

Радиационные процессы в бихроматическом лазерном поле с кратными частотами

В.А.Астапенко

Дан обзор экспериментальных и теоретических работ по радиационным процессам, возникающим при воздействии бихроматического (двухчастотного) лазерного излучения на атомы, молекулы и твердые тела. Рассмотрено фото-возбуждение вещества на переходах различных типов: связанно-связанных, связанно-свободных и свободно-свободных. Особое внимание уделено возможности когерентного контроля основных характеристик радиационных явлений за счет изменения относительной фазы монохроматических компонент излучения. Показано, что такого рода контроль открывает новые возможности в управлении светоиндуцированными процессами.

Ключевые слова: бихроматическое излучение, когерентный фазовый контроль, квантовая интерференция.

Содержание

1. Введение	1131
2. Атомы и ионы в бихроматическом лазерном поле	1132
2.1. Когерентный фазовый контроль на связанно-связанных переходах	
2.2. Фотоионизация атомов и фоторазрушение отрицательных ионов под действием бихроматического излучения	
2.3. Фазовый контроль элементарных процессов с участием лазерного поля	
3. Молекулярные процессы в бихроматическом лазерном поле.	1139
3.1. Фотодиссоциация и фотоионизация молекул под действием бихроматического излучения	
3.2. Когерентный фазовый контроль колебательного-вращательного возбуждения молекул	
4. Когерентный контроль фотоэффекта в бихроматическом поле	1142
4.1. Внешний фотоэффект в бихроматическом лазерном поле	
4.2. Внутренний фотоэффект при бихроматическом возбуждении твердых тел	
4.3. Бихроматический контроль спина носителей тока в полупроводниках	
5. Заключение.	1146
6. Литература.	1147

1. Введение

Настоящий обзор посвящен когерентным процессам, которые происходят при воздействии на вещество бихроматического излучения, представляющего собой суперпозицию лазерного поля на основной частоте ω и его n -й гармоники. Выражение для вектора электрического поля такого излучения имеет вид

$$F(t) = e_1 F_{01} \cos(\omega t + \varphi_1) + e_n F_{0n} \cos(\omega_n t + \varphi_n), \quad (1)$$

где $\omega_n = n\omega$ – частота n -й гармоники лазерного излучения (n – натуральное число, большее единицы); $F_{01,0n}$ – амплитуды монохроматических компонент; $e_{1,n}$ – единичные векторы поляризации электрического поля; $\varphi_{1,n}$ – начальные фазы.

Физической основой рассматриваемых здесь светоиндуцированных процессов является квантовая интерференция амплитуд переходов системы из одного состоя-

ния в другое под действием бихроматического лазерного поля (1). Происхождение этой интерференции проще всего уяснить на примере взаимодействия квантовой системы с электромагнитным излучением умеренной интенсивности, когда справедливо описание процесса в рамках теории возмущений. Предположим, что квантовая система может перейти из начального состояния $|i\rangle$ в конечное состояние $|f\rangle$ по двум каналам, связанным с воздействием на нее монохроматических компонент поля (1). Этим каналам соответствуют квантово-механические амплитуды A_1 и A_2 (рис.1), обусловленные поглощением (или излучением) некоторого числа фотонов поля на основной частоте $m_1^{(1)}$ и его n -й гармоники $m_1^{(n)}$.

При этом должен выполняться закон сохранения энергии, выражаемый следующими равенствами:

$$m_1^{(1)} \hbar\omega + m_1^{(n)} \hbar\omega_n = E_f - E_i \quad (2)$$

– для первого канала и

$$m_2^{(1)} \hbar\omega + m_2^{(n)} \hbar\omega_n = E_f - E_i \quad (3)$$

– для второго канала, где $m_1^{(1)} \neq m_2^{(1)}$, $m_1^{(n)} \neq m_2^{(n)}$ ($m_{1,2}^{(1),(n)}$ – целые числа, которые могут быть и отрицательными, включая нуль); $E_{i,f}$ – энергии начального и конечного

В.А.Астапенко. Московский физико-технический институт (государственный университет), Россия, Московская обл., 141700 Долгопрудный, Институтский пер., 9; e-mail: astval@mail.ru

Поступила в редакцию 16 марта 2006 г., после доработки – 29 мая 2006 г.

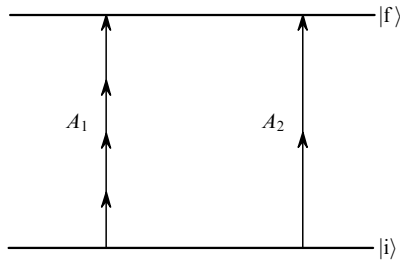


Рис. 1. Два канала перехода системы из состояния $|i\rangle$ в состояние $|f\rangle$ с амплитудами A_1 и A_2 , возбуждаемых бихроматическим излучением с кратными частотами.

состояний. В соответствии с общими принципами квантовой механики полная вероятность рассматриваемого перехода пропорциональна квадрату модуля суммарной амплитуды процесса:

$$W_{\text{tot}} \propto |A_1 + A_2|^2 = |A_1|^2 + |A_2|^2 + 2|A_1||A_2| \cos(\varphi_n - n\varphi_1 + \Delta\varphi_1), \quad (4)$$

где $\Delta\varphi_1$ – внутренний фазовый сдвиг. Первое слагаемое в правой части равенства (4) описывает вероятность перехода по первому каналу, второе – вероятность перехода по второму каналу, а третье – их квантовую интерференцию. Существенно, что интерференционный член в выражении для полной вероятности процесса (4) зависит от комбинации начальных фаз монохроматических компонент поля (1): $\Delta\varphi = \varphi_n - n\varphi_1$ (которую мы в дальнейшем будем называть бихроматической или относительной фазой), так что, изменяя $\Delta\varphi$ можно изменять вероятность перехода $|i\rangle \rightarrow |f\rangle$. Такое управление вероятностью фотопроцесса называется когерентным фазовым контролем в бихроматическом поле излучения.

В последнее время широко исследуются когерентные процессы в бихроматических полях другого типа, когда частоты монохроматических компонент не являются кратными, а напротив, близки по величине. К этому кругу явлений относится, например, когерентное пленение населенностей и связанная с ним электромагнитно-индуцированная прозрачность. Эффекты такого рода и рассматриваемый здесь когерентный контроль в поле с кратными частотами имеют родственную природу и свои отличительные черты.

Остановимся здесь вкратце на первых работах по радиационным процессам в бихроматическом лазерном поле с кратными частотами, выполненных в нашей стране на первоначальном этапе исследований, когда еще не была осознана связь между различными группами процессов данного типа.

Впервые идея когерентного контроля была высказана в работе отечественных ученых А.М.Афанасьева и Э.А.Манькина [1], посвященной возможности «просветления» вещества при прохождении через него суперпозиции электромагнитных волн в условиях многоквантового резонанса. С этим эффектом авторы статьи [1] столкнулись при рассмотрении генерации третьей гармоники лазерного излучения в случае, когда имеет место резонанс на удвоенной частоте: $2\omega = \omega_0$, где ω_0 – собственная частота среды распространения. В цитируемой работе подчеркивалось, что исследуемое «просветление» среды возникает из-за взаимной компенсации квантово-механических амплитуд каналов, а не в результате выравнивания населен-

ностей верхнего и нижнего уровней, как в эффекте насыщения.

Одна из форм когерентного фазового контроля бихроматического поля – когерентный фотогальванический эффект, предсказанный в [2]. Он рассчитывался в работах Э.М.Баскина и М.В.Энтина [3, 4] для случая поглощения излучения на свободных носителях и в области примесно-зонных переходов в полупроводниках. Данный эффект представляет собой возникновение стационарного тока под действием суперпозиции когерентных электромагнитных волн с кратными частотами. В отличие от объемного фотогальванического эффекта когерентный эффект возможен и в центрально-симметричном кристалле, и в изотропной среде. Характерной особенностью этого эффекта является зависимость возникающего фототока от бихроматической фазы $\Delta\varphi$.

В работе Е.М.Дианова с соавторами [5] когерентный фотогальванический эффект рассматривался в качестве механизма фотоиндуцированной генерации второй гармоники в оптических волокнах, в которых, как известно, до оптического воздействия отсутствует нелинейность второго порядка. В соответствии с экспериментальными данными [6] после длительного облучения стекловолокна лазерным излучением в нем наводится квадратичная оптическая восприимчивость $\chi^{(2)}$, и генерация второй гармоники становится возможной. В статье [5] было высказано предположение, что $\chi^{(2)}$ индуцируется электрическим полем, возникающим в результате когерентного фотогальванического эффекта. Предложенный механизм фотоиндуцированной генерации второй гармоники удовлетворительно объяснял экспериментальные результаты, казавшиеся противоречивыми при использовании других моделей.

Одной из первых экспериментальных работ, с которых началось систематическое изучение фотопроцессов в бихроматическом поле с кратными частотами, является работа Б.Я.Зельдовича и А.Н.Чудинова [7]. В эксперименте [7] измерялся фототок с поверхности катода ФЭУ, возникающий в результате воздействия излучения на основной частоте и второй гармоники. В этом случае имела место квантовая интерференция амплитуд одноквантового и двухквантового фотоэффектов. Бихроматическая разность фаз $\Delta\varphi = \varphi_2 - 2\varphi_1$ изменялась за счет поворота плоскопараллельной стеклянной пластинки. Глубина фазовой модуляции фототока составила 10 %, что убедительно продемонстрировало наличие квантовой интерференции при внешнем фотоэффекте. Развернутое изложение данного вопроса содержится в статье [8].

Работы по когерентному контролю радиационных процессов в бихроматическом лазерном поле можно разбить на три группы: фазовый контроль атомных процессов, бихроматический контроль молекулярной динамики и когерентный контроль фотоэффекта с поверхности и в объеме твердых тел. Анализ экспериментальных и теоретических работ по этим трем направлениям исследований является предметом настоящего обзора.

2. Атомы и ионы в бихроматическом лазерном поле

2.1. Когерентный фазовый контроль на связанно-связанных переходах

При возбуждении связанно-связанных переходов в атомах под действием бихроматического излучения с крат-

ными частотами возможность квантовой интерференции амплитуд каналов A_1 и A_2 существенно ограничена дипольными правилами отбора. Действительно, четность числа фотонов в каждом канале должна быть одинаковой, в противном случае одна из амплитуд процесса равняется нулю вследствие правила отбора по четности. Таким образом, обсуждаемая интерференция отсутствует, например, при возбуждении невозмущенного атома бихроматическим излучением с отношением частот 1 : 2. В случае бихроматического поля, состоящего из излучения на основной частоте и его третьей гармоники, когерентный фазовый контроль возбуждения атома в дискретном спектре возможен. Так, если $3\hbar\omega = E_f - E_i$, имеет место квантовая интерференция однофотонного поглощения третьей гармоники и трехфотонного поглощения излучения на основной частоте. Такая ситуация возникает, например, при многофотонной ионизации атомов и наличии промежуточного резонансного состояния [9], когда индуцируемая третья гармоника и излучение на основной частоте вызывают деструктивную интерференцию при возбуждении резонансного уровня [10]. В результате возбуждение резонансного уровня подавляется. В описанном случае генерация третьей гармоники и фотоиндуцированный процесс происходят в одном объеме, так что невозможно внешним образом контролировать разность фаз между монохроматическими компонентами излучения. Напротив, сдвиг фазы генерируемой третьей гармоники по отношению к излучению на основной частоте фиксирован и составляет 180° , чем и обуславливается деструктивная интерференция при возбуждении резонансного уровня.

Впервые когерентный контроль бихроматического возбуждения атома на связанно-связанном переходе при внешнем изменении относительной фазы наблюдался в работе [11]. Возбуждался переход $6s\ ^1S_0 \rightarrow 6p\ ^1P_1$ в атоме ртути под действием излучения на основной частоте ($\lambda_1 = 554$ нм) и его третьей гармоники. В этом случае имела место квантовая интерференция амплитуды однофотонного поглощения на частоте третьей гармоники и амплитуды трехфотонного поглощения излучения на основной частоте, т.е. схема фазового контроля «1 + 3». Выражение для полной вероятности бихроматического возбуждения атома с учетом двух каналов процесса, полученное в рамках теории возмущений, имеет вид

$$W_{\text{tot}} = \frac{2\pi}{\hbar^2} \left| \mu F_{\text{uv}} e^{i\varphi_3} + \mu^{(3)} (F_{\text{vis}} e^{i\varphi_1})^3 \right|^2 g(\omega_0 - 3\omega), \quad (5)$$

где μ и $\mu^{(3)}$ – электрические дипольные моменты одно- и трехфотонного переходов; F_{vis} и F_{uv} – напряженности электрического поля излучения на основной частоте и его третьей гармоники; $g(\omega_0 - 3\omega)$ – функция формы спектральной линии. Как видно из формулы (5), после возведения в квадрат модуля в правой части равенства возникает интерференционный член, содержащий множитель $\cos(\varphi_3 - 3\varphi_1)$, который и описывает фазовую зависимость вероятности процесса.

