

КОМПЬЮТЕРНОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ И ОПТИМИЗАЦИЯ ДИНАМИКИ
ФОТОФРАГМЕНТАЦИИ ИОНОВ В ИНТЕРФЕРАЦИОННОМ ПОЛЕ
ФЕМТОСЕКУНДНЫХ ЛАЗЕРНЫХ ИМПУЛЬСОВ

М.В. Корольков

Институт физики им. Б.И. Степанова НАН Беларуси, Минск

E-mail: Korolkovmv@Yahoo.com

В настоящее время исследования возможности управления молекулярными процессами, разрывами и формированием химических связей, с помощью ультракоротких лазерных импульсов пико- и фемтосекундной длительности сформировались в новое направление – *фемтохимия* [1]. Развитие этих исследований позволяет глубже понять основы молекулярных процессов, обеспечить более эффективный синтез химических веществ, избавиться от нежелательных продуктов реакций, организовать новые пути протекания реакций и сформировать соединения, которые не осуществимы традиционными методами [1–3].

В данной работе представлены результаты дальнейших исследований возможностей управления процессами фотофрагментации и соотношением продуктов распада с помощью последовательности мощных фемтосекундных импульсов инфракрасного диапазона. Акценты исследования поставлены на анализе пространственно-временных процессов фотофрагментации ионов и перепутывании электронной и ядерной динамик. Такое перепутывание возникает как результат одновременно происходящих электронных переходов между основным и нижними возбужденными электронными состояниями, сопровождающихся распространением колебательных волновых пакетов в каждом из электронных состояний. Отметим, что электронные переходы при этом происходят одновременно в широком диапазоне меж ядерных расстояний.

На основе квантового описания процессов фотофрагментации ионов путем численного решения системы уравнений Шредингера [4–6] исследованы возможности управления продуктами распада и эффективностью фотофрагментации в случае воздействия на ион DCI^+ интерференционного поля $E_L(t)$ двух сдвинутых по времени УКИ с длительностями импульсов t_{pk} , центральными частотами ω_k и несущими фазами ϕ_k [5, 7]. Оба импульса линейно поляризованы параллельно оси иона. Волновые функции $\Psi_j(r, t)$ основного и двух возбужденных электронных состояний иона ($j = X^2\Pi, 2^2\Pi, 3^2\Pi$ [4]) представлены на эквидистантной пространственной сетке $r = \{r_1, r_2, \dots, r_N\}$, $r_1 = 1.5a_0$, $\Delta r = r_i - r_{i+1} = 0.02a_0$, число точек $N = 2^k$ варьируется в области значений $4096 < N < 32\,768$, где r расстояние между D и Cl. В типичных случаях использовался шаг по

времени ~ 0.01 фс. В качестве начального состояния выбрано основное колебательное состояние в основном электронном состоянии. Продукты, формируемые в возбужденных электронных состояниях в каждый момент времени, определялись на расстоянии диссоциации ($r_o = 10 a_o$) иона $|\Psi_j(r > r_o, t_o)|^2$. В основном электронном состоянии $X^2\Pi$ определялись населенности всех колебательных состояний путем проекции $\Psi_1(r, t)$ на собственные колебательные состояния $\chi_v(r)$ и продиссоциировавшая часть, как разность заселенности состояния $X^2\Pi$ и его колебательных уровней.

Оптимизация процесса фотофрагментации основана на том, что формирующееся интерференционное поле двух УКИ зависит от задержки между импульсами и несущей фазы каждого из них. Их совместное влияние проявляется в формировании процесса из переходного состояния колебательного волнового пакета, сформированного первым УКИ. К началу второго УКИ этот волновой пакет, движущийся в определенной пространственной зоне и локализованный в окрестности энергий нескольких колебательных состояний, определяет новые начальные условия в момент начала действия второго импульса. Это приводит к существенной зависимости молекулярной динамики от времени задержки второго импульса и его несущей фазы и заметно усложняет колебательную динамику волновых пакетов в каждом из электронных состояний, индуцируя переходы между ними в широком диапазоне координат от почти равновесного состояния ядер до состояния практически полной диссоциации [6–8]. При больших задержках между импульсами наблюдался эффект формирования ионов в противофазе [6].

Нами продемонстрировано, что применение двух сдвинутых по времени когерентных лазерных импульсов является мощным инструментом, обеспечивающим дополнительные возможности управления процессами возбуждения и фотофрагментации, приводящим к перемешиванию процессов электронной и ядерной динамики [6, 7] и позволяет эффективно управлять процессом фотоиндуцированной диссоциации и реализовывать оптимальную динамику фотофрагментации.

1. Zewail A.H. // J. Phys. Chem. 2000. V. 104, P. 5660–5694.
2. Саркисо О.М., Уманский С.Я. // Успехи химии. 2001. Т.70, №6. С. 515–385.
3. Rice, S., Zhao M. Optimal Control of Molecular Dynamics. N. Y.: Wiley, 2000. 437 p.
4. Korolkov M.V., Weitzel K-M. // J. Chem. Phys. 2005. V.123, P. 164308.
5. Korolkov M.V., Weitzel K-M. // Chem. Phys. 2007. V. 338, P. 277.
6. Korolkov M.V., Weitzel K-M. // Chem. Phys. Lett. 2010. V. 487, P. 209.
7. Korolkov M.V., Weitzel K-M. // Z. Phys. Chem, 2011. V. 225, P. 1073–1088.
8. Su Q., Han Y., Cong S. // J. Chem. Phys. 2013. V. 138, P. 024304.