

На правах рукописи

МОЛОДЕНСКИЙ Михаил Сергеевич

**Лазерное управление вращательной динамикой
двухатомных молекул**

Специальность 01.04.21- лазерная физика

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

МОСКВА – 2007

Работа выполнена на кафедре атомной физики, физики плазмы и микроэлектроники физического факультета Московского государственного университета им. М.В.Ломоносова.

Научный руководитель:

доктор физико-математических наук
Тихонова Ольга Владимировна

Официальные оппоненты:

ГОРЕСЛАВСКИЙ Сергей Павлович,
доктор физико-математических наук, профессор, (МИФИ)

ФЕДОРОВ Михаил Владимирович,
доктор физико-математических наук, профессор, (ИОФ РАН)

Ведущая организация: Московский физико-технический институт

Защита состоится «25» мая 2007 года в 15-00 часов на заседании Диссертационного совета Д501.001.045 при МГУ им. М.В.Ломоносова по адресу: 119992, Москва, Ленинские горы, НИИЯФ МГУ, 19 корпус, ауд. 2-15.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке НИИЯФ МГУ.

Автореферат разослан «23» апреля 2007 г.

Ученый секретарь
диссертационного совета Д501.001.045
доктор физико-математических наук



А.Н.Васильев

Общая характеристика работы

Актуальность темы

Одним из наиболее интересных и быстроразвивающихся направлений лазерной физики является исследование взаимодействия интенсивного лазерного излучения с атомными и молекулярными системами. Прогресс в технике генерации мощного лазерного излучения позволяет получать в настоящее время импульсы длительностью в несколько оптических циклов и интенсивностью вплоть до 10^{20} - 10^{22} Вт/см². В таких сильных полях атомные и молекулярные системы проявляют новые свойства, а их динамика существенным образом отличается от традиционных представлений. Еще одной принципиальной особенностью таких предельно коротких импульсов является существенно неадиабатический характер их воздействия на исследуемую систему, что обуславливает специфику возникающего отклика.

Воздействие лазерных импульсов приводит к возможности управления ориентацией молекул в пространстве, выстраиванию молекул вдоль и поперёк направления электрического поля, а также удержанию молекул в ориентированном состоянии с помощью импульсов суб-пикосекундной длительности. Ориентирование молекул открывает возможности для большого числа практических приложений, в частности для управления каналами химических реакций, выделения различных стереоизомеров, эффективного контроля каталитических реакций на поверхности, генерации гармоник высокого порядка и получения ультракоротких импульсов аттосекундной длительности. В этой связи важное значение приобретает лазерное управление ориентацией молекул в отсутствие их диссоциации и ионизации, а также возможность выстраивания молекул вдоль заданного направления в режиме свободных “движений” после прохождения лазерного импульса.

Выстраивание молекул под действием лазерного поля может также приводить к новой качественной специфике различных нелинейных эффектов, возникающих при распространении лазерного импульса в такой среде. Кроме того, следует учитывать особенности возникающего в среде ориентационного отклика, обусловленные неадиабатичностью лазерного воздействия.

Таким образом, детальное исследование взаимодействия молекулярных систем с интенсивными лазерными импульсами ультракороткой длительности является важной и актуальной задачей. Поскольку экспериментальное решение этой проблемы

технически сложно, и, в ряде случаев, не представляется возможным однозначно интерпретировать полученные данные, большое значение приобретают теоретический анализ проблемы, включая численные методы моделирования.

Цель работы

1. Исследование процесса ориентирования молекул под воздействием сильного лазерного импульса, определение характерных времен и эффективностей выстраивания в зависимости от параметров лазерного импульса.
2. Анализ пределов применимости различных подходов, используемых для описания вращательной динамики молекулы в лазерном поле.
3. Анализ квантовой специфики вращательной динамики молекул в лазерном поле.
4. Сопоставление квантовой и классической картины вращения одиночной молекулы в лазерном импульсе. Выявление области параметров лазерного излучения и исследуемой молекулярной системы, при которых вращательная динамика молекулы может быть описана классически.
5. Исследование вращательной динамики ансамбля молекул в интенсивном лазерном импульсе. Изучение влияния температуры на процесс выстраивания молекулярного ансамбля. Анализ роли релаксационных процессов во вращательной динамике ансамбля молекул в процессе и по окончании лазерного воздействия.
6. Определение пределов применимости классического подхода для описания вращательной динамики ансамбля молекул в лазерном импульсе.

Научная новизна работы

В работе:

- Впервые продемонстрировано, что выстраивание легких молекул интенсивным лазерным импульсом является быстрым процессом с характерными временами порядка нескольких десятков фемтосекунд.
- Впервые задача о вращательной динамике молекул в сильном лазерном поле решена с учетом заселения верхних электронных термов, и получены пределы применимости для модели «одного терма», основанной на адиабатическом исключении всех электронных термов кроме исходного.
- Для гетероядерных молекул обнаружен новый механизм переориентации оси молекулы в сильном лазерном поле, не имеющий классического аналога.
- Впервые проведено последовательное сравнение результатов вращательной динамики молекул в лазерном поле, полученных в рамках квантово-механического и

классического рассмотрений, и определены пределы применимости классического подхода.

- Впервые исследовано влияние релаксационных процессов на выстраивание молекул в процессе лазерного воздействия.

