

ОТЗЫВ

официального оппонента о диссертации В.Ю. Харина
«Взаимодействие интенсивных ультракоротких низкочастотных лазерных
импульсов с двухатомными гетероядерными молекулами»,
представленной на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук
по специальности 01.04.05 – оптика

Диссертационная работа В.Ю. Харина посвящена теоретическому исследованию эффектов, возникающих при взаимодействии ядерной подсистемы гетероядерных молекул с полем интенсивных фемтосекундных лазерных импульсов инфракрасного диапазона длин волн. В настоящее время теоретические и экспериментальные исследования взаимодействия молекул с лазерными полями составляют обширный и быстро развивающийся раздел физики, в котором сочетаются фундаментальные проблемы и приложения. Особый интерес вызывают эффекты, возникающие при воздействии на молекулы лазерных импульсов фемто- и субфемтосекундной длительности, поскольку в этом случае длительность воздействия может быть значительно меньше времен, характеризующих динамику молекулы, что, в частности, создает возможности для лазерного управления протеканием химических реакций. Лазерный контроль химических свойств веществ и химических реакций составляет предмет фемтохимии – новой области исследований, развивающейся в течение двух последних десятилетий на стыке физической химии и лазерной физики. В диссертационной работе исследуется влияние лазерного поля на диссоциацию молекул и на возбуждение дипольных колебаний в них. Оба эти процесса относятся к числу интенсивно изучаемых в настоящее время; посвященная им литература чрезвычайно обширна. Несмотря на многолетние усилия исследователей, значительное число вопросов, касающихся диссоциации молекул под действием лазерного

излучения, в настоящее время остаются непроясненными, что связано, в первую очередь, со сложностью и многообразием отклика молекулы – существенно нелинейной системы, состоящей из нескольких частиц – на внешнее воздействие. К числу таких давно поставленных, но не решенных проблем относится и возможность наблюдения эффекта стабилизации молекул относительно диссоциации в лазерном поле, рассмотренного в диссертации. Таким образом, актуальность темы исследования не вызывает сомнений.

Диссертация В.Ю. Харина состоит из введения, обзора литературы, трех основных глав, заключения и списка литературы, содержащего 110 наименований. Общий объем диссертации составляет 104 страницы.

Во Введении дано общее описание современного состояния физики взаимодействия молекул с интенсивными лазерными импульсами. Кратко обозначены некоторые проблемы, привлекающие интерес исследователей в настоящее время. Сформулирована цель диссертационной работы, обоснованы актуальность и новизна предлагаемого исследования. Перечислены полученные результаты, приводится список выносимых на защиту положений.

Первая глава представляет собой обзор литературы по ультракоротким лазерным импульсам, включая недавно полученные в эксперименте «полуцикловые» импульсы, и физике молекул в сильных лазерных полях. Здесь обсуждается, в частности, явление интерференционной стабилизации, теоретически предсказанное для атомов более 20 лет назад. Исследование интерференционной стабилизации при диссоциации молекул является одной из основных целей диссертационной работы. Изложены основные результаты, относящиеся к исследованию эффекта выстраивания молекул в лазерном поле.

Вторая глава посвящена исследованию эффекта интерференционной стабилизации гетероядерных молекул относительно диссоциации в интенсивном низкочастотном лазерном поле. В приближении Борна-

Оппенгеймера и в дипольном приближении по взаимодействию с полем сформулированы уравнение Шредингера для ядерной подсистемы молекулы и разностная схема его численного решения. В приближении заданного электронного терма для молекулы, приготовленной в возбужденном колебательном состоянии, вычислена вероятность диссоциации как функция несущей частоты и интенсивности лазерного импульса, а также времени. Рассматривались одномерная и трехмерная системы. В случае однофотонной связи с континуумом результаты расчета демонстрируют явное присутствие эффекта стабилизации. Анализ перезаселения связанных состояний позволяет сделать вывод об интерференционном механизме стабилизации. Качественно похожие результаты получены также для случая многофотонной связи с континуумом. Сформулированы условия, при которых возможно наблюдение стабилизации и продемонстрировано, что эти условия могут быть реализованы для молекулы $\text{I}Br$ при длине волны излучения около 10 мкм и интенсивности порядка 10^{11} Вт/см^2 . В трехмерном случае проанализированы колебательно-вращательные переходы и показан их существенный вклад в эффект стабилизации. Исследовано взаимодействие молекулы с последовательностью из двух импульсов и показано, что степень диссоциации вторым импульсом периодически зависит от времени его задержки относительно первого. Анализ структуры волнового пакета, создаваемого первым импульсом, позволяет интерпретировать наблюдаемую зависимость в терминах *quantum revival*. Предложена схема эксперимента по наблюдению стабилизации гетероядерных молекул относительно фотодиссоциации.

В третьей главе исследована динамика молекулы в поле предельно короткого – полуволнового – лазерного импульса. Возможность получения лазерных импульсов с неравным нулю интегралом по времени от электрического поля обосновывается ссылками на соответствующие эксперименты (работы [100] и [107] в списке литературы). Развита аналитическая модель, основанная на приближении такого импульса дельта-

функцией Дирака, что соответствует использованию хорошо известного в квантовой механике метода встряски. С использованием этой модели рассчитаны заселенности колебательно-вращательных состояний молекулы после действия ультракороткого импульса. Сформулированы условия, при которых для описания возбуждения молекулы таким импульсом можно ограничиться моделью жесткого ротатора. Исследована диссоциация молекулы в таком режиме и показано, что она может осуществляться как за счет заселения высоковозбужденных вращательных состояний, так и через колебательные состояния. Также в приближении дельта-импульсов исследована диссоциация в pump-probe схеме. Основным результатом этой главы является демонстрация возможности управления свойствами колебательно-вращательного волнового пакета при возбуждении молекулы последовательностью из двух ультракоротких импульсов.

