{2N-1} [\beta^2 + (n-v)^2]}{v!(2N-v-1)!},$$

где N – полное число колебательных уровней ангармонической молекулы, β – параметр, пропорциональный энергии ультракороткого импульса. Для слабых импульсов ($\beta \to 0$) вероятность возбуждения колебательных уровней $1 - \omega_{0,0}$ мала и пропорциональна квадрату энергии импульса β^2. В пределе сверхсильных ультракоротких импульсов ($\beta >> 2N$) вероятность диссоциации $1 - \sum_{v=0}^{N-1} \omega_{0,v}$ экспоненциально близка к единице. Если значение параметра β превышает пороговое $\beta_v^2 = \frac{(2N-v)[2v(N-v+1)-1]}{2(N-v)}$, то между уровнями v и v-1 возникает инверсия населенностей.

Оценки, проведенные для молекулы CO, показали, что для создания инверсии на нижнем колебательном переходе $(v = 1) \to (v = 0)$ требуется фемтосекундный импульс с умеренной плотностью энергии $W \sim 0,1$ *Дж/см²*. Для эффективной диссоциации молекул даже с низкой энергией диссоциации (например, I_2) требуются импульсы с плотностью энергии, по крайней мере, на порядок выше. Тем не менее, это требование находится в пределах возможностей современных фемтосекундных источников и может быть выполнено при фокусировке излучения.

ЛИТЕРАТУРА

[1] Ахманов С. А., Выслоух В. А., Чиркин А. С. Оптика фемтосекундных лазерных импульсов. М., Наука, 1988.

[2] Беленов Э. М. Назаркин А. В. Письма в ЖЭТФ, **53**, 188 (1991).

[3] Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М. Квантовая механика. М., Наука, 1963, с. 178.

Поступила в редакцию 9 июля 1993 г.