Научная и практическая значимость работы

Полученные результаты имеют фундаментальную научную значимость с точки зрения детального исследования процесса вращательной динамики молекул в лазерном поле, который характеризуется целым рядом качественно новых физических особенностей, проявляющихся в случае высокой интенсивности и ультракороткой длительности воздействующих импульсов. Практическая ценность проведенных исследований связана с проблемой оптимального осуществления лазерного управления процессом ориентирования молекул, что имеет принципиальное значение для эффективного выделения необходимых каналов различных химических реакций, в том числе на поверхности, увеличения эффективности выхода гармоник высокого порядка и оптимизации генерации ультракоротких импульсов аттосекундной длительности.

Основные положения, выносимые на защиту:

1. Характерные времена выстраивания легких молекул сильным лазерным полем не превышают нескольких десятков фемтосекунд.

2. Общепринятая модель, основанная на адиабатическом исключении всех электронных термов молекулы кроме исходного (модель «одного терма»), справедлива только в ограниченном диапазоне лазерных параметров и не позволяет количественно точно описать ряд феноменологических характеристик молекулярной среды, например, ее ориентационный отклик на ультракороткое лазерное воздействие.

3. Туннельный механизм разворота молекулярной оси на 180^0 под действием лазерного поля для гетероядерных молекул.

4. Вращательная динамика отдельной молекулы в лазерном поле является существенно квантовым процессом, классический подход позволяет лишь качественно описать эволюцию процесса в очень узком диапазоне начальных условий и лазерных параметров.

5. Роль процессов тепловой релаксации молекулярного ансамбля в процессе лазерного воздействия, приводящая к значительному уменьшению эффективности выстраивания молекул лазерным полем.

Апробация работы

Результаты работы докладывались на Научной сессии МИФИ (Москва, 2001), Международной конференции студентов, аспирантов и молодых ученых по фундаментальным наукам «Ломоносов-2003» (Москва, 2003), Международных семинарах по явлениям в сильных полях (Братислава, 2002; Гамбург, 2003; Триест, 2004, Лозанна 2006); Международной конференции по квантовой электронике, Москва, 2002; Международном семинаре "New directions in Laser – Matter Interaction", Brussel, 2002. Кроме того, результаты работы неоднократно докладывались на семинаре по многофотонным процессам института общей физики РАН.

Публикации: По материалам работы опубликовано 13 работ, из них 7- тезисы докладов. Список работ приведен в конце автореферата.

Структура и объем диссертации

Диссертация состоит из введения, 4 глав, заключения и списка литературы (85 наименований). Общий объем 89 страниц, в том числе 27 рисунков.

Содержание диссертации

Во введении обосновывается актуальность темы, формулируются цели и задачи диссертационной работы и изложено ее краткое содержание.

Первая глава представляет собой **литературный обзор**, в котором рассматриваются современные исследования по вращательной динамике молекул в лазерных полях. Проводится сравнительный анализ различных подходов, используемых в задачах о вращательной динамике молекул в лазерном поле, а также имеющихся экспериментальных и теоретических данных. Анализируется, какие проблемы в области молекулярной вращательной динамики и лазерного управления ориентированием молекул до сих пор остаются открытыми. Отмечается, что, важной и актуальной задачей остается детальный анализ квантовой специфики вращательной динамики молекулы в лазерном поле и возможности корректного описания данного процесса в рамках классического подхода, а также оптимизация лазерного управления выстраиванием молекул.

Во второй главе (основные результаты обсуждены в [1,2,7-10]) рассматривается задача о вращательной динамике молекулы в поле и анализируется возможность эффективного выстраивания молекул сильным лазерным полем. При этом начальная ориентация молекулярной оси предполагалась изотропной по углу. Для

описания вращательной динамики гомоядерной двухатомной молекулы в поле решалось нестационарное уравнение Шредингера:

$$i\hbar \frac{\partial \psi}{\partial t} = \hat{H} \psi \quad (1)$$

с гамильтонианом в системе центра масс молекулы:

$$\hat{H} = \frac{\hat{p}_e^2}{2m} + \frac{\hat{p}_N^2}{2\mu} + \frac{e^2}{|R|} - \frac{e^2}{|r - R/2|} - \frac{e^2}{|\vec{r} - R/2|} - d\varepsilon(t). \quad (2)$$

Здесь $\hat{p}_e^2/2m$ - кинетическая энергия электрона, $\hat{p}_e^2/2\mu$ - оператор кинетической энергии ядер в системе центра масс, $r = \{x, y\}$ - радиус-вектор электрона, $R = \{R, \theta\}$ - вектор, построенный между первым и вторым ядром, θ - угол между вектором ε (ось OX) и осью молекулы, $\mu = M/2$ - приведённая масса, d - электронный дипольный момент системы, поскольку для гомоядерной молекулы дипольный момент ядер в системе центра масс равен нулю. Задача о вращательной динамике первоначально делокализованных волновых пакетов в лазерном импульсе решалась в приближении Борна – Оппенгеймнера в модели жесткого ротатора. При этом учитывались два нижних электронных терма молекулы.

Продемонстрировано, что в процессе лазерного воздействия заселяется большое число вращательных подуровней молекулы (рис.1).