В эксперименте [11] зависимость полной скорости возбуждения перехода $6s\ ^1S_0 \rightarrow 6p\ ^1P_1$ от бихроматической фазы $\Delta\varphi = \varphi_3 - 3\varphi_1$ регистрировалась по сигналу фототока, возникающего в результате двухфотонной ионизации состояния $6p\ ^1P_1$ атома ртути излучением на основной частоте. Энергия импульса излучения на основной частоте составляла 4.5 мДж при длительности 15 нс.

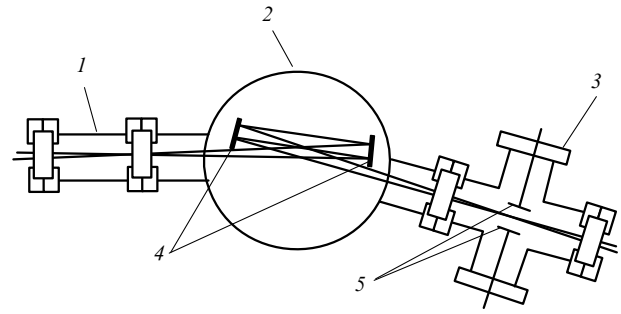


Рис.2. Схема экспериментальной установки [11]: 1 – камера с парами ртути при высоком давлении; 2 – камера с аргоном при переменном давлении; 3 – регистрационная камера с парами ртути при низком давлении; 4 – фокусирующие сферические зеркала с алюминиевым покрытием; 5 – коллекторные пластины из платины.

Третья гармоника генерировалась сфокусированным излучением на основной частоте в камере 1 (рис.2) с парами ртути при относительно высоком давлении (100 мТор). Бихроматическая фаза варьировалась за счет пропуска излучения на основной частоте и его третьей гармоники через кювету 2 с аргоном, давление которого изменялось в диапазоне 0–38 Тор, в соответствии с равенством

$$\Delta\varphi = \frac{6\pi l \Delta\rho}{\lambda_1} [n(\lambda_1) - n(\lambda_3)], \quad (6)$$

где l – длина пути лазерного луча в кювете с аргоном; $\Delta\rho$ – изменение плотности аргона; $n(\lambda_j)$ – показатель преломления аргона на длине волны λ_j . Сигнал фототока возникал в результате фокусировки зеркалами 4 бихроматического излучения с контролируемой разностью фаз $\Delta\varphi = \varphi_3 - 3\varphi_1$ во второй камере с парами ртути 3 при низком давлении (2–3 мТор). Низкое давление в регистрационной камере было необходимо, чтобы уменьшить вклад в процесс генерируемой в ней третьей гармоники. Фототок регистрировался с помощью коллектора, представлявшего собой пару платиновых пластин 5, на которые подавалось напряжение смещения. Зарегистрированная в эксперименте [11] глубина фазовой модуляции фототока, характеризующая эффективность когерентного фазового контроля, составила 15 % при максимально возможном расчетном значении 30 % (рис.3).

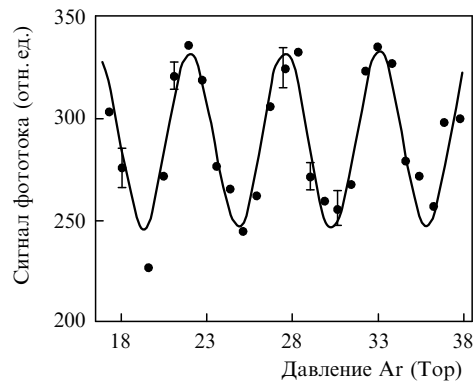


Рис.3. Сигнал фототока, зарегистрированный в эксперименте [11] при бихроматическом возбуждении паров ртути, как функция давления аргона. Точки – экспериментальные данные, сплошная кривая – наилучшая аппроксимация.

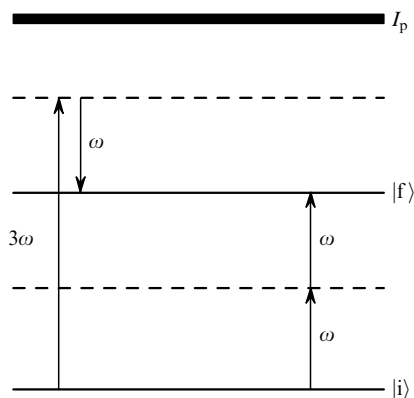


Рис.4. Схема когерентного контроля возбуждения атомных состояний за счет квантовой интерференции двухфотонных процессов (I_p – потенциал ионизации атома).

Иная схема возбуждения атомов в дискретном спектре использовалась для реализации когерентного контроля в статье [12]. Квантовая интерференция различных каналов процесса наблюдалась при возбуждении атомов криптона и ксенона из основного в возбужденное состояние ($5p[5/2]_2$ – в случае криптона и $4f[3/2]_2$ – в случае ксенона) за счет поглощения излучения на основной частоте и его третьей гармоники. Вероятность возбуждения регистрировалась по сигналу фототока, вызванного однофотонной ионизацией возбужденного состояния атома излучением на основной частоте. Фазовая зависимость процесса возникала в результате квантовой интерференции двух каналов возбуждения: четырехфотонного поглощения на основной частоте и поглощения одного фотона на основной частоте и одного фотона на частоте третьей гармоники. Таким образом, реализовывалась схема когерентного контроля «4 + 2». В этом случае благодаря высокой нелинейности процесса удалось получить большее значение коэффициента модуляции, чем в работе [11].

Когерентный контроль бихроматического возбуждения атомов по схеме «2 + 2» рассматривался в пионерской работе [1] в условиях двухфотонного резонанса при генерации третьей гармоники. В этом случае интерферируют амплитуда комбинационного рассеяния третьей гармоники, индуцированная излучением на основной частоте, и амплитуда двухфотонного поглощения кванта излучения на основной частоте (рис.4). Таким образом, имеет место квантовая интерференция процессов одной фотонности.

Расчет вероятности бихроматического фотовозбуждения щелочных атомов в результате квантовой интерференции двухфотонных процессов, типа рассмотренных в [1], сделан в работе [13] в рамках теории возмущений. Рассматривалось возбуждение перехода $ns \rightarrow (n+1)s$, где ns – основное состояние щелочного атома (n – главное квантовое число). Было показано, что оптимальное отношение интенсивностей третьей и первой гармоник ($\eta = I_3/I_1$), при котором глубина фазовой модуляции возбуждения максимальна, определяется равенством

$$\eta_{\text{opt}} = \left[\frac{c_{\text{if}}(\omega, -\omega)}{c_{\text{if}}(3\omega, \omega)} \right]^2, \quad (7)$$

где c_{if} – скалярная часть тензора рассеяния фотона на атоме с возбуждением последнего. Характерной чертой дан-

ной схемы фазового контроля является независимость оптимального отношения (7) от интенсивности монохроматических компонент излучения.

В подавляющем большинстве экспериментальных работ, посвященных фазовому контролю возбуждения атомов, эффект регистрировался по фототоку, для чего в случае связанно-связанных переходов требовалась ионизация возбужденного уровня. В статье [14] был предложен другой, люминесцентный способ регистрации фазового контроля при бихроматическом возбуждении атомов в дискретном спектре на основании схемы «2 + 2» (рис.4). В рамках этого метода фазовая зависимость вероятности возбуждения перехода $ns \rightarrow (n+1)s$ в щелочном атоме определяется по сигналу фотолюминесценции на переходе $(n+1)s \rightarrow nr$ или $nr \rightarrow ns$.

Выше рассматривалось бихроматическое возбуждение атомов в дискретном спектре. Представляет интерес исследовать особенности когерентного контроля при переходе атомного электрона из связанного в автоионизационное состояние. Такой эксперимент был поставлен в работе [15]. Наблюдался фазовый контроль возбуждения атома кальция в автоионизационное состояние $4p7s[1/2]_1^o$ за счет интерференции двух каналов: трехфотонного поглощения на основной частоте и однофотонного поглощения на частоте третьей гармоники (схема контроля «3 + 1»). В качестве накачки использовалось излучение перестраиваемого лазера на красителе с длиной волны 435 нм, длительностью импульса 10 нс, энергией в импульсе 5 мДж и шириной спектра 0.1 см^{-1} . Достигнутая глубина фазовой модуляции составляла примерно 43%. Авторы [15] отмечали, что их работа является первым шагом на пути к достижению управления спектральной формой автоионизационного резонанса с помощью вариации бихроматической фазы. Другой важный вывод, следующий из их эксперимента, состоит в демонстрации возможности фазового контроля без фокусировки лазерного излучения, что важно с точки зрения приложений, например для когерентного контроля фотохимических реакций.

В статье [16] был проанализирован новый способ когерентного фазового контроля возбуждения атома в дискретном спектре под действием бихроматического излучения с отношением частот 1 : 2, когда интерферируют амплитуды двухфотонного поглощения на основной частоте и однофотонного поглощения на частоте второй гармоники. Как отмечалось выше, в случае сферически-симметричной системы один из вышеуказанных каналов запрещен дипольными правилами отбора. Для преодоления данной трудности в работе [16] было предложено использовать постоянное однородное электрическое поле, перемешивающее состояния с различной четностью, так что фазовый контроль возбуждения оказывается возможным. Расчет был проведен в условиях применимости теории возмущений для взаимодействия электромагнитного поля с валентным электроном. Рассматривалось возбуждение $s \rightarrow s$ -перехода в атоме щелочного металла, когда в отсутствие постоянного электрического поля правилами отбора запрещен однофотонный процесс. Было показано, что условие равенства амплитуд одно- и двухфотонного поглощения, когда эффективность фазового контроля максимальна, дается равенством

$$\left(|\cos \chi| \sqrt{\eta r_{01}} \right)_{\text{opt}} = \left| \frac{c_{\text{if}}(\omega, -\omega)}{2c_{\text{if}}(2\omega, 0)} \right|, \quad (8)$$

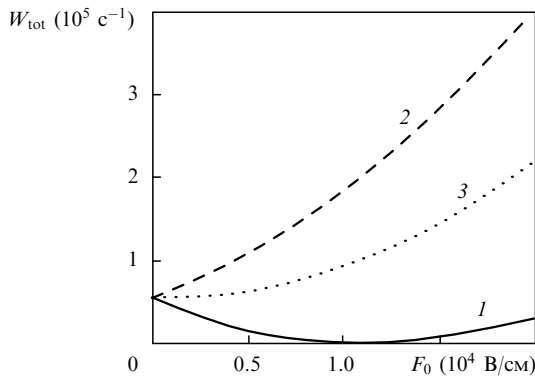


Рис.5. Вероятность W_{tot} возбуждения перехода $3s \rightarrow 4s$ в атоме натрия под действием бихроматического излучения с отношением частот $1:2$ в зависимости от напряженности F_0 постоянного электрического поля для бихроматической фазы $\Delta\varphi = \varphi_2 - 2\varphi_1 = \pi$ (1), 2π (2) и $\pi/2$ (3) при $I_1 = 10^4$ Вт/см², $\eta = I_2/I_1 = 100$, $\chi = 0$ [16].

где $r_{01} = F_0/F_1$ — отношение напряженности постоянного электрического поля к амплитуде электрического поля излучения на основной частоте; $\eta = I_2/I_1$ — отношение интенсивностей монохроматических компонент излучения; χ — угол между вектором напряженности постоянного электрического поля и вектором напряженности электрического поля излучения второй гармоники. В обсуждаемой статье было также показано, что для разности фаз монохроматических компонент излучения $\Delta\varphi = \pi$, соответствующей деструктивной межканальной интерференции, существует такое значение напряженности постоянного электрического поля, при котором возбуждаемый атомный переход «просветляется» (рис.5). Из рис.5 видно, что «просветляющая» напряженность электрического поля в рассматриваемом случае весьма высока — 10^4 В/см. На этом же рисунке представлены зависимости вероятности процесса от напряженности F_0 для случая конструктивной интерференции при $\Delta\varphi = 2\pi$ (кривая 2) и в отсутствие межканальной интерференции при $\Delta\varphi = \pi/2$ (кривая 3).

Предложенный в работе [16] метод когерентного контроля бихроматического возбуждения атомов был обобщен в статье [17] на случай, когда запрет по четности для однофотонного поглощения снимается наложением переменного электрического поля. При этом основные черты явления сохраняются, если частота электрического поля Ω удовлетворяет неравенству $\Omega \ll A_T$, где A_T — вероятность (в единицу времени) распада возбужденного состояния. В [17] была проанализирована возникающая в результате такого бихроматического возбуждения люминесценция, модуляция которой во времени определяется напряженностью электрического поля и относительной фазой бихроматического излучения.