В последней главе диссертации рассмотрен поляризационный отклик молекулы на воздействие интенсивного лазерного импульса. Исследованы случаи как относительно длительного – содержащего более десяти периодов, так и ультракороткого импульсов. Вычислена степень выстраивания молекулы после действия импульса. Наиболее важным результатом, полученным в этой главе, является наблюдение низкочастотных компонент в поляризационном отклике молекулы. Если интенсивность таких линий в спектре дипольного момента достаточно велика, обнаруженный эффект может быть использован для генерации молекулярной средой когерентных импульсов терагерцового диапазона частот. В настоящее время исследование методов получения терагерцовых импульсов высокой интенсивности является одной из быстро развивающихся областей прикладной лазерной физики, поэтому полученные в четвертой главе результаты могут представлять интерес для приложений.

При изучении диссертационной работы у меня возникло несколько вопросов и замечаний:

1. Используемая в диссертационной работе модель молекулы основана на приближении заданного электронного терма. Это означает, что при взаимодействии молекулы или молекулярного иона с лазерным импульсом вероятность возбуждения электронной подсистемы или ионизации считается пренебрежимо малой. Насколько реалистичным является такое приближение? Если да, то каковы условия, ограничивающие его применимость?
2. Основным эффектом, рассмотренным в работе, является стабилизация молекулы относительно диссоциации. При этом не вполне ясно, какое определение стабилизации использует автор. Казалось бы, стабилизацией уместно называть ситуацию, когда вероятность процесса – в данном случае диссоциации – падает с ростом интенсивности лазерного поля при фиксированных остальных параметрах задачи. Именно это наблюдается в случае однофотонной связи с континуумом, как показано, например, на Рис.13. Однако при многофотонной связи с континуумом (Рис.17) уменьшения вероятности с ростом интенсивности уже не наблюдается – видно только отклонение от степенного закона, отвечающего наинизшему порядку теории возмущений. В разделе 2.3.2 автор характеризует явление стабилизации следующим образом: «В численном эксперименте стабилизация проявляется, в первую очередь, в существенном отклонении вероятности диссоциации как функции интенсивности лазерного воздействия от зависимости, предсказываемой теорией возмущений». Но при таком определении стабилизацией можно назвать практически любую зависимость вероятности нелинейной ионизации от интенсивности, характерную для непертурбативного режима. В частности в туннельном режиме вероятность ионизации растет с увеличением интенсивности существенно медленнее, чем в соответствующем наинизшем порядке теории возмущений, но ни о какой стабилизации в этом случае

говорить не принято. Поэтому с выводом о том, что результат, представленный на Рис. 17, свидетельствует о наличии стабилизации, сложно согласиться.

3. В разделе 2.4.1 обсуждается диссоциация молекулы последовательностью из двух лазерных импульсов. При этом утверждается, что «...диссоциация за второй импульс в среднем оказывается существенно ниже, чем диссоциация за первый импульс». Изучение графиков, приведенных на Рис.25, показывает, что различие в вероятностях диссоциации первым и вторым импульсами не так уж велико и составляет, с учетом истощения после диссоциации первым, примерно 15%. Скорее можно утверждать, что минимальная величина диссоциации вторым импульсом (при задержке около 250фс) мала относительно диссоциации за первый импульс.
4. В диссертации обсуждаются, со ссылкой на экспериментальные работы [100] и [107], «полуцикловые» импульсы, для которых интеграл от электрического поля по времени не равен нулю. Можно ли утверждать, что под воздействием такого импульса, распространяющегося в вакууме, первоначально покоящийся электрон получит ненулевой импульс? Если да, то каков в этом случае физический механизм передачи импульса электрону?
5. Наконец, следует отметить, что текст диссертационной работы содержит небрежно сформулированные и поэтому мало понятные читателю утверждения. Например, на странице 48 читаем: «...происходит формирование колебательного пакета состояний, расположенных по амплитуде...». Другой пример: на стр.84 утверждается «Сама зависимость напряженности не пропорциональна полю даже с точки зрения огибающей...». Напряженность чего имеется здесь в виду? Возможно, речь идет о величине дипольного момента?

Сформулированные выше вопросы и замечания не снижают общей высокой оценки представленной работы. Диссертационная работа В.Ю. Харина представляет собой законченное исследование, результаты которого вносят существенный вклад в развитие теории диссоциации молекул под действием интенсивных лазерных импульсов фемтосекундной длительности, включая ультракороткие импульсы. Основные результаты диссертации представлены на нескольких международных конференциях и опубликованы в виде 5 статей в физических журналах из перечня ВАК РФ. Автореферат полно отражает содержание диссертации.

Считаю, что за теоретические исследования динамики гетероядерных молекул в поле ультракоротких лазерных импульсов, в том числе за исследования эффекта стабилизации молекул относительно диссоциации, В.Ю. Харин заслуживает присуждения ему ученой степени кандидата физико-математических наук по специальности 01.04.05 – оптика.

Официальный оппонент

доктор физ.-мат. наук,

профессор НИЯУ МИФИ

 С.В. Попруженко

Подпи
Заместите
документ:
Н