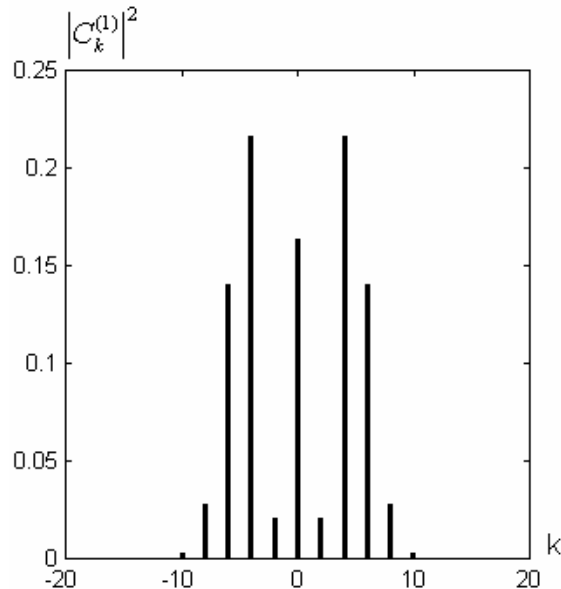


Рис. 1: Вероятности заселения вращательных уровней первого терма в зависимости от номера вращательного уровня k к концу “плато” лазерного импульса с фронтом в 5, плато в 10 оптических циклов-титан-сапфирового лазера и интенсивностью 10^{14} Вм/см^2 .

Как следствие, ядерный волновой пакет оказывается сильно локализован по углу и ориентирован вдоль направления лазерного поля. Этот факт продемонстрирован на зависимости от времени среднего по вращательному пакету значения $\overline{\cos^2 \theta}$, которое характеризует степень выстраивания молекулы (рис. 2).

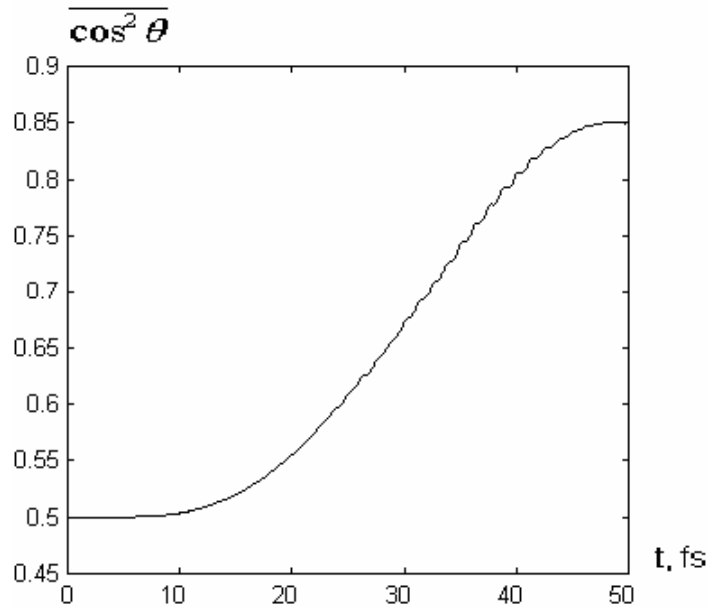


Рис. 2: Средний по пакету $\overline{\cos^2 \theta}$, характеризующий динамическое выстраивание молекулы, как функция времени для интенсивности $10^{14} \text{ Bm}/\text{cm}^2$. Момент окончания импульса соответствует времени $t = 50 \text{ fs}$.

С учетом заселения в процессе лазерного воздействия порядка 10 вращательных состояний, характерное время выстраивания молекулы в поле может быть оценено как $\tau_{ch} \approx \hbar / (B(2m_{\max} + 1)) \approx 30 \text{ фс}$ (m_{\max} – максимальное число вращательных состояний, которые оказались заселены в поле). Таким образом, вращение в поле оказывается гораздо более быстрым процессом по сравнению со свободным вращением молекул, находящихся, например, при комнатной температуре, когда вращательные степени свободы возбуждены не более чем до $m_{\max} \approx 3$.

В данной главе также была проанализирована область применимости модели «одного терма», которая основана на адиабатическом исключении всех электронных термов молекулы кроме исходного и сведении задачи о ядерном движении к рассмотрению динамики молекулы только начально заселенного терма. Было обнаружено, что для импульса титан-сапфирового лазера с интенсивностью $10^{14} \text{ Bm}/\text{cm}^2$ и включением в 5 оптических циклов максимальное значение

заселённости второго терма в течение импульса не превышает значения $2,5 \cdot 10^{-2}$, поэтому влиянием второго и всех вышележащих термов на динамику молекулы для данных параметров импульса можно пренебречь. Однако, для интенсивности лазерного поля 10^{15} Вт/см^2 вероятность заселения второго терма достигает уже 0.15, и модель «одного терма» оказывается уже не правомерной. Различие временных зависимостей средних по пакету квадратов косинусов угла θ , полученных в рамках моделей одного и двух термов, представлено на рис. 3:

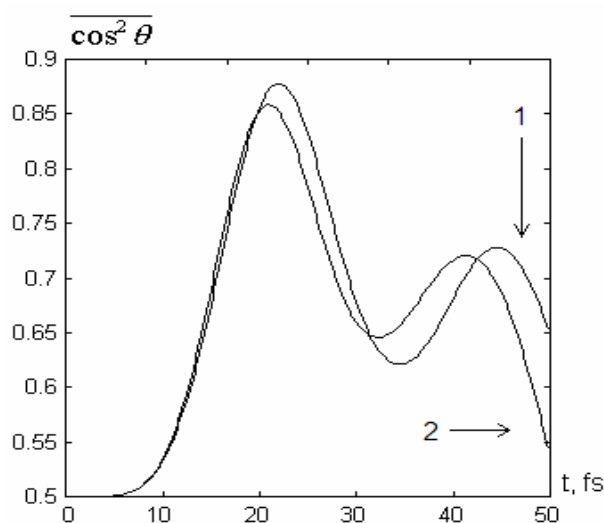


Рис. 3: Зависимости от времени средних по пакету квадратов косинусов угла θ , полученных в рамках модели одного (1) и двух(2) термов.