2.2. Фотоионизация атомов и фоторазрушение отрицательных ионов под действием бихроматического излучения

Когерентный контроль атомных процессов при бихроматическом возбуждении связанно-свободных переходов имеет свои специфические черты, обусловленные вырождением конечного состояния системы по направлению распространения импульса ионизированного электрона. Это вырождение приводит к возможности фазового контроля углового распределения фототока. При этом симметрия диаграммы направленности определяется числом фотонов в каждом канале, принимающих

участие в процессе. Если эти числа разной четности, то угловое распределение фотоэлектронов, вообще говоря, асимметрично, причем степень асимметрии определяется бихроматической фазой излучения. В случае одинаковой четности чисел фотонов угловая диаграмма фотоионизации симметрична. Таким образом, в отличие от ситуации, рассматривавшейся в п.2.1, когерентный контроль фотоионизации атомов возможен под действием бихроматического излучения, отношение частот которого дается числами разной четности.

Первые работы по бихроматической фотоионизации атомов были посвящены исследованию данного явления в сильном лазерном поле с интенсивностью $I \geq 10^{13}$ Вт/см². При таких интенсивностях процесс имеет надпороговый характер, т. е. наиболее вероятное число поглощенных фотонов превышает пороговое значение. В результате появляется дополнительный фазочувствительный параметр — форма фотоэлектронного спектра. Когерентный контроль такого рода наблюдался в работе [18] при ионизации атома криптона когерентной смесью излучения неодимового лазера на $\lambda_1 = 1064$ нм и его второй гармоники. Регистрировался спектр фотоэлектронов в режиме надпороговой ионизации при различных значениях бихроматической фазы. Оказалось, что отношение интенсивности второго фотоэлектронного пика (при энергии 2 эВ) к интенсивности первого (энергия 1 эВ) периодически зависит от бихроматической фазы с глубокой модуляцией $\sim 45\%$, при этом энергия пиков остается неизменной. В [18] отмечалось, что отношение величин фотоэлектронных максимумов слабо зависит от флуктуаций интенсивности лазерного излучения, так что указанная модуляция в основном определяется соотношением фаз монохроматических компонент излучения.

Экспериментальная демонстрация [18] возможности когерентного контроля бихроматической ионизации атома в сильном лазерном поле стимулировала теоретическое исследование данного вопроса. Соответствующий анализ на примере атома водорода дан в статье [19] для случая одинаковых интенсивностей монохроматических компонент излучения с отношением частот $1:2$. В рамках подхода, основанного на численном решении временного уравнения Шредингера, рассчитывались скорости ионизации, угловое распределение фотоэлектронов и спектры надпороговой ионизации для различных значений бихроматической фазы и интенсивности излучения. Кроме того, исследовалось изменение фазовой зависимости указанных параметров при переходе от длины волны излучения на основной частоте $\lambda_1 = 1064$ нм к более коротким длинам волн ($\lambda_1 = 532$ и 355 нм). Было показано, что в длинноволновом случае ($\lambda_1 = 1064$ нм) имеет место режим туннельной фотоионизации, при котором вероятность процесса определяется пиковым значением напряженности электрического поля в бихроматическом излучении. В свою очередь, это пиковое значение зависит от относительной фазы, определяющей временную зависимость суммарного электрического поля.

Таким образом, качественное объяснение фазовых эффектов при туннельной ионизации атомов бихроматическим излучением в большей мере связано с интерференцией монохроматических составляющих поля, нежели с интерференцией квантово-механических амплитуд. Расчет [19] показал, что асимметрия верх–низ (при вертикальной ориентации вектора поляризации поля) в угловом распределении фотоэлектронов существенно зави-

сит от бихроматической фазы и возрастает с ростом интенсивности излучения. Результаты вычислений также подтвердили наблюдающуюся в эксперименте [18] фазовую зависимость формы надпорогового спектра фотоэлектронов. Сложная физическая картина бихроматической ионизации атома, проанализированная в работе [19], связана с высокой интенсивностью лазерного излучения, когда процесс не может быть описан в рамках теории возмущений. Для лазерных полей с относительно низкой интенсивностью ($I < 10^{10}$ Вт/см²), когда применима теория возмущений, ситуация упрощается, и когерентный контроль может быть описан в терминах интерференции квантово-механических амплитуд (см. Введение).

Эксперимент по фотоионизации атома натрия бихроматическим полем неодимового лазера с отношением частот 1 : 2 был осуществлен отечественными исследователями в работе [20]. Атом натрия предварительно возбуждался излучением лазера на красителе ($\lambda = 589$ нм) и лазера на центрах окраски LiF : F₂⁻ ($\lambda = 1140$ нм) через промежуточное 3p-состояние на 4s-уровень энергии, который затем ионизировался бихроматическим полем неодимового лазера. Фазовая зависимость бихроматической ионизации возникала в результате квантовой интерференции однофотонного поглощения второй гармоники и двухфотонного поглощения излучения на основной частоте. Измеренная в эксперименте [20] глубина фазовой модуляции вероятности ионизации атома в заданном направлении составила 15 %. Качественное объяснение полярной асимметрии, данное авторами статьи [20], основывалось на рассмотрении угловой зависимости волновой функции ионизированного электрона, которая дается когерентной суперпозицией s-, p- и d-волн. Данная суперпозиция возникает в результате возбуждения исходного s-состояния в ходе одно- и двухфотонного процессов и описывает асимметричное угловое распределение вероятности вылета атомного электрона.

Другое измерение асимметрии углового распределения фотоэлектронов, возникающей в результате квантовой интерференции связанно-свободных переходов, было осуществлено в работе [21] на примере ионизации атома рубидия бихроматическим излучением умеренной интенсивности. Использовались излучение лазера на красителе ($\lambda_1 = 560$ нм) с длительностью импульса 10 нс и его вторая гармоника. Оба лазерных луча с одинаковыми поляризациями пересекали пучок ионизируемых атомов рубидия под углом 108°. Сигнал фотоэлектронного тока снимался с четырех детекторов, регистрировавших электроны с векторами импульса, образующими углы $\Theta = 0, 45^\circ, 90^\circ$ и 180° с вектором поляризации излучения. Наибольшая глубина модуляции (около 50 %) была зафиксирована для углов наблюдения $\Theta = 0$ и 45° , причем соответствующие фазовые зависимости были сдвинуты относительно друг друга на π . Величина этого сдвига определяется сечениями возбуждения исходного состояния атома рубидия в ²S-, ²D_{5/2}- и ²D_{3/2}-состояния непрерывного спектра, а также относительными фазами их волновых функций. Данная связь может быть положена в основу метода определения параметров волновых функций непрерывного спектра по фазовым зависимостям углового распределения фототока при бихроматической ионизации атомов.

В работе [21] было дано простое теоретическое рассмотрение исследуемого вопроса, основанное на теории возмущений. Важным его выводом явилось утвержде-

ние, что при ионизации атома бихроматическим полем с отношением частот 1 : 2 фазовая модуляция вероятности процесса имеет место только для фиксированного угла вылета фотоэлектрона. Интегральная (по углу вылета электрона) вероятность фотоионизации от бихроматической фазы не зависит. Последнее обстоятельство следует из ортогональности волновых функций состояний непрерывного спектра, в которые возбуждается атомный электрон в результате одно- и двухфотонного поглощения.

Иная ситуация имеет место, если четность числа фотонов в каждом из каналов процесса одинакова. Тогда возможен когерентный контроль интегрального по углу вылета электронов фототока, но в то же время асимметрия углового распределения фотоэлектронов отсутствует. Данный случай исследовался экспериментально в работе [22] на примере фотоионизации атома натрия бихроматическим излучением с отношением частот 1 : 3, когда фазовый контроль обусловлен интерференцией амплитуд одно- и трехфотонного поглощения. Ионизирующее излучение представляло собой когерентную смесь излучения на основной частоте неодимового лазера ($\lambda_1 = 1064$ нм) и его третьей гармоники. Каждая точка фазовой зависимости сигнала фотоионизации получалась в результате усреднения данных по 1000 импульсам ионизирующего излучения. За счет оптимизации условий взаимодействия и детектирования достигнута глубина фазовой модуляции в эксперименте [22] составила 84 % – самое высокое значение в такого рода экспериментах.

Детальное теоретическое рассмотрение когерентных фазовых эффектов, возникающих при бихроматической ионизации основного состояния атома водорода по схеме «1 + 3», дано в работе [23]. Расчет проводился в рамках применимости теории возмущений в диапазоне изменения длины волны лазерного излучения $\lambda = 190 - 260$ нм. Учитывалась квантовая интерференция трехфотонного поглощения на основной частоте и однофотонного поглощения на частоте третьей гармоники. Было получено следующее выражение для полной скорости ионизации:

$$\Gamma = \Gamma_{3ph} + \Gamma_{1ph} + \frac{6}{k^2} \frac{I_1}{I_a} \left(\frac{I_1}{I_3} \right)^{1/2} \Gamma_{1ph} \left| \frac{S}{\mathcal{F}} \right| \times \cos(\Delta\varphi + \arg S - \arg \mathcal{F}), \quad (9)$$

где $\Gamma_{1ph,3ph}$ – скорости одно- и трехфотонного процессов; $k \equiv \hbar\omega/|E_{1s}|$; E_{1s} – энергия электрона в состоянии 1s; $I_a \approx 10^{16}$ Вт/см² – атомная интенсивность; $\Delta\varphi = \varphi_3 - 3\varphi_1$; \mathcal{F} – скалярная амплитуда однофотонной ионизации; $S = A + 2B + 3C/5$; A , B и C – некоторые функции частоты ω , определяющие амплитуду трехфотонной ионизации атома водорода. Явные выражения для зависимостей A , B и C от частоты ω через гипергеометрические функции и функции Аппелля получены в статье [24]. С помощью формулы (9) были проанализированы фазовые зависимости углового распределения фотоэлектронов для различных интенсивностей излучения. Принципиальным является то, что при всех значениях параметров угловое распределение фотоэлектронов остается симметричным. Симметрия углового распределения обусловлена тем, что в данной схеме фазового контроля возбуждаются только нечетные угловые гармоники непрерывного спектра в отличие от схемы «1 + 2».

В случае циркулярной поляризации одной из компонент бихроматического излучения вероятность фотоионизации атома будет зависеть от направления вращения

вектора поля (круговой дихроизм), причем величина дихроизма будет определяться относительной фазой излучения. Круговой дихроизм при двухфотонной бихроматической ионизации атома водорода по той же схеме «1 + 3», что и в статье [23], теоретически исследовался в работе [25] как функция лазерной частоты, интенсивности и относительной фазы. Расчет проводился в рамках применимости теории возмущений для круговой поляризации излучения на основной частоте и линейной поляризации третьей гармоники. Предполагалось, что векторы поляризации монохроматических компонент лежат в одной плоскости. Рассматривались длины волн основного излучения вблизи двухфотонных резонансов $\lambda_1 = 194, 203.5$ и 240 нм, где амплитуды одно- и трехфотонных процессов близки друг другу по модулю. Полученные зависимости кругового дихроизма от азимутального угла вылета фотоэлектронов указывают на его существенную зависимость от бихроматической фазы $\Delta\varphi = \varphi_3 - 3\varphi_1$ и интенсивностей монохроматических компонент излучения.

Хорошо известно [26], что угловое распределение фотоэлектронов при монохроматической ионизации атома зависит от поляризации излучения. В случае атомного фотоэффекта в бихроматическом поле поляризационная зависимость диаграммы направленности должна модифицироваться с учетом относительной фазы $\Delta\varphi$. Теоретический анализ этого вопроса при фотоионизации атома кальция в схеме когерентного контроля «1 + 2» дан в статье [27]. Расчет проводился в рамках теории возмущений для эллиптически поляризованного излучения на основной частоте ($\lambda_1 = 400$ нм) и линейно поляризованной второй гармоники. Было показано, что характер поляризации и азимутальной асимметрии в диаграмме направленности фототока существенно зависит от поляризационных характеристик бихроматического поля и относительной разности фаз $\Delta\varphi$, так что возможен новый тип когерентного контроля фотопроцессов – поляризационно-фазовый контроль.

Диаграмма направленности атомного фотоэффекта в надпороговом режиме, когда процесс идет с поглощением различного числа фотонов N , зависит, вообще говоря, от N . Характер данной зависимости при фотоионизации атома ксенона интенсивным бихроматическим излучением ($I > 10^{14}$ Вт/см²) с отношением частот 1 : 2 исследовался в недавней работе [28]. Было показано, что угловое распределение фотоэлектронов существенно изменяется при переходе от одного электронного пика к другому, причем если для первого пика (при минимальной энергии) угловое распределение было почти симметричным, то во всех других случаях оно имело сильную полярную асимметрию.