Таким образом, применимость наиболее часто используемой для описания вращательной динамики модели «одного терма» ограничена требованием малости заселения всех вышележащих электронных термов, что приводит к существенным ограничениям на лазерную интенсивность сверху. Одновременно с этим, такой подход оказывается неправомерным и в случае предельно коротких лазерных импульсов, когда заселение многих электронных термов возникает из-за резкой неадиабатичности включения лазерного импульса. Кроме того, модель «одного терма» не позволяет последовательно, из первых принципов получить выражение для ориентационного отклика молекулярной среды, что имеет принципиальное значение в задачах распространения, особенно для ультракоротких лазерных импульсов высокой интенсивности.

В третьей главе (основные результаты обсуждены в [3,4,11]) исследована квантовая специфика динамики локализованных вращательных волновых пакетов в

лазерном поле и проанализирована область применимости классического подхода для описания вращательной динамики отдельно взятой молекулы. В приближении одного терма, задача о вращательной динамике молекулы в поле может быть сведена к исследованию движения молекулы в эффективном потенциале.

$$U = -\frac{1}{2} \varepsilon^2(t) \cdot (\alpha_{\parallel} - \alpha_{\perp}) \cos^2 \theta \quad (3)$$

На интервале $(0, 2\pi)$ данный потенциал характеризуется двукратной структурой с минимумами, локализованными в направлениях $\theta = 0$ и π (рис.4).

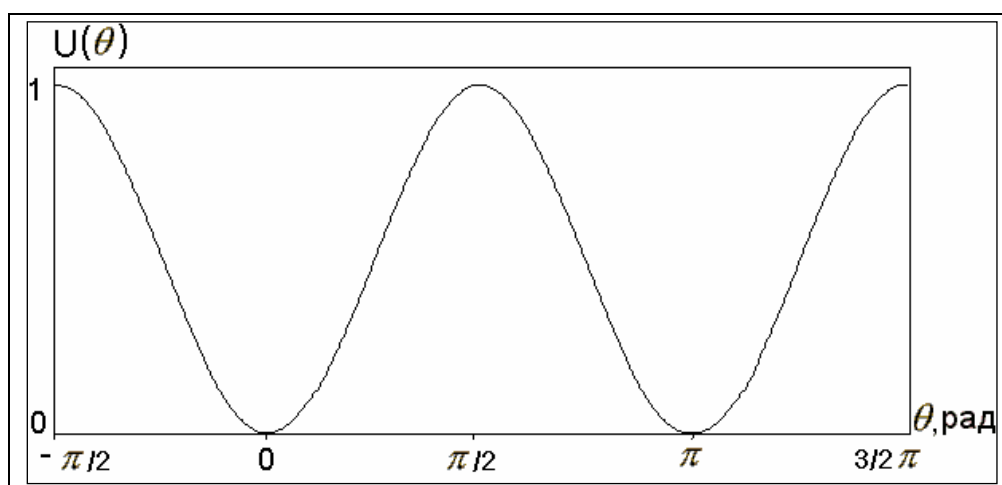


Рис.4. Угловая зависимость эффективной потенциальной энергии (3), характеризующей взаимодействие молекулы с лазерным полем.

В этом случае гамильтониан системы можно представить в следующем виде:

$$H = \frac{\hat{p}_N^2}{2\mu} + V_{eff}^{(1)} - \frac{1}{4} \varepsilon_0^2(t) \cdot (\alpha_{\parallel} \cos^2 \theta + \alpha_{\perp} \sin^2 \theta) \quad (4)$$

где $\hat{p}_e^2/2\mu$ - оператор вращательной кинетической энергии ядер в системе центра масс, V_{eff} - энергия электронного потенциального терма для состояния, в котором система находилась до включения поля, $\varepsilon_0(t)$ - огибающая лазерного импульса, θ - угол между осью молекулы и направлением лазерной поляризации, α_{\parallel} и α_{\perp} - компоненты поляризуемости в главных осях линейной молекулы.

Из вида потенциальной энергии (3) легко понять механизм выстраивания молекул вдоль поля: молекулы преимущественно удерживаются в окрестности минимумов потенциальной энергии, то есть вдоль напряженности лазерного поля. При

этом соответствие квантовой и классической картин может иметь место только для изначально уже локализованных вращательных волновых пакетов в квантовой задаче.

Эволюция ядерной плотности вероятности в лазерном поле для такого волнового пакета, начально отклоненного на угол $\pi/4$ от положения минимума, представлена на рис.5. С помощью поля лазерного импульса удалось удерживать молекулу в ограниченной угловой области. Помимо этого, на начальном отрезке времени волновой пакет остаётся локализованным, достаточно хорошо сохраняет свою форму и совершает угловые колебания, похожие на классические угловые колебания молекулярной оси около положения равновесия, начально отклонённой на некоторый угол. Однако, уже после одного периода вращательных колебаний молекулы происходит фрагментация волнового пакета, появляются дополнительные максимумы, волновой пакет расплывается на область своего движения, то есть вращательная динамика приобретает квантовый характер. Кроме того, было показано, что и период угловых «осцилляций» в квантовом случае отличен от периода классического движения в таком поле. Этот факт является прямым следствием существенного ангармонизма потенциала взаимодействия молекулы с лазерным полем (3).

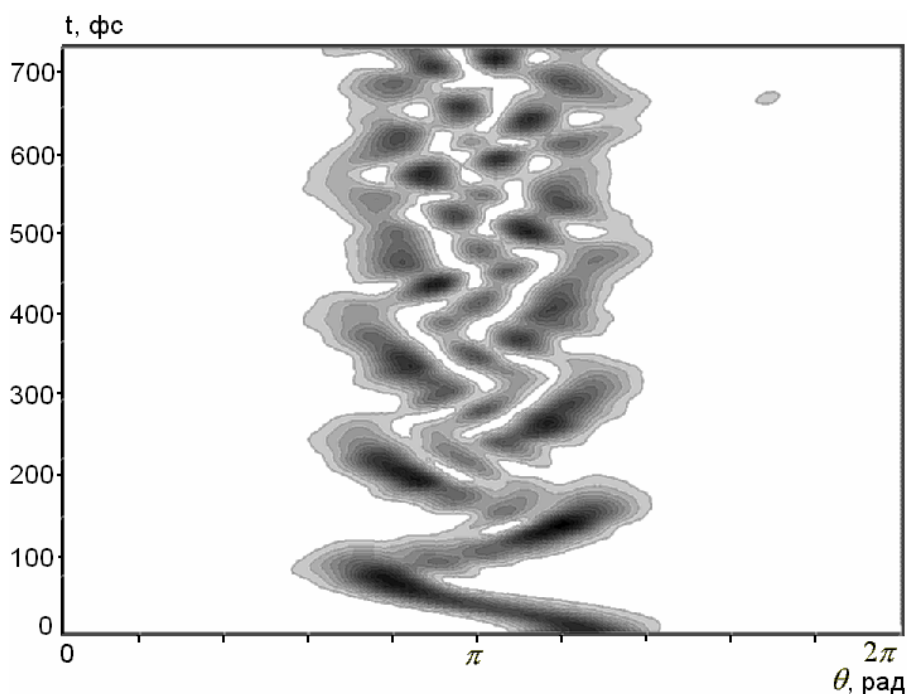


Рис. 5. Временная эволюция ядерной плотности вероятности в случае ядерного пакета с начальным углом отклонения пакета от направления напряжённости электрического поля $\theta_0 = \pi/4$ и характерной шириной пакета $\Delta\theta = \pi/4$ в лазерном поле с интенсивностью $I = 10^{14}$ Вт/см² и прямоугольной огибающей.

Таким образом, в общем случае имеет место принципиальное качественное отличие квантово-механической и классической картин вращательной динамики молекул в лазерном поле. Было также продемонстрировано, что специальный выбор параметров начального волнового пакета позволяет получить лучшее соответствие между квантово-механическими и классическими результатами, которое все же ограничено по времени. Кроме того, периоды угловых вращений в квантовом и классическом случаях остаются различными в той мере, на сколько существенным оказывается ангармонизм взаимодействия (3) в процессе лазерного воздействия.

В данной главе также обсуждается обнаруженный для гетероядерных молекул новый механизм переориентации молекулярной оси под действием лазерного поля, не имеющий классических аналогов. Как уже отмечалось, на интервале $(0, 2\pi)$ потенциал (3) характеризуется двукратной структурой с минимумами, локализованными в направлениях $\theta = 0$ и π (рис.4). Таким образом, для волнового пакета, начально локализованного в одной из ям потенциала, существует вероятность туннелирования во вторую яму. Такой процесс означает, что для гетероядерной молекулы имеет место туннельный механизм разворота молекулярной оси на 180° , отличный от вращательного движения и имеющий существенно квантовую природу. Результаты численных расчетов (рис.6) подтверждают возможность туннельного перетекания волнового пакета из одной ямы в другую с эффективностью $\sim 50\%$ на временах ~ 2 пс.

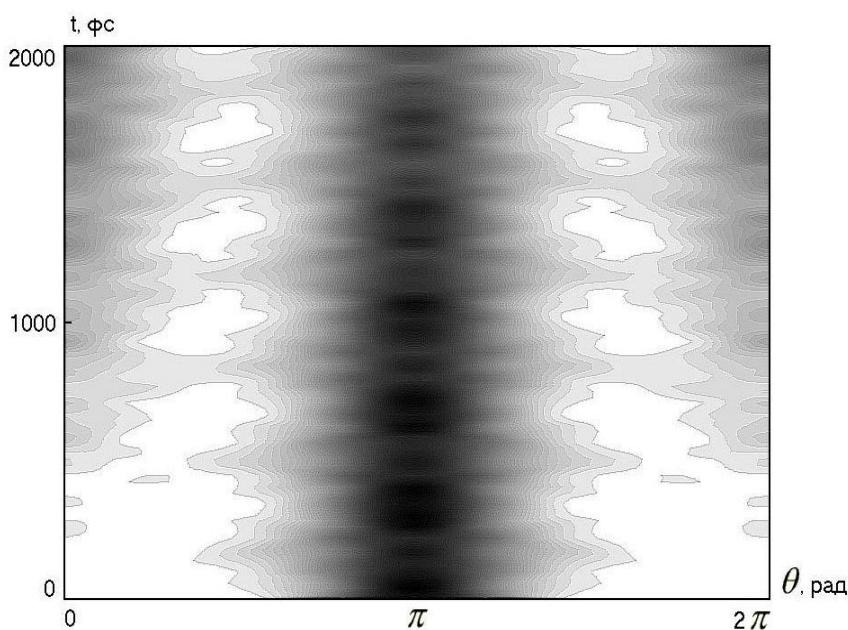


Рис.6. Эволюция ядерной угловой плотности вероятности в режиме туннельного разворота оси молекулы в лазерном поле для интенсивности 10^{14} Вт/см².