Бихроматическое поле (1) можно рассматривать как простейшую реализацию периодической последовательности лазерных импульсов сложной формы. При определенном выборе параметров в формуле (1), а именно, когда

$$F(t) = F_{\text{amp}}[2 \sin(\omega t - \phi) - \sin(2\omega t - 2\phi)]/4, \quad (10)$$

временная зависимость суммарного поля представима в виде

$$F(t) = F_{\text{amp}} \sin^2\left(\frac{\pi t}{T}\right) \sin(\omega t + \phi), \quad (11)$$

где $T = 2\pi/\omega$. Интересно отметить, что относительная фаза $\Delta\varphi = \varphi_2 - 2\varphi_1$ в этом случае равна нулю. Вариация параметра ϕ приводит к изменению характера осцилляций поля внутри огибающей, а значит к изменению скорости фотоионизации атома. Надпороговая ионизация атома ксенона в бихроматическом поле (10), (11) рассчитывалась в статье [29]. С помощью непертурбативного подхода, развитого в работе [30], было получено общее выражение для частотно-углового распределения скорости надпороговой фотоионизации, учитывающее вклад различных каналов в формирование фотоэлектронного пика с заданной энергией $q\hbar\omega$ (q – целое число). Расчет показал, что скорость ионизации линейно поляризованным бихроматическим полем существенно выше, чем циркулярно поляризованным (при той же интенсивности излучения). Обсуждая экспериментальные возможности реализации исследованной схемы бихроматической ионизации, авторы [29] отметили, что с помощью специальной интерферометрической техники [31] фаза волнового пакета ϕ может быть стабилизирована в пределах $\pm 0.1\pi$.

Бихроматическое фоторазрушение атомарных отрицательных ионов, насколько нам известно, до настоящего времени исследовалось только теоретически. С точки зрения теории многофотонных процессов отрицательные ионы представляют собой весьма удобный объект исследования, для которого можно получить относительно простые, но надежные аналитические выражения. Данное обстоятельство в конечном итоге связано со слабым взаимодействием внешнего электрона и атома-остатка. Следствием этого является возможность использования для возбужденных состояний отрицательного иона плосковолнового приближения, справедливого для свободных частиц, что существенно облегчает вывод основных формул.

Так, например, в статье [32] рассчитывалось фоторазрушение отрицательного иона атомарного водорода под действием бихроматического поля с отношением частот 1 : 2 в рамках простого аналитического подхода, предложенного авторами работы [33]. Этот подход является модификацией известного метода Л.В.Келдыша [34], позволяющей получать для отрицательных ионов количественно достоверные результаты, не прибегая к трудоемким численным расчетам. Рассматривалось линейно поляризованное бихроматическое поле умеренной интенсивности ($I = 10^9 - 10^{11}$ Вт/см²) с энергией фотона на основной частоте 0.1 эВ. Были рассчитаны угловые зависимости фотоэлектронов для различных относительных фаз $\Delta\varphi$, отношений интенсивностей $\eta = I_2/I_1$, разного числа поглощенных фотонов и двух режимов фотоотрыва (многофотонного и туннельного).

Во всех случаях угловое распределение сильно зависело от бихроматической фазы. С увеличением интенсивности излучения (переход к туннельному режиму) вероятность процесса сильнее осциллировала при изменении угла вылета фотоэлектрона. В то же время интегральная по углу вероятность процесса оказалась слабо зависящей от относительной фазы $\Delta\varphi$ для заданного числа поглощенных фотонов. После суммирования по этому числу фазовая зависимость вероятности фотоотрыва практически исчезала. Асимметрию диаграммы направленности фототока авторы статьи [33] предложили использовать для получения направленного потока нейтральных атомов водорода.

Тот же метод был использован в работе [35] для расчета вероятности фотоотрыва электрона от отрицатель-

ного иона водорода в бихроматическом поле с отношением частот 1 : 3. Как уже отмечалось, на характер фазовой зависимости фотоионизации существенно влияет четность чисел, представляющих собой отношение частот монохроматических компонент излучения. В том случае, если эти числа разной четности, имеет место угловая асимметрия фототока, но исчезающе мала фазовая зависимость интегральной вероятности. В противоположном случае диаграмма направленности симметрична, но интегральная вероятность фотопроцесса сильно зависит от бихроматической фазы. Это подтверждается результатами расчета, проведенного в работе [35], где монохроматические компоненты излучения предполагались линейно поляризованными и коллинеарными. Рассчитанное угловое распределение фотоэлектронов оказалось полярно-симметричным (по отношению к вектору поляризации излучения), но при этом зависящим от бихроматической фазы. Характер фазовой зависимости углового распределения определялся параметрами задачи: отношением интенсивностей $\eta = I_3/I_1$ и числом поглощенных фотонов (номером электронного пика в энергетическом спектре). Сравнение результатов работы [35] с результатами сложных численных расчетов [36] продемонстрировало высокую точность применявшегося в [35] метода.

Как это впервые было показано в статье [27], в бихроматическом поле с неколлинеарной поляризационной геометрией помимо фазового контроля возможен также поляризационно-фазовый контроль, при котором направлением вылета фотоэлектрона можно управлять с помощью изменения поляризации бихроматического поля и относительной фазы. Позднее данный вопрос подробно изучался в работе [37] на примере фоторазрушения отрицательного иона водорода под действием бихроматического излучения с отношением частот 1 : 2, монохроматические составляющие которого линейно поляризованы. Угол α между их единичными векторами поляризации e_1 и e_2 предполагался изменяемым параметром. Рассматривалась схема когерентного контроля специального вида, когда один канал фотоотрыва представляет собой поглощение фотона на основной частоте, а другой канал включает в себя поглощение фотона второй гармоники с одновременным излучением фотона на основной частоте. Расчет проводился в рамках применимости теории возмущений и модели потенциала нулевого радиуса для электрического поля атома-остатка [38]. Были проанализированы зависимости направления и величины фототока от угла между векторами поляризации монохроматических компонент α при различных значениях относительной фазы $\Delta\varphi$, а также фазовые зависимости фототока для фиксированного угла α и различных значений основной частоты. В результате была продемонстрирована возможность управления величиной и направлением фототока, возникающего при бихроматическом разрушении отрицательных ионов, за счет изменения поляризации и относительной фазы монохроматических компонент.

В цитируемых статьях по фоторазрушению отрицательных ионов пренебрегалось воздействием бихроматического поля на слабосвязанный электрон через возмущение атома-остатка (поляризационный канал процесса – см. обзор [39]). Данное воздействие может быть весьма существенным для отрицательных ионов щелочных атомов, у которых велика поляризуемость нейтрального атома. Тогда в электронной оболочке ионного остова ла-

зерным полем наводится значительный переменный дипольный момент и обусловленный им переменный поляризационный потенциал, который и приводит к дополнительному каналу фотоотрыва внешнего электрона. Учет влияния поляризационного канала на вероятность фоторазрушения отрицательных ионов щелочных металлов в бихроматическом поле с отношением частот 1 : 2 осуществлен в работе [40]. Было получено общее выражение, описывающее спектрально-угловое распределение вероятности фотоотрыва электрона с учетом его зависимости от бихроматической фазы. Из этого выражения вытекала полярная асимметрия диаграммы направленности фототока, величина которой определялась лазерной частотой и относительной фазой $\Delta\varphi$. В статье [40] было показано, что интерференция между прямым и поляризационным каналами процесса уменьшает вероятность фотоотрыва и изменяет угловую направленность фототока.

2.3. Фазовый контроль элементарных процессов с участием лазерного поля

Лазерное поле может изменять характер элементарных процессов (таких как рассеяние электронов и фотонов на атомах, фоторекомбинация электронов на ионах и др.), которые имеют место и в отсутствие электромагнитного излучения. Такого рода процессы (laser-assisted processes) в монохроматическом электромагнитном поле интенсивно исследовались начиная с середины прошлого века в связи с проблемой создания лазера на свободных электронах [41]. Рассеяние быстрых электронов на статическом потенциале в присутствии бихроматического поля анализировалось в работах [42–45], где было показано, что вероятностью процесса можно эффективно управлять с помощью изменения относительной фазы. Возбуждение атома водорода электронным ударом в присутствии бихроматического лазерного поля рассчитывалось в статье [46] в рамках борновского приближения с учетом возмущения атомных состояний лазерным полем. В этой работе было изучено влияние бихроматической фазы на угловые зависимости сечения и его симметрию.

Остановимся более подробно на одной из последних работ [47], посвященных фазовому контролю рассеяния электронов на атоме водорода в бихроматическом лазерном поле с отношением частот 1 : 3. Рассматривалась квантовая интерференция двух свободно-свободных переходов рассеивающегося электрона: двухфотонного поглощения излучения на основной частоте (переход 1) и поглощения фотона третьей гармоники с одновременным вынужденным излучением фотона на основной частоте (переход 2). Было получено следующее выражение для дифференциального сечения рассеяния σ , в ходе которого энергия налетающего электрона изменяется на $2\hbar\omega$ (ω – частота основного излучения):

$$\frac{1}{I_1^2} \frac{d\sigma}{d\Omega_f} = (2\pi)^4 \frac{p_f}{p_i} \left[\mathfrak{F}_1^2 + \frac{I_3}{I_1} \mathfrak{F}_2^2 + 2 \left(\frac{I_3}{I_1} \right)^{1/2} \mathfrak{F}_1 \mathfrak{F}_2 \cos \Delta\varphi \right], \quad (12)$$

где $I_{1,3}$ – интенсивности монохроматических компонент излучения; Ω_f – телесный угол рассеяния электрона; $p_{i,f}$ – его начальный и конечный импульсы; $\mathfrak{F}_{1,2}$ – зависящие от угла рассеяния нормированные квантовые амплитуды двух каналов процесса. Каждая из этих амплитуд представляет собой сумму трех слагаемых, описывающих со-

ответственно электронный (статический), поляризационный и смешанный механизмы рассеяния. Выражения для амплитуд $\mathfrak{A}_{1,2}$ через гипергеометрические функции были получены в [48, 49]. С помощью формулы (12) рассчитывались фазово-угловые зависимости сечения рассеяния для трех энергий фотона на основной частоте ($\hbar\omega = 1.17, 3$ и 4 эВ), коллинеарной поляризации монохроматических компонент излучения и $p_i \parallel e_{1,3}$. Анализ, проведенный в статье [47], продемонстрировал существенную зависимость когерентного фазового контроля рассеяния электрона на атоме от поляризации атомного остова лазерным полем. Было показано, что роль поляризации атома возрастает с увеличением частоты лазерного излучения и уменьшением угла рассеяния электрона.

Влияние резонансных моно- и бихроматического полей на процессы упругого и неупругого рассеяния электрона на атоме водорода исследовалось в статье [50] в рамках непертурбативной теории Борна – Флоке. Рассматривалось бихроматическое излучение с отношением частот $1 : 3$, причем третья гармоника была в резонансе с переходом $2s \rightarrow 3p$ в атоме водорода. Расчет проводился для одинаковых интенсивностей монохроматических составляющих излучения. По всей вероятности, этим можно объяснить слабую зависимость сечения рассеяния электрона от относительной фазы бихроматического излучения, констатированную в данной работе.

Теория другого процесса с участием лазерного излучения – ионизации атома электронным ударом в присутствии бихроматического поля – была развита в работе [51]. Для описания рассеивающегося электрона использовались волковские волновые функции. Учитывалось искажение связанного состояния атомного электрона в первом порядке теории возмущений по лазерному полю. Волновые функции непрерывного спектра ионизированного электрона рассчитывались с помощью приближенного метода, учитывающего влияние бихроматического излучения во всех порядках по величине его напряженности. Последнее обстоятельство оказалось весьма критичным для адекватного описания эффекта. Было показано, что дифференциальное сечение процесса может быть изменено на порядок за счет вариации бихроматической фазы.

Подход, развитый в [51], использовался в работе [52] для расчета сечения рассеяния рентгеновских лучей на атоме в присутствии бихроматического поля с отношением частот $1 : 2$ и $1 : 3$. Качественная картина данного процесса, представленная в [52], заключается в следующем: ионизированный рентгеновским излучением электрон обменивается энергией с лазерным полем и затем рекомбинирует, передавая излишек/недостаток энергии рентгеновскому фотону. В результате рассеянный рентгеновский фотон имеет энергию, отличающуюся от своего первоначального значения на целое число квантов энергии лазерного поля. Таким образом, данный процесс можно использовать для увеличения энергии рентгеновского фотона. Полученные в работе численные результаты свидетельствуют о том, что сечение процесса в бихроматическом поле возрастает на несколько порядков по сравнению с сечением рассеяния рентгеновского фотона в монохроматическом лазерном поле [53]. Кроме того, вероятность рассеяния оказалась сильно зависящей от бихроматической фазы, так что возможен эффективный когерентный контроль рассмотренного явления.

В работе [54] изучалась радиационная рекомбинация и генерация рентгеновского излучения в бихроматическом

поле, представляющем собой когерентную смесь излучения на основной частоте и его третьей гармоники. Данный процесс интересен с точки зрения его использования для генерации гармоник высокого порядка при лазерном нагреве плазмы. В рамках квантового и классического подходов была рассчитана вероятность рекомбинации электрона на атомарном ионе с одновременным поглощением/испусканием заданного числа лазерных фотонов в зависимости от бихроматической фазы. Использовалась специальная форма модели Келдыша – Фейсала – Риса с учетом влияния кулоновского поля иона на рекомбинирующий электрон. Результаты вычислений говорят о существенной зависимости вероятности радиационной рекомбинации от относительной фазы излучения и возможности когерентного фазового контроля данного процесса.