Таким образом, результаты данной главы свидетельствуют о том, что в общем случае вращение одиночной молекулы в поле является существенно квантовым процессом. Может быть определён лишь узкий диапазон параметров, для которых классическое описание вращательной динамики оказывается близко к квантовой картине. Наблюдаемая квантовая специфика вращательной динамики обусловлена значительной шириной и быстрым расплыванием вращательных волновых пакетов, квантовой интерференцией отдельных частей волновой функции друг с другом, существенно ангармоническим характером потенциала взаимодействия молекулы с лазерным полем, а также возможностью туннельных процессов, не имеющих классического аналога. Возможность классического рассмотрения вращений анализируется также в пределе увеличения массы молекулы.

В четвертой главе (основные результаты обсуждены в [5,6,12,13])

исследуется роль релаксационных процессов в выстраивании молекул под действием лазерного импульса. Исследуется вращательная динамика квантового и классического ансамблей молекул в лазерном поле с учетом теплового движения при различных температурах среды. Определены области значений лазерных параметров и начальных условий, при которых результаты, полученные для квантового и классического ансамблей, оказываются близки.

В реальном эксперименте с лазерным импульсом взаимодействует не единичная молекула, а ансамбль молекул вещества мишени, каждая из которых совершает тепловое движение и взаимодействует с другими молекулами среды. Недавние исследования показали, что степень выстраивания молекул в реальном эксперименте оказывается меньше значения, которое предсказывают теоретические исследования. По-видимому, причиной этого несоответствия являются релаксационные процессы в ансамбле молекул мишени. Наличие релаксации приводит к невозможности характеризовать систему волновой функцией. Поэтому, в данной работе, в отличие от случая изолированной молекулы, для описания вращательной динамики ансамбля молекул в лазерном поле решалось уравнение Неймана:

$$i\hbar \frac{d\hat{\rho}}{dt} = [\hat{H}, \hat{\rho}] + \hat{R} \quad (5)$$

где \hat{H} - гамильтониан системы, был выбран в форме (4), а \hat{R} - оператор (матрица) релаксации. Учет релаксационных процессов проводился в модели случайных

столкновений. Проанализирована роль релаксационных процессов на выстраивание молекул в поле, а также возможность описания вращательной динамики молекул при помощи модели классического ансамбля для различных значений характерного времени релаксации. Для этого полученные в квантовых расчетах в различные моменты времени распределения молекул по углу сравнивались с угловыми распределениями, рассчитанными в рамках соответствующей классической задачи.

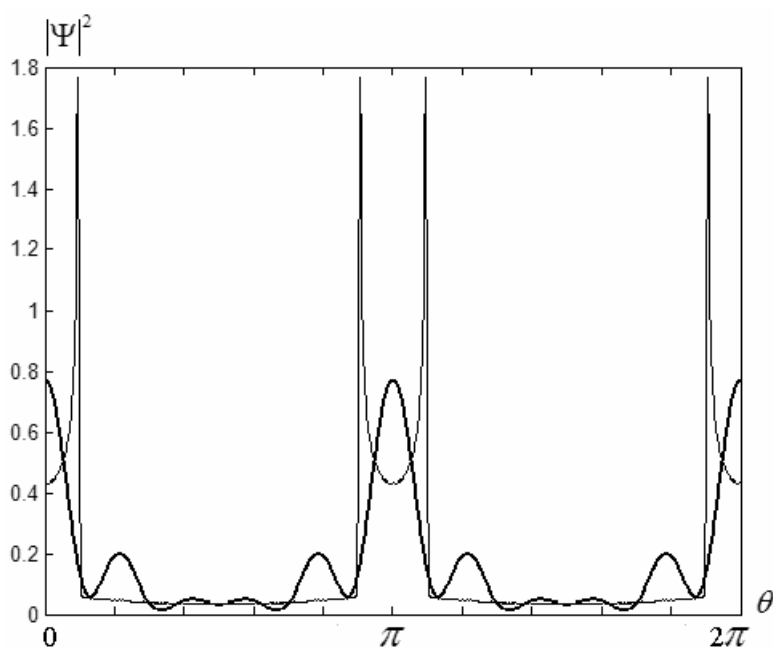


Рис. 7 плотность вероятности обнаружить молекулу под углом θ к направлению лазерного поля в момент времени, соответствующий достижению первого максимума на зависимости $\langle \cos^2 \theta \rangle$ от времени: жирная кривая - квантовое распределение; тонкая кривая – классическое распределение. Интенсивность лазерного импульса 10^{14} Вт/см².

В случае низкой начальной температуры молекулярной среды, показано, что и квантовый, и классический ансамбли молекул ориентируются вдоль направления поля с близкими по величине эффективностями. Однако форма самих угловых распределений существенно различается практически во все моменты времени. В частности, на начальных временах лазерного воздействия по мере возрастания $\langle \cos^2 \theta \rangle$ квантовое распределение характеризуется всё более сужающимися по углу пиками в направлениях $\theta = 0, \pi$ с образованием максимально узких пиков в момент достижения первого максимума на зависимости $\langle \cos^2 \theta \rangle$ от времени (рис. 7 жирная кривая). Классическая плотность вероятности характеризуется сингулярным двухпиковым распределением, так называемым «rainbow» (тонкая кривая). Таким образом, квантовое и классическое угловые распределения являются в этом случае

существенно различными. Общей для квантово-механической и классической динамики молекулы в процессе лазерного воздействия является только тенденция возникновения достаточно узкого углового распределения, а затем удержания молекул, в среднем (по критерию $\langle \cos^2 \theta \rangle$) в выстроенном состоянии под действием поля.

В случае температуры молекулярного ансамбля $T=300\text{K}$ принципиально важным оказывается вопрос о выборе начальных условий в классической задаче. Дискретный набор начальных вращательных моментов, полностью соответствующий энергиям начально заселенных квантовых уровней, приводит к принципиальным отличиям квантовых и классических угловых распределении. Однако, обнаружено, что непрерывное Максвелловское начальное распределение классического ансамбля по угловым скоростям приводит к качественной и количественной близости возникающих угловых распределений на начальных временах лазерного воздействия. Таким образом, квантовая и классическая модели дают одинаковые угловые распределения вплоть до момента первой угловой «фокусировки» ансамбля вдоль направления поля. Однако, в последующие моменты времени результаты, полученные из двух моделей, имеют существенные различия (рис. 8).

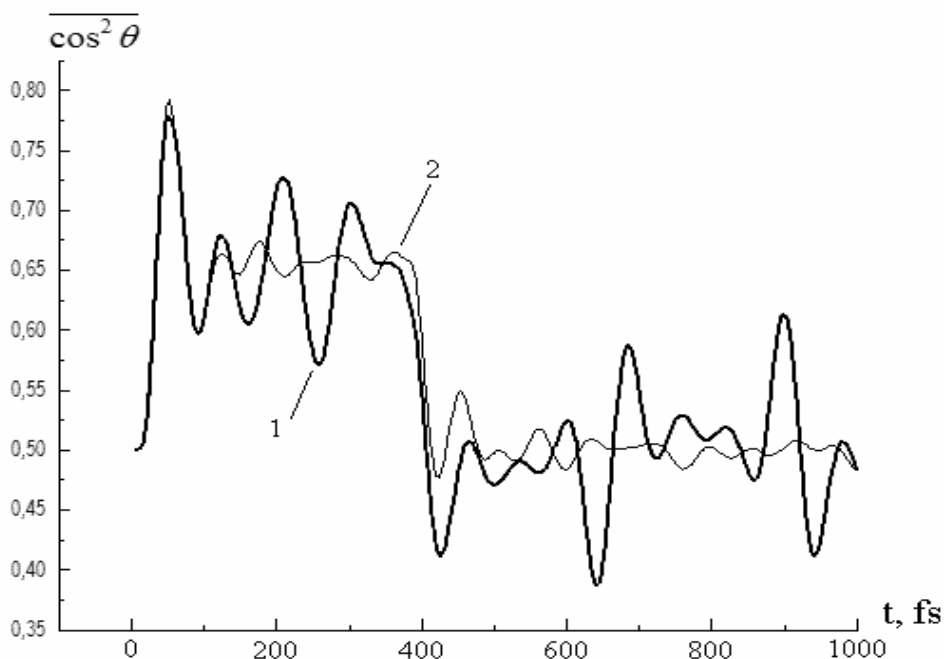


Рис. 8 Квантовая (жирная кривая) и классическая (токая кривая) динамика $\langle \cos^2 \theta \rangle$ в течение импульса (с длительностями фронтов и плато в 5 и 150 оптических циклов соответственно) и в послеимпульсовом режиме (250 оптических циклов) Начальная температура ансамбля считалась равной $T=300\text{K}$, а характерное время релаксации было выбрано равным 10^{-9} с.

Отмеченные различия обусловлены затуханием эффективности выстраивания классического ансамбля молекул из-за ангармонизма потенциала взаимодействия с лазерным полем, а также существенным расплыванием и структурированием углового распределения в квантовом случае.

Особый интерес представляет анализ роли релаксационных процессов в течение лазерного воздействия. Такая ситуация может иметь место в случае вращательной динамики молекулы на поверхности, когда характерное время релаксации может достигать значения 100 фс. Зависимость $\langle \cos^2 \theta \rangle$ от времени для такого значения времени релаксации представлены на рис. 9. Обнаружено хорошее качественное совпадение результатов квантовой и классической моделей как до момента первой «фокусировки» по углу молекулярного ансамбля, так и для более поздних времен. Это объясняется тем, что релаксационные процессы препятствуют проявлению квантового эффекта периодического восстановления распределения, в результате чего результаты квантовой модели становятся ближе к результатам классической модели. С другой стороны, как было сказано выше, начальная достаточно высокая температура ансамбля обеспечивает сглаживание сингулярностей в классическом распределении и отсутствие информации о фазах в квантовом ансамбле.

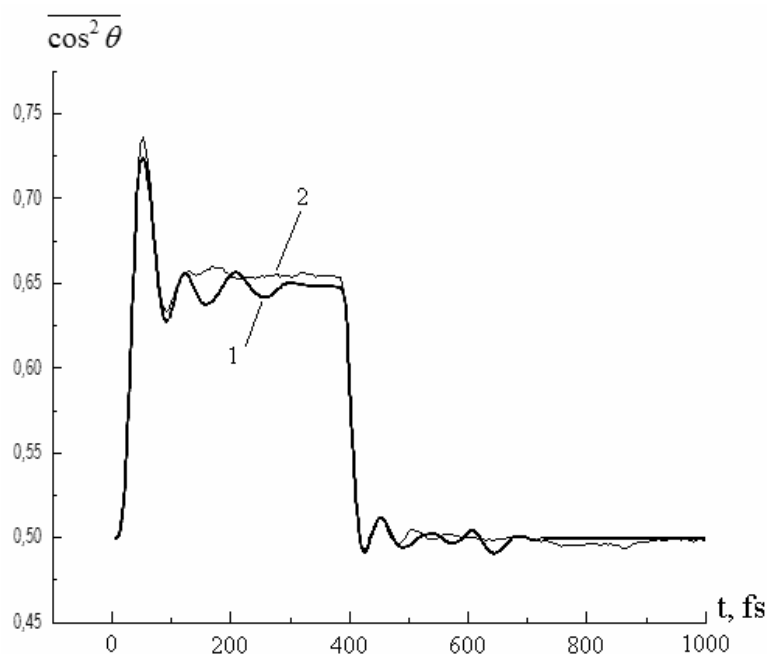


Рис. 9 квантовая (жирная кривая) и классическая (тонкая кривая) зависимости $\langle \cos^2 \theta \rangle$ от времени для характерного времени релаксации равного 100 фс. Все остальные параметры импульса были взяты аналогично случаю, на рис. 8.