Анализ элементарных процессов с участием бихроматического поля показал, что вариация относительной фазы не только изменяет вероятность процесса, но и позволяет управлять его основными характеристиками, такими как энергия рассеянного фотона, число излученных/поглощенных фотонов и др. Полученные теоретические результаты требуют экспериментальной проверки и выяснения возможности их практического использования.

3. Молекулярные процессы в бихроматическом лазерном поле

3.1. Фотодиссоциация и фотоионизация молекул под действием бихроматического излучения

Впервые идея когерентного управления лазерно-индуцированными процессами в молекулах с использованием бихроматического излучения с кратными частотами была высказана в работе [55]. В ней анализировалась возможность контроля выхода продуктов диссоциации молекулы под действием бихроматического поля с отношением частот $1 : 3$. С этой целью в рамках теории возмущений было получено общее выражение для вероятности $P(E, q)$ появления заданного набора продуктов распада (q) молекулы в результате ее фотовозбуждения в состоянии с энергией E как функция относительной фазы монохроматических составляющих излучения. Выведенная формула аналогична выражению для однофотонной диссоциации суперпозиционного состояния молекулы [56], однако описывает более простую экспериментальную ситуацию. В статье [55] была предложена принципиальная схема эксперимента по наблюдению когерентного радиационного контроля химических реакций, которая затем использовалась во многих работах данного направления.

Одному из таких экспериментов по когерентному лазерному контролю связанно-связанных переходов в молекулах HCl и CO посвящена статья [57]. Основные черты изучавшегося процесса были теми же, что и в работе [11] по бихроматическому возбуждению атома ртути. Квантовая интерференция трех- и однофотонного возбуждения связанно-связанного перехода регистрировалась по сигналу ионного тока, возникавшего в результате фотоионизации верхнего терма. Для возбуждения и ионизации молекулы использовалось излучение лазера на красителе и его третья гармоника ($\lambda_3 = 110 - 115$ нм), генерируемая в камере с криптоном. Энергия в лазерном импульсе на основной частоте изменялась в пределах $0.8 -$

1.6 мДж. Интенсивность излучения третьей гармоники варьировалась в результате изменения давления криптона. Оптимальное отношение интенсивностей монохроматических компонент $\eta = I_3/I_1$, при котором эффективность контроля максимальна, составляло примерно 10^{-6} . Вариация относительной фазы осуществлялась за счет пропускания бихроматического излучения через ячейку с аргоном или водородом переменного давления. Полученный таким образом лазерный пучок фокусировался в реакционной камере на молекулярном пучке, и продукты фотовозбуждения регистрировались с помощью масс-спектрометра.

В отличие от работы [11] в рассматриваемом случае в качестве промежуточного резонансного уровня использовались различные электронные и вращательные состояния. Кроме того, наряду с простой фотоионизацией регистрирующей системой фиксировались продукты диссоциативной ионизации. Максимальная эффективность когерентного контроля составила 40 % для молекулы HCl и 20 % в случае монооксида углерода, причем оптимальное отношение вероятностей одно- и трехфотонного возбуждения промежуточного состояния молекулы оказалось равным единице.

Новым типом фазового контроля при воздействии бихроматического излучения на молекулы, не имеющим места в атомном случае, является когерентный контроль фотодиссоциации в результате возбуждения молекулы из основного состояния в отталкивательный электронный терм. Этот процесс теоретически исследовался в статье [58] на примере фотодиссоциации молекулярного иона H_2^+ в интенсивном бихроматическом поле с отношением частот 1:2 и 1:3. Рассматривалось воздействие на ион лазерного излучения с длительностью импульса 150 фс, длиной волны (на основной частоте) $\lambda_1 = 780$ нм и интенсивностью $I_1 = 10^{14}$ Вт/см². Интенсивности гармоник составляли: $I_2 = 3 \times 10^{13}$ Вт/см², $I_3 = 5 \times 10^{14}$ Вт/см². В данном случае реализовывался надпороговый режим фотодиссоциации, когда число поглощенных фотонов превышает минимально возможное число, определяемое энергетическим порогом процесса.

В рассматриваемом диапазоне интенсивностей излучения теория возмущений неприменима, поэтому для описания фотодиссоциации численно решалось временное уравнение Шредингера с использованием специальной техники, развитой для коротких импульсов [59]. Так же как и в случае надпороговой фотоионизации атомов, вероятность исследованного в [58] процесса в основном определяется пиковым значением интенсивности излучения. Поэтому рассчитанная зависимость скорости фотодиссоциации от бихроматической фазы связана, скорее, с интерференцией монохроматических составляющих излучения, нежели с квантовой интерференцией каналов перехода системы из начального состояния в конечное. Авторы статьи [58] рассчитали вероятность бихроматической фотодиссоциации иона H_2^+ в результате его возбуждения из основного электронного состояния $1s\sigma_g$ в отталкивательный терм $2p\sigma_u$ при различных значениях относительной фазы $\Delta\varphi$. В результате было показано, что даже небольшая когерентная примесь второй или третьей гармоники существенно увеличивает скорость процесса. Кроме того, в случае примеси второй гармоники имеет место фазовая зависимость асимметрии вылета протона вперед–назад по отношению к вектору поляризации излучения.

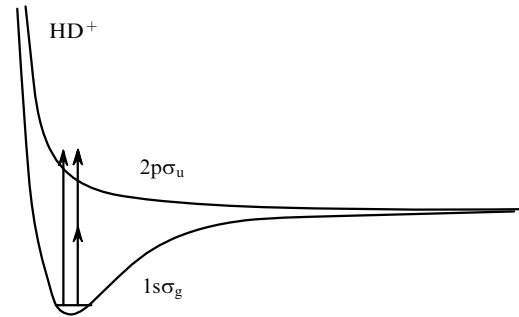


Рис.6. Потенциальные кривые состояний $1s\sigma_g$ и $2p\sigma_u$ молекулярного иона HD^+ [60].

Указанная выше асимметрия вылета продукта диссоциации наблюдалась экспериментально в работе [60], где исследовался фазовый контроль фотодиссоциации молекулярного иона HD^+ под действием излучения на основной частоте ($\lambda_1 = 1053$ нм) и его второй гармоники. Основной и нижний отталкивательный термы этой молекулы, между которыми происходил радиационный переход, изображены на рис.6.

Длительность импульса основного излучения, генерируемого Nd:YLF-лазером в режиме синхронизации мод, составляла 50 пс, а энергия в импульсе (после усиления) – 2 мДж. Относительная разность фаз изменялась за счет поворота стеклянной пластинки, через которую пропускалось бихроматическое излучение. После фокусировки в реакционной камере максимальное значение интенсивности излучения равнялось примерно 2×10^{13} Вт/см². Монохроматические компоненты лазерного поля в области взаимодействия имели одинаковую линейную поляризацию вдоль оси времяпролетного спектрометра. Вдоль этой же оси было приложено постоянное электрическое поле, служащее для сбора заряженных фрагментов на детекторе. Асимметрия вылета продуктов фотодиссоциации измерялась по времяпролетным спектрам, отражавшим распределения по направлениям (на детектор и от него) протонов H^+ и дейтронов D^+ (рис.7). На рис.7 представлены также временные зависимости напряженности электрического поля бихроматического излучения для разности фаз, соответствующей данному времяпролетному спектру.

На времяпролетных спектрах протонов (сплошные кривые) можно выделить два максимума, отражающие асимметрию их углового распределения. Первый максимум (при меньшем времени) соответствует протонам с начальной скоростью, направленной к детектору, второй – от детектора. Из рис.7 видно, что относительная величина этих максимумов определяется видом временной зависимости напряженности электрического поля, который, в свою очередь, зависит от относительной фазы монохроматических компонент. Аналогичная ситуация наблюдается в случае дейтронов (штриховые кривые), за тем исключением, что их времяпролетные спектры имеют центральный пик, связанный с наличием в реакционной камере остаточного водорода и, следовательно, ионов H_2^+ .

По данным времяпролетных спектров в работе [60] были построены зависимости от бихроматической фазы асимметрии вылета продуктов диссоциации – отношений $\beta(\text{H}^+) = N_{\text{for}}(\text{H}^+)/N_{\text{back}}(\text{H}^+)$ и $\beta(\text{D}^+) = N_{\text{for}}(\text{D}^+)/N_{\text{back}}(\text{D}^+)$ (где $N_{\text{for}}(\text{H}^+)$, $N_{\text{back}}(\text{H}^+)$ и $N_{\text{for}}(\text{D}^+)$, $N_{\text{back}}(\text{D}^+)$ – число протонов и дейтронов, вылетевших вперед и назад соот-

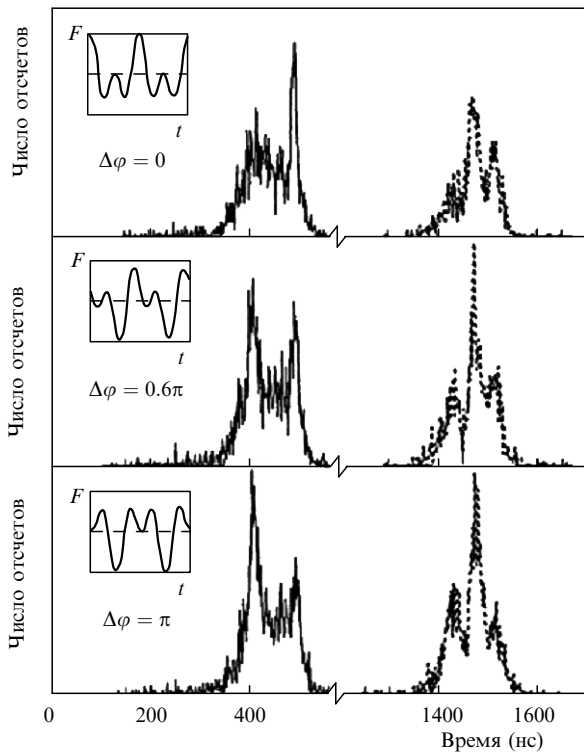


Рис.7. Времяпролетные спектры продуктов фотодиссоциации H^+ (сплошные кривые) и D^+ (штриховые кривые) молекулярного иона HD^+ для различных значений бихроматической фазы [60]. На вставках показаны временные зависимости электрического поля бихроматического излучения для данного значения фазы.

ответственно), а также фазовая зависимость отношения выхода продуктов диссоциации $\varkappa = N(H^+)/N(D^+)$ (рис.8). Для калибровки относительной фазы использовалась зависимость электронного тока, возникающего при фотоионизации атомов криптона тем же бихроматическим излучением, от угла поворота фазовращающей пластинки (рис.8,в).

В цитируемой работе была также исследована зависимость глубины фазовой модуляции параметров $\beta(H^+)$ и $\beta(D^+)$ от отношения интенсивностей монохроматических компонент излучения. Оказалось, что максимальная глубина фазовой модуляции асимметрии вылета продуктов диссоциации (порядка 70 %) достигается при одинаковых интенсивностях излучения на основной частоте и его второй гармоники, т. е. тогда, когда максимальна фазовая модуляция напряженности бихроматического поля. Последнее является следствием особенностей фотодиссоциации в сильном лазерном поле, когда скорость процесса определяется пиковым значением интенсивности излучения.

Практическое совпадение фазовых зависимостей параметра β для протонов и дейтронов (рис.8,а) говорит об отсутствии в данном случае разделения изотопов, движущихся в момент фотодиссоциации в заданном направлении.

Таким образом, в работе [60] была продемонстрирована возможность когерентного фазового контроля углового распределения продуктов одного типа при бихроматической фотодиссоциации молекулярного иона. В то же время не была зарегистрирована (в пределах погрешности измерений 9 %) фазовая зависимость отношения \varkappa для продуктов диссоциации, испущенных в одном направлении.

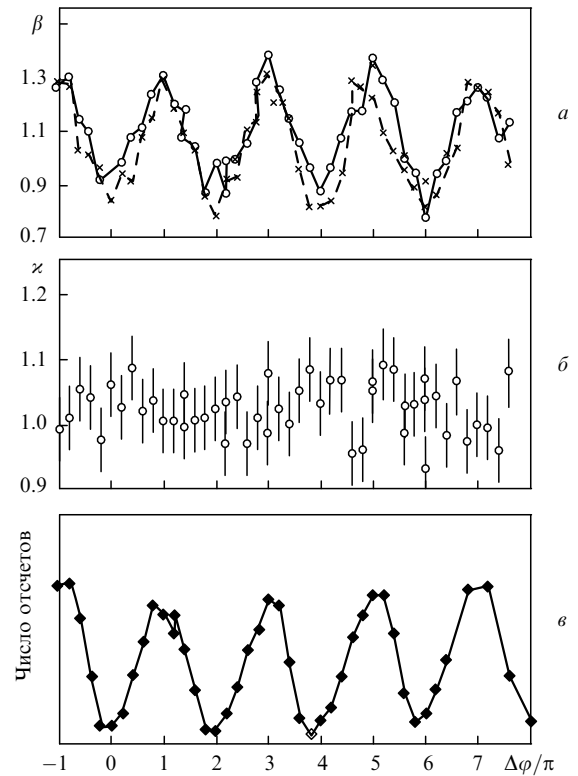


Рис.8. Зависимости от бихроматической фазы $\Delta\varphi$ отношения продуктов фотодиссоциации молекулярного иона HD^+ с начальными скоростями, направленными на детектор и от него, $\beta(H^+)$ (\circ) и $\beta(D^+)$ ($+$) (а), фазовая зависимость параметра разделения изотопов \varkappa (б) и фотоэлектронный ток при бихроматической ионизации криптона (в) [60].

3.2. Когерентный фазовый контроль колебательно-вращательного возбуждения молекул

Для оптически активных в ИК диапазоне молекул представляет интерес рассмотрение их бихроматического фотовозбуждения на колебательно-вращательных переходах. Теоретический анализ данного процесса на примере взаимодействия молекулы CO с бихроматическим излучением (отношение частот 1:3) дан в статье [61]. Рассматривались две ветви колебательно-вращательного перехода (P- и R-ветви) без изменения электронного состояния молекулы: $(v_i = 0, J_i = J) \rightarrow (v_f = 3, J_f = J \pm 1)$, где $v_{i,f}$ и $J_{i,f}$ – колебательные и вращательные квантовые числа. Энергия фотона излучения на основной частоте в данном случае составляет примерно 0.26 эВ. Расчет проводился в рамках теории возмущений с учетом ангармонизма молекулярных колебаний в предположении, что основное электронное состояние является $^1\Sigma$ -состоянием. В рамках модели Морзе для межатомного потенциала были вычислены трех- и однофотонный матричные элементы дипольного момента рассматриваемого колебательно-вращательного перехода, а также соответствующие квантово-механические амплитуды.

С использованием этих амплитуд было получено выражение для полной вероятности фотовозбуждения молекулы $W_{tot}(\Delta\varphi, J)$, усредненное по проекциям углового момента с заданным квантовым числом J , которое учитывает интерференцию одно- и трехфотонного каналов процесса. Подстановка численных значений молекулярных параметров в формулу для вероятности $W_{tot}(\Delta\varphi, J)$, в которой в качестве вращательного квантового числа

взято наиболее вероятное значение, полученное по больцмановскому распределению, дает следующее выражение для оптимального отношения интенсивностей монохроматических компонент $\eta = I_3/I_1$ в R-ветви при температуре $T = 300$ К: $[\eta_{\text{opt}}(I_1)]^{1/2} = 4.24 \times 10^{-10} I_1$ (где I_1 измеряется в Вт/см²). Анализ зависимости параметра η_{opt} от температуры молекулярного газа и ветви вращательного возбуждения показал, что при относительно низких температурах отношение η_{opt} примерно одинаково для P- и R-ветвей. С ростом температуры величина η_{opt} уменьшается, причем это уменьшение сильнее выражено для R-ветви вращательного возбуждения.

Новый аспект в когерентном контроле бихроматического возбуждения колебательно-вращательного перехода, обнаруженный в работе [61], заключается в зависимости коэффициента фазовой модуляции вероятности возбуждения от колебательного квантового числа начального состояния J . В частности, существуют такие значения $J_0^{P,R}$, вблизи которых коэффициент фазовой модуляции меняет знак. Из закона сохранения энергии следует зависимость резонансной лазерной частоты от J . Поэтому, изменяя лазерную частоту, можно изменять характеристики когерентного контроля рассматриваемого процесса. То же можно делать, изменяя температуру молекулярного газа.

Существуют и другие виды лазерного контроля радиационных молекулярных процессов. Например, в работе [62] была экспериментально реализована фотодиссоциация димера Na_2 в двухчастотном лазерном поле с не кратными частотами, в результате которой контролировался выход одного из атомов натрия в заданном возбужденном состоянии (3р или 3d). Путем изменения одной из лазерных частот удалось увеличить выход $\text{Na}(3d)$ на 25 % за счет соответствующего уменьшения выхода $\text{Na}(3p)$. Таким образом, впервые была экспериментально продемонстрирована возможность управления выходом продуктов в заданном канале фотореакции. Отличительной чертой исследованного в работе [62] процесса является его независимость от относительной фазы монохроматических компонент лазерного излучения, хотя в основе этого процесса лежит квантовая интерференция. Данное обстоятельство связано со специфической зависимостью амплитуд каналов от напряженностей монохроматических компонент излучения.

Подробный обзор работ по когерентному контролю молекулярной динамики, включая возбуждение из суперпозиционного состояния, лазерный контроль столкновительных процессов, контроль динамики хаоса и др., дан в статье [63].

4. Когерентный контроль фотоэффекта в бихроматическом поле

Существенным новым аспектом, возникающим при рассмотрении бихроматического фотоэффекта с поверхности и в объеме твердых тел, является другая по сравнению с атомом симметрия задачи. Действительно, в атомном случае дипольные правила отбора, обуславливающие характерные черты бихроматической фотоионизации, определяются сферической симметрией системы. При переходе к твердотельному фотоэффекту симметрия задачи понижается, правила отбора модифицируются, и процесс в каждом конкретном случае имеет свои специфические черты.

4.1. Внешний фотоэффект в бихроматическом лазерном поле

Тип внешнего фотоэффекта определяется характером взаимодействия фотоэлектронов с облучаемым образцом. Если избыток энергии и импульса в ходе поглощения фотона передается ионизируемым центрам в объеме твердого тела, то говорят об объемном фотоэффекте. В другом предельном случае, когда существенно взаимодействие с поверхностным потенциалом, имеет место поверхностный фотоэффект. Эти два механизма можно различить по поляризационной зависимости фототока: при поверхностном фотоэффекте проекция вектора поля на нормаль к поверхности должна быть отлична от нуля. Первая экспериментальная работа по фазовому контролю фототока с поверхности твердого тела под действием бихроматического излучения была проведена отечественными исследователями [7] в условиях доминирования объемного механизма фотоэффекта.

Подробное описание эксперимента по внешнему фотоэффекту в бихроматическом поле с отношением частот 1 : 2, а также теоретическое рассмотрение этого эффекта приведены в [8]. В данной работе регистрировался электронный ток с поверхности сурьмяно-цезиевого фотокатода фотоэлектронного умножителя типа ФЭУ-127, который выполнял также роль регистрирующего устройства. Красная граница фотоэффекта в данном случае отвечает длине волны $\lambda_{\text{max}} = 600$ нм. Использовались излучение неодимового лазера на основной частоте ($\lambda_1 = 1064$ нм) и его вторая гармоника. Относительная разность фаз между монохроматическими компонентами $\Delta\varphi$ изменялась за счет пропускания излучения через кювету с воздухом переменного давления. Фазовая зависимость фототока возникала в результате квантовой интерференции двухфотонного поглощения излучения на основной частоте и однофотонного поглощения второй гармоники, причем одноквантовый фотоэффект на длине волны λ_1 отсутствовал ($\lambda_1 > \lambda_{\text{max}}$). Для достижения максимальной эффективности фазовой модуляции интенсивности монохроматических компонент излучения подбирались такими, чтобы сигнал однофотонного фототока примерно равнялся сигналу двухфотонного фототока. Глубина фазовой модуляции фототока составляла несколько десятков процентов.

Проведенное в [8] теоретическое рассмотрение базировалось на модели потенциала нулевого радиуса для ионизируемых центров в твердом теле. В рамках данной модели несложно получить простые аналитические выражения для амплитуды одно- и двухфотонного поглощения. Формула для вероятности фотоионизации с вылетом электрона в элемент телесного угла $d\Omega_n$, выведенная в работе [8], имеет вид

$$\frac{dW}{d\Omega_n} = B |f_1(nF_2) + f_0 F_1^2 + f_2 [(nF_1)^2 - F_1^2/3]|^2, \quad (13)$$

где зависящие от частоты излучения коэффициенты $f_{0,1,2}$ описывают возбуждение ионизируемого электрона из основного s-состояния соответственно в s-, p-, d-состояния непрерывного спектра. Как это следует из дипольных правил отбора, возбуждение в состояние с нечетным квантовым числом момента количества движения ($l = 1$) происходит в результате одноквантового поглощения излучения второй гармоники. Двухквантовое поглощение излучения на основной частоте приводит к возбуждению

фотоэлектрона в состояния с четными $l = 0, 2$. После введения в квадрат модуля в правой части равенства (13) возникают интерференционные члены, содержащие произведение напряженностей $F_2 F_1^2$, которые определяют зависимость вероятности фотоионизации от бихроматической фазы. Эти же слагаемые описывают полярную асимметрию вылета фотоэлектронов. Данная асимметрия, по мнению авторов [8], является возможным механизмом записи голограммы диэлектрической восприимчивости второго порядка, приводящей к фотоиндуцированной генерации второй гармоники в оптическом волокне [5, 6].

Существенно, что внешний фотоэффект, наблюдавшийся в работе [8], возникал при нормальном падении бихроматического излучения на поверхность фотокатода, что свидетельствует об объемном характере процесса. Объемный фотоэффект характерен для материалов с низкой проводимостью. В случае же металлов внешний фотоэффект является поверхностным, т.е. возникает под действием поверхностного потенциала. Теория поверхностного внешнего фотоэффекта в бихроматическом поле развивалась в работах [64–66]. Простейший подход к описанию данного явления основывается на модели зоммерфельдовского скачка для поверхностного потенциала $U(x)$, когда он аппроксимируется выражением $U(x) = U_0 \theta(x)$, где $\theta(x)$ – функция Хэвисайда (ось x направлена вдоль нормали к поверхности).

Такой подход был реализован в работе [65], где рассчитывался электронный ток, возникающий при воздействии на поверхность металла бихроматического излучения с отношением частот 1 : 2. В этом случае имеет место квантовая интерференция однофотонного поглощения второй гармоники и двухфотонного поглощения излучения на основной частоте. Было получено следующее выражение для нормальной проекции фототока как функции бихроматической фазы $\Delta\varphi = \varphi_2 - 2\varphi_1$:

$$j_x = j_x^\Sigma [1 + (\zeta/2) \cos(\Delta\varphi + \Delta\varphi_1)], \quad (14)$$

где плотность фототока без учета квантовой интерференции j_x^Σ , коэффициент фазовой модуляции ζ , внутренний фазовый сдвиг $\Delta\varphi_1$ выражаются через амплитуды одно- (A_1) и двухфотонного (A_2) поглощения. Расчет проводился для внешнего фотоэффекта с поверхности металлического натрия (работа выхода $A_{out} = 2.3$ эВ). Результаты вычислений зависимости коэффициента ζ , характеризующего эффективность когерентного контроля фототока, от энергии кванта основного излучения для различных отношений интенсивностей $\eta = I_2/I_1$ и $I_1 = 3.5 \times 10^{10}$ Вт/см² представлены на рис.9. Видно, что при заданном значении I_1 оптимальные интенсивности монохроматических компонент близки друг другу. Излом кривых на рис.9 соответствует началу фотоэффекта на основной частоте. Следует отметить, что развитая теория справедлива для достаточно коротких лазерных импульсов, когда можно пренебречь нагревом и разрушением облучаемой поверхности.

Модель зоммерфельдовского скачка, использованная в [64] для расчета внешнего фотоэффекта в бихроматическом лазерном поле, предполагает нулевую пространственную ширину области изменения поверхностного потенциала. Представляет интерес выяснить границы применимости этого приближения. Данный вопрос

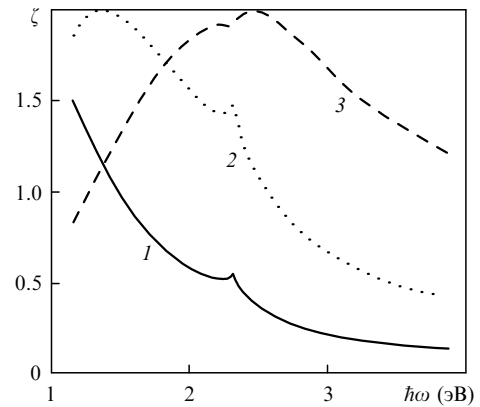


Рис.9. Зависимости коэффициента фазовой модуляции ζ фототока электронов, вырываемых с поверхности металлического натрия бихроматическим лазерным полем ($I_1 = 3.5 \times 10^{10}$ Вт/см²), от энергии кванта излучения на основной частоте для параметра $\eta = I_2/I_1 = 10\%$ (1), 1% (2) и 0.1% (3) [65].