Однако, существенная роль релаксационных процессов на временах лазерного воздействия приводит к значительным ограничениям на эффективность лазерного выстраивания молекул ансамбля: степень «фокусировки» молекул по углу в течение лазерного воздействия не превышает 30%. В данной главе также исследован случай предельно короткого лазерного воздействия. Последовательность таких ультракоротких импульсов в литературе рассматривается как наиболее эффективный способ выстраивания молекул. Однако, последовательный квантовый анализ показал, что высокая степень выстраивания реализуется лишь в физически недостижимом диапазоне параметров, а более оптимистичные предсказания, базирующиеся на классическом подходе, оказываются не правомерными.

В заключении сформулированы основные результаты и выводы диссертации:

1. Впервые продемонстрировано, что характерные времена выстраивания легких молекул сильным лазерным полем не превышают нескольких десятков фемтосекунд.
2. Впервые задача исследования вращательной динамики молекул в сильном лазерном поле решена с учетом заселения вышележащих электронных термов молекулы, и получены пределы применимости модели «одного терма» по параметрам воздействующего лазерного излучения.
3. Для гетероядерных молекул впервые обнаружен механизм туннельного «разворота» молекулярной оси на 180° под действием лазерного поля.
4. Определена область применимости классического подхода для описания вращательной динамики как одиночной молекулы, так и ансамбля молекул в лазерном поле.
5. Продемонстрирована конкуренция процессов выстраивания ансамбля молекул и его тепловой релаксации в процессе лазерного воздействия, приводящая к значительному уменьшению эффективности выстраивания молекул в лазерном поле, что необходимо учитывать при оптимизации процессов лазерного управления молекулярным ориентированием.
6. Обнаружена неинерционность нелинейного ориентационного отклика молекулярной среды, обусловленная предельно короткой длительностью воздействующего лазерного излучения.

Основные результаты диссертации представлены в следующих публикациях:

1. М.С.Молоденский, О.В.Тихонова Динамика молекул в сильном лазерном поле в условиях малой диссоциации Вестник МГУ, сер.3, Физика, астрономия, (2002), №6, С.34-39
2. M.S.Molodenski, O.V.Tikhonova Localization and alignment of the nuclear wave packet during rotational dynamics in a strong laser field. Laser Phys., (2003), V.13, P.1205-1211
3. Molodenski M.S., Tikhonova O.V. Comparison of quantum and classical approaches to the problem of rotational molecular dynamics in the presence of a laser field. Laser.Phys, v.14, p.1191-1199, (2004)
4. Тихонова О.В., Молоденский М.С., Динамика локализованных волновых пакетов вращательных состояний молекулы в сильном в лазерном поле ЖЭТФ, т.125, с.1245-1257, (2004)
5. М.С.Молоденский, О.В.Тихонова Особенности вращательной динамики ансамбля двухатомных гомоядерных молекул в сильном лазерном поле Оптика и спектроскопия, Т.102, № 3, стр. 533-540, (2007)
6. M.S.Molodenskiy, O.V.Tikhonova Rotational dynamics of molecular ensemble in a strong laser field. Laser Phys., V.17, N4, (2007), pp. 401-407
7. М.С. Молоденский, О.В. Тихонова. Ориентирование молекул сильным лазерным полем в условиях подавления диссоциации. Научная сессия МИФИ-2002, стр. 217, Москва.
8. М.С.Молоденский, О.В.Тихонова Вращательная динамика молекул в сильном лазерном поле Международная конференция студентов, аспирантов и молодых ученых по фундаментальным наукам Ломоносов-2003, с. 90-91, Москва, 2003
9. M.S.Molodenski, O.V.Tikhonova. Laser-induced orientation of molecules accompanied by suppressed dissociation. Int. Conf. on Quantum Electronics (IQEC), 2002, Technical Digest, P.194, Moscow
10. M.S.Molodenski, O.V.Tikhonova. Localization and alignment of the nuclear wave packet during rotational dynamics in a strong laser field. XI Laser Phys. Workshop, Bratislava, 2002, P.82
11. M.S.Molodenski, O.V.Tikhonova Rotational dynamics in the strong laser field: Comparative analysis of the classical and quantum pictures. XII Int. Laser Phys. Workshop, Hamburg, p.163, (2003)
12. Molodenskiy M.S., Tikhonova O.V. Density matrix approach to the problem of rotational dynamics of diatomic molecules in a strong laser field XIII Int. Laser Phys. Workshop, Trieste, Italy, 12-16.07.2004, Book of abstracts, p.152
13. M.S.Molodenskiy, O.V.Tikhonova Rotational dynamics of molecular ensemble in a strong laser field. XV Laser Physics Workshop, Lausanne, Switzerland, 24-28.07.2006, P.125

Подписано в печать 20.04.2007
Формат 60x88 1/16. Объем 1.25 п.л.
Тираж 100 экз. Заказ № 654
Отпечатано в ООО «Соцветие красок»
119992 г.Москва, Ленинские горы, д.1
Главное здание МГУ, к. А-102