исследовался в работе [65], где функция $U(x)$ аппроксимировалась выражением вида

$$U(x) = \frac{U_0}{2} \left(1 + \tanh \frac{x}{2a} \right),$$

где a – ширина поверхностного барьера. Было показано, что вблизи порога двухквантового фотоэффекта амплитуды одно- и двухфотонного поглощения слабо зависят от ширины барьера, так что модель зоммерфельдовского скачка хорошо описывает рассматриваемый процесс. Вдали от порога зависимость амплитуд фотопоглощения от параметра a становится более сильной, но при этом модуль их отношения $|A_2/A_1|$ изменяется мало. Поскольку коэффициент фазовой модуляции представляется в виде $\zeta = 2 \sin[\arctan |A_2/A_1|]$, то можно сделать вывод о том, что эффективность когерентного контроля фототока слабо зависит от ширины поверхностного барьера. В то же время внутренний сдвиг фаз $\Delta\varphi_1 = \arg(A_2/A_1)$ согласно анализу, проведенному в [67], более чувствителен к величине a , так что фазовая зависимость фототока (14) будет сдвигаться с ростом ширины поверхностного барьера.

Возможность использования фазовой зависимости плотности тока (14) бихроматического поверхностного фотоэффекта для определения изменения работы выхода A_{out} вдоль поверхности образца обсуждалась в работе [66]. Физической основой такого рода нелинейно-оптической диагностики поверхности является тот факт, что внутренний сдвиг фаз $\Delta\varphi_1$ представляет собой функцию параметров облучаемого образца и частоты излучения. В модели зоммерфельдовского скачка для электронов, вырываемых с поверхности Ферми, эта функция имеет вид

$$\Delta\varphi_1 = \arctan \left[\frac{2(E_F + \hbar\omega)^{1/2} - (E_F + 2\hbar\omega)^{1/2}}{2(A_{out} - \hbar\omega)^{1/2} - A_{out}^{1/2}} \right], \quad (15)$$

$$A_{out} > \hbar\omega > A_{out}/2,$$

где E_F – энергия Ферми. Как следует из формул (14), (15), изменение работы выхода влечет за собой сдвиг фазовой зависимости фототока. Компенсируя этот сдвиг изменением бихроматической фазы $\Delta\varphi$, можно в рамках модели (15) определить вариацию работы выхода. Для практи-

ческих приложений предложенного метода следует использовать более реалистические модели поверхностного потенциала, поскольку, как об этом говорилось выше, внутренний сдвиг фаз $\Delta\varphi_1$ весьма чувствителен к ширине потенциального барьера. Эту зависимость можно уменьшить, используя лазерное излучение с энергией фотона вблизи порога двухквантового фотоэффекта.

4.2. Внутренний фотоэффект при бихроматическом возбуждении твердых тел

Внутренний фотоэффект возникает в результате фотоиндуцированных переходов носителей электрического тока в объеме твердых тел. Эти переходы могут быть межзонными, внутризонными и примесно-зонными. Хорошо известно [68], что в случае центрально-симметричного образца в отсутствие внешнего поля невозможно монохроматическое возбуждение стационарного электрического тока, т. е. отсутствует объемный фотогальванический эффект. В то же время при возбуждении носителей заряда в центрально-симметричном твердом теле под действием бихроматического поля вида (1) возможен так называемый когерентный фотогальванический эффект без приложения внешнего напряжения. Теория данного эффекта для случая внутризонных и примесно-зонных переходов развивалась в работах [2–4], о чем уже говорилось во Введении.

Первая экспериментальная работа по внутреннему фотоэффекту при бихроматическом возбуждении [69] была посвящена фазовому контролю тока в слоистой полупроводниковой структуре AlGaAs/GaAs. Стандартный фотоприемник на основе данной структуры имеет в ИК диапазоне значительную диэлектрическую восприимчивость второго порядка $\chi^{(2)}$, ответственную за двухфотонное поглощение. Поэтому возможна квантовая интерференция амплитуд одно- и двухфотонного поглощения при возбуждении переходов между энергетическими подзонами квантовых ям в образце AlGaAs/GaAs. Данное обстоятельство было использовано в работе [69] для реализации фазового контроля фототока. Фототок в эксперименте [69] возникал в результате возбуждения электронов из основного (связанного) состояния квантовой ямы в состояние, соответствующее инфинитному движению, под действием бихроматического излучения на длинах волн $\lambda_1 = 10.6$ мкм и $\lambda_2 = 5.3$ мкм (рис. 10).

Излучение на основной частоте генерировалось одномодовым CO₂-лазером с длительностью импульсов 100 нс при частоте их повторения 2 Гц. Удвоение частоты происходило в кристалле AgGaSe₂ с эффективностью порядка 2×10^{-4} . Амплитуды одно- и двухфотонного поглощения выравнивались с помощью набора фильтров для получения максимальной эффективности фазового контроля. Измерение фототока в периодической структуре GaAs/Ga_{0.74}Al_{0.26}As, содержащей 25 квантовых ям с толщиной 55 Å и расстоянием между соседними ямами 325 Å, проводилось при температуре $T = 82$ К. Величина и направление регистрируемого фототока изменялись в интервале ± 5 мкА за счет вариации относительной фазы $\Delta\varphi = \varphi_2 - 2\varphi_1$. Таким образом, в работе [69] была экспериментально продемонстрирована возможность когерентного контроля фото процессов в полупроводниковых структурах с помощью бихроматического излучения с кратными частотами.

Теоретическое рассмотрение когерентного контроля фототока за счет возбуждения межзонных переходов в

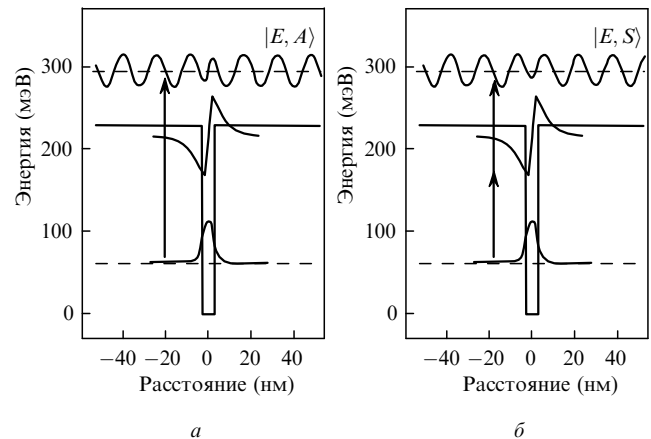


Рис. 10. Диаграмма энергетических уровней системы квантовых ям GaAs/Ga_{0.74}Al_{0.26}As и волновых функций состояний, между которыми происходит однофотонное поглощение излучения на $\lambda_2 = 5.3$ мкм (а) и двухфотонное поглощение на $\lambda_1 = 10.6$ мкм (б) [69].

объемных полупроводниках под действием бихроматического излучения с отношением частот 1 : 2 дано в статье [70]. Плотности фотоиндуцированных электронного и дырочного токов определялись из решения кинетических уравнений, в которых учитывались скорости инжекции заряда и тока за счет возбуждения электронов из валентной зоны в зону проводимости. Отличительной особенностью внутреннего фотоэффекта при бихроматическом возбуждении центрально-симметричного вещества является то, что скорость инжекции плотности тока пропорциональна «перекрестному» члену, содержащему произведение напряженностей электрического поля излучения на основной частоте и его второй гармоники (последнее слагаемое во втором равенстве формулы (4)). Вычисления, проведенные в работе [70] для случая бихроматического возбуждения внутреннего фотоэффекта в GaAs без учета нецентрально-симметричной части диэлектрической восприимчивости, показали, что фототок, возникающий при реалистических экспериментальных условиях, легко измерим.

Соответствующий эксперимент был поставлен в работе [71] с использованием лазерного излучения пико- и фемтосекундного диапазонов на длине волны $\lambda_1 = 1550$ нм и его второй гармоники (рис. 11). Необходимость применения коротких лазерных импульсов для возбуждения внутреннего фотоэффекта в объемном образце GaAs обусловлена малым временем фазовой релаксации носителей тока (порядка 10^{-13} с). Импульсы длительностью 175 фс с частотой повторения 250 кГц и средней мощностью до 30 мВт получались с помощью параметрического генератора, перестраиваемого в широком диапазоне длин волн (1100–2900 нм). Источником возбуждающего излучения пикосекундной длительности служил параметрический усилитель с частотой повторения импульсов 82 МГц и средней мощностью 150 мВт на длине волны 1550 нм. Вторая гармоника в обоих случаях генерировалась в кристалле β-бората бария.

Когерентный контроль фототока наблюдался при комнатной температуре в образцах различной толщины двух типов: в нормальном арсениде галлия (полученном при нормальных условиях) и в арсениде галлия, выращенном при низкой температуре (LT-GaAs). В образцах первого типа время электронно-дырочной рекомбинации превышает 10 нс (при концентрации носителей менее 10^{18} см⁻³),

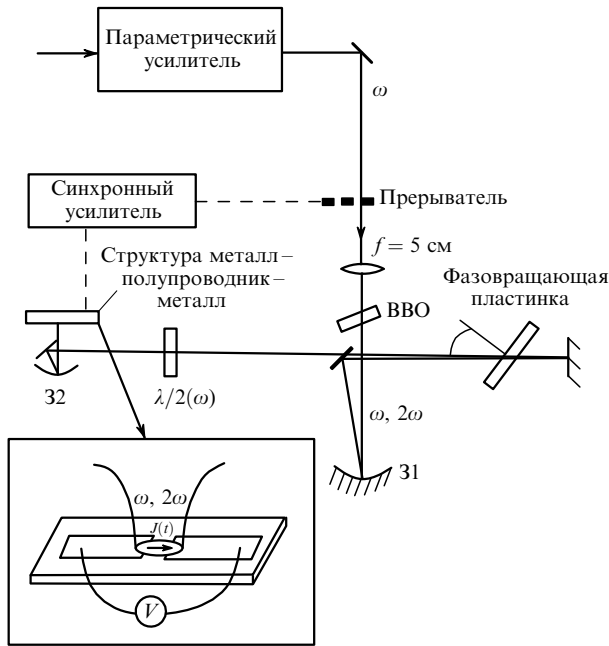


Рис.11. Схема экспериментальной установки [71] по наблюдению когерентного контроля фототока в объемном образце GaAs, возникающего под действием бихроматического излучения без приложения внешнего напряжения (31, 32 – сферические зеркала).

и фазовый контроль фототока возможен только при возбуждении источником излучения с относительно низкой частотой повторения импульсов из-за эффекта накопления заряда. Образцы второго типа характеризуются малым временем захвата носителей (порядка пикосекунды), что препятствует накоплению заряда. Поэтому когерентный контроль внутреннего фотоэффекта в них наблюдался при возбуждении обоими источниками бихроматического излучения. Максимальная плотность тока в образце из нормального GaAs при возбуждении внутреннего фотоэффекта излучением параметрического генератора составила 500 нА/мкм². В случае же использования параметрического усилителя и образца LT-GaAs она равнялась 3 нА/мкм². Зарегистрированные в работе [71] синусоидальные зависимости фотонапряжения от относительной фазы $\Delta\varphi = \varphi_2 - 2\varphi_1$ (рис. 12) продемонстрировали возможность когерентного контроля внутреннего фотоэффекта в объемных полупроводниках с помощью бихроматического излучения с кратными частотами без приложения внешнего напряжения.

В статье [72] исследовалась квантовая интерференция одно- и двухфотонного поглощения при бихроматической генерации носителей тока в нецентрально-симметричных полупроводниках. Экспериментально было показано, что эта интерференция приводит к фазовой модуляции концентрации носителей тока и коэффициента пропускания монохроматических компонент излучения при изменении их относительной фазы. В эксперименте [72] на объемный образец арсенида галлия при комнатной температуре воздействовало излучение на длине волны $\lambda_1 = 1550$ нм и его вторая гармоника. В данном случае возможность двухфотонного поглощения обуславливалась наличием у материала образца диэлектрической восприимчивости второго порядка $\chi^{(2)}$ (которой пренебрегалось при теоретическом рассмотрении [70]). Длительность импульса излучения на основной длине волны составляла 120 фс при частоте повторения импульсов 250

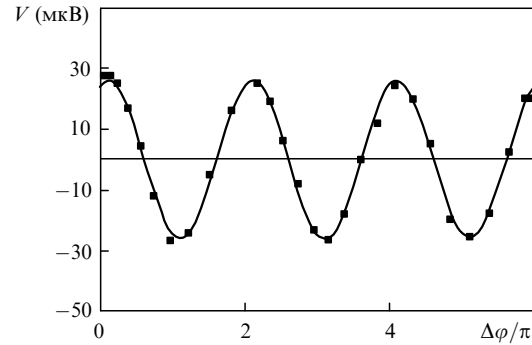


Рис.12. Фазовая зависимость фотонапряжения V , возникающего вследствие бихроматической генерации фототока в объемном образце GaAs [71]. Сплошная кривая – наилучшая синусоидальная аппроксимация экспериментальных данных.

кГц и средней мощности 8 мВт. Аналогичными параметрами обладало излучение на длине волны 1650 нм, вторая гармоника которого использовалась в качестве пробного излучения для регистрации плотности носителей тока. Удвоение частоты излучения происходило в кристалле β -бората бария, а вариация бихроматической фазы $\Delta\varphi$ осуществлялась с помощью интерферометра Майкельсона. На основе измерений были построены зависимости концентрации носителей тока и коэффициента пропускания излучения на длине волны 775 нм от относительной фазы монохроматических компонент. Указанные фазовые зависимости оказались сдвинутыми относительно друг друга на величину $\Delta\varphi_\chi = (0.35 \pm 0.05)\pi$. Анализ, проведенный в статье [72], показал, что сдвиг фаз $\Delta\varphi_\chi$ связан с аргументом комплексной величины $\chi^{(2)}$. Отношение $\text{Im} \chi^{(2)} / \text{Re} \chi^{(2)} = 0.32 \pm 0.06$, определенное на основании этой связи, оказалось близко к теоретическому значению 0.37, полученному в работе [73]. Таким образом, фазовый контроль внутреннего фотоэффекта открывает новые возможности экспериментального определения оптических констант вещества.

4.3. Бихроматический контроль спина носителей тока в полупроводниках

Помимо использования бихроматического возбуждения для когерентного контроля электрического тока и концентрации носителей, представляет большой интерес его применение для управления спином носителей в полупроводниках. Это направление перспективно как с фундаментальной точки зрения – для исследования спиновой динамики в многочастичных системах, так и с прикладной – как возможный механизм оптической обработки и хранения информации [74]. Впервые такого рода контроль в бихроматическом поле с отношением частот 1 : 2 был предложен в работе [75]. В ней идея квантовой интерференции была объединена с идеей оптической генерации спин-поляризованных носителей при воздействии циркулярно поляризованного излучения на полупроводник [76]. Было показано, что при определенной поляризации монохроматических компонент излучения квантовая интерференция одно- и двухфотонного поглощения приводит к возникновению в образце спинового тока, зависящего от относительной фазы, без приложения внешнего напряжения. Характерно, что возбуждение спинового тока может происходить без сопутствующего электрического тока, что позволяет исследовать спиновую динамику в чистом виде. Так, в случае одинаковой круго-

вой поляризации монохроматических составляющих спиновый ток состоит из двух компонент, одна из которых связана с электрическим током, а вторая – нет. Если имеет место линейная взаимно ортогональная поляризация бихроматического излучения, то спиновый ток не сопровождается электрическим, а представляет собой суперпозицию четырех попарно антипараллельных токов. При этом в каждой из двух пар спины носителей, движущихся в противоположных направлениях, ориентированы антипараллельно друг другу. В результате полный электрический ток отсутствует. Перспективность данного способа спинового контроля обусловлена, в частности, возможностью манипуляции спинами носителей в фемтосекундном временном масштабе с использованием сверхкоротких лазерных импульсов.

Схема [75] когерентного контроля спинов носителей тока в полупроводниках была реализована в работе [77]. Наблюдался спин-поляризованный электрический ток в образце арсенида галлия при комнатной температуре, возбуждаемый импульсами лазерного излучения длительностью 150 фс на длинах волн 1550 и 775 нм с одинаковой круговой поляризацией. Регистрировалась компонента электрического тока, перпендикулярная направлению распространения излучения, как функция относительной фазы монохроматических компонент. Полученные результаты подтвердили теоретические выводы статьи [75].

Первая прямая демонстрация когерентной генерации спин-поляризованных носителей при бихроматическом возбуждении полупроводников дана в экспериментах [78, 79]. В работе [78] наблюдалась когерентная генерация и контроль чисто спинового тока при воздействии на слоистую структуру GaAs/AlGaAs излучения на основной частоте ($\lambda_1 = 1420$ нм, длительность импульса 110 фс) и его второй гармоники. В случае линейной взаимно ортогональной ориентации монохроматических составляющих излучения возбужденные носители тока с антипараллельными спинами движутся в противоположных направлениях [75]. В результате за время порядка времени релаксации импульса происходит пространственное разделение областей локализации спинов «вверх» и «вниз». Это пространственное разделение регистрировалось в эксперименте [78] с помощью циркулярно поляризованного пробного излучения, которое избирательно возбуждает носители с заданной проекцией спина. Были получены зависимости пропускания образца τ от бихроматической фазы по обе стороны от области возбуждения (в направлении движения носителей тока) и в области фокального пятна. В соответствии с теоретическими предсказаниями [75] фазовые зависимости τ в точках, удаленных от области возбуждения, оказались промодулированными со сдвигом фаз 180° , а изменение пропускания в области возбуждения не зависело от бихроматической фазы. Таким образом был продемонстрирован когерентный контроль электронов с заданной ориентацией спина, возбуждаемых бихроматическим излучением в полупроводниковой структуре, без возникновения сопутствующего электрического тока.

Прямое наблюдение чисто спинового тока при бихроматическом возбуждении объемного образца ZnSe было проведено в работе [79]. Данный полупроводниковый материал характеризуется большим временем спиновой релаксации даже при относительно высоких температурах, кроме того, ширина его запрещенной зоны (2.72 эВ при

$T = 100$ К) позволяет использовать излучение титан-сапфирового лазера на длине волны 400 нм и его вторую гармонику в качестве накачки. Фазозависимый эффект регистрировался по пространственному смещению сигнала циркулярно поляризованной фотолюминесценции, который в данном случае являлся мерой концентрации носителей заряда с заданной ориентацией спина. Физическим обоснованием этого способа регистрации являются правила отбора для дипольного излучения, которые связывают характер поляризации фотолюминесценции с направлением спина электронов, совершающих оптический переход. В [79] была измерена величина пространственного разделения областей с правой и левой круговыми поляризациями фотолюминесценции как функция относительной фазы монохроматических компонент. Синусоидальный вид этой зависимости свидетельствует о когерентном контроле величины и направления антипараллельных токов носителей с противоположными ориентациями спина.

Эксперименты [69, 71, 78, 79] по когерентному контролю бихроматического возбуждения полупроводников продемонстрировали большие возможности управления динамикой носителей тока с помощью квантовой интерференции амплитуд оптических переходов. Детальная теория этого круга явлений с учетом электронно-дырочного взаимодействия представлена в недавней статье [80]. В частности, было показано, что экситонные эффекты увеличивают вероятность одно- и двухфотонного поглощения и вносят фазовый сдвиг в амплитуды возбуждения электрического и спинового токов.

5. Заключение

Проанализированные в настоящем обзоре работы закладывают теоретический фундамент и дают экспериментальную верификацию базовых принципов когерентного контроля при воздействии бихроматического излучения с кратными частотами на вещество. Лежащая в основе этого контроля квантовая интерференция амплитуд оптического возбуждения позволяет управлять различными характеристиками радиационных процессов путем изменения относительной фазы и поляризации монохроматических компонент излучения. Проведенные к настоящему времени эксперименты продемонстрировали возможность фазового контроля возбуждения атомов в дискретном и непрерывном спектрах, углового и поляризационного контроля фототока из газовой фазы и с поверхности твердых тел, фазового контроля фотодиссоциации и фотоионизации молекул, а также когерентного контроля носителей тока в полупроводниках, включая спиновый контроль.

Отметим, что в работах последнего времени принципы когерентного управления фотопроцессами с помощью бихроматического излучения с кратными частотами переносятся из оптического в другие диапазоны. Так, в работе [81] представлены теоретические и экспериментальные результаты по когерентному контролю ионизации ридберговского состояния атома водорода ($n = 51$) под действием двухчастотного электрического поля (6 и 18 ГГц) с помощью изменения относительной фазы. Эксперимент по определению фазовой зависимости вероятности возбуждения атома гелия из ридберговского состояния 28^3S под действием бихроматического поля того же типа, что и в [81], приведен в статье [82].

6. Литература

1. Манькин Э.А., Афанасьев А.М. *ЖЭТФ*, **52**, 1246 (1967).
2. Шмелев М.Г., Нгуен Хонг Шон, Цуркан Г.И. *Изв. вузов. Сер. Физика*, **28** (1), 84 (1985).
3. Баскин Э.М., Энтин М.В. *Письма в ЖЭТФ*, **48**, 554 (1988).
4. Энтин М.В. *ФТП*, **23**, 1066 (1989).
5. Дианов Е.М., Казанский П.Г., Степанов Д.Ю. *Квантовая электроника*, **16**, 887 (1989).
6. Osterberg U., Margulis W. *Opt. Lett.*, **11**, 516 (1986).
7. Зельдович Б.Я., Чудинов А.Н. *Письма в ЖЭТФ*, **50**, 405 (1989).
8. Баранова Н.Б., Зельдович Б.Я., Чудинов А.Н., Шульгинов А.А. *ЖЭТФ*, **98**, 1857 (1990).
9. Payne M.G., Garrett W.R., Ferrell W.R. *Phys. Rev. A*, **34**, 1143 (1986).
10. Jackson D.J., Wynne J.J. *Phys. Rev. Lett.*, **49**, 543 (1982).
11. Chen C., Yin Y.Y., Elliott D.S. *Phys. Rev. Lett.*, **64**, 507 (1990).
12. Karapanagioti N.E., Xenakis D., Charalambidis D., Fotakis C. *J. Phys. B*, **29**, 3599 (1996).
13. Astapenko V.A. *Laser Phys.*, **14**, 847 (2004).
14. Астапенко В.А., Дозорцев В.Е. *Изв. вузов. Сер. Физика*, **48** (4), 7 (2005).
15. Xenakis D., Karapanagioti N.E., Faucher O., Hertz E., Charalambidis D. *J. Phys. B*, **32**, 341 (1999).
16. Астапенко В.А. *Квантовая электроника*, **35**, 541 (2005).
17. Астапенко В.А. *Квантовая электроника*, **35**, 1138 (2005).
18. Muller H.G., Bucksbaum P.H., Schumacher D.W., Zavriyev A. *J. Phys. B*, **23**, 2761 (1990).
19. Schafer K.J., Kulander K.C. *Phys. Rev. A*, **45**, 8026 (1991).
20. Баранова Н.Б., Бегеров И.М., Зельдович Б.Я. и др. *Письма в ЖЭТФ*, **55**, 431 (1992).
21. Yin Y.Y., Chen C., Elliott D.S., Smith A.V. *Phys. Rev. Lett.*, **69**, 2353 (1992).
22. Cavalieri S., Eramo R., Fini L. *Phys. Rev. A*, **55**, 2941 (1997).
23. Fiferig M., Cionga A. *Eur. Phys. J. D*, **15**, 33 (2001).
24. Fiferig M., Cionga A., Florescu V. *J. Phys. B*, **30**, 2599 (1997).
25. Fiferig M., Cionga A. *J. Phys. B*, **35**, 821 (2002).
26. Амусья М.Я. *Атомный фотоэффект* (М.: Наука, 1987).
27. Astapenko V.A., Buimistrov V.M. *Laser Phys.*, **7** (3), 709 (1997).
28. Pazdersky V.A., Koval A.V. *J. Phys. B*, **38**, 3945 (2005).
29. Zhang J., Li S., Xu Z. *Phys. Rev. A*, **69**, 053410 (2004).
30. Guo D.S., Aberg T., Crasemann B. *Phys. Rev. A*, **40**, 4997 (1989).
31. Baltuska A., Udem Th., Uiberacker M., et al. *Nature*, **421**, 611 (2003).
32. Kuchiev M.Yu., Ostrovsky V.N. *J. Phys. B*, **31**, 2525 (1998).
33. Gribakin G.F., Kuchiev M.Yu. *Phys. Rev. A*, **55**, 3760 (1997).
34. Кельдыш Л.В. *ЖЭТФ*, **47**, 1945 (1964).
35. Kuchiev M.Yu., Ostrovsky V.N. *Phys. Rev. A*, **59**, 2844 (1999).
36. Telnov D.A., Wang J., Chu S.I. *Phys. Rev. A*, **51**, 4797 (1995).
37. Pazdersky V.A., Usachenko V.I., Ushnurtsev A.V. *J. Phys. B*, **34**, 3513 (2001).
38. Demkov Yu.N., Ostrovsky V.N. *Zero-Range Potential and its Applications in Atomic Physics* (New York: Plenum Press, 1988).
39. Астапенко В.А., Бурева Л.А., Лисица В.С. *УФН*, **172**, 155 (2002).
40. Astapenko V.A. *Laser Phys.*, **12**, 1410 (2002).
41. Бункин Ф.В., Казаков А.Е., Федоров М.В. *УФН*, **107**, 559 (1972).
42. Varro S., Ehloltzky F. *J. Phys. B*, **28**, 1613 (1995).
43. Kaminsky J.Z., Jaron A., Ehloltzky F. *J. Phys. B*, **28**, 4895 (1995).
44. Milosevic D.B. *J. Phys. B*, **29**, 875 (1996).
45. Cionga A., Ehloltzky F., Florescu M., Iacomini M. *J. Phys. B*, **34**, 3951 (2001).
46. Milosevic D.B., Ehloltzky F., Piraux B. *J. Phys. B*, **30**, 4347 (1997).
47. Cionga A., Ehloltzky F., Zloh G. *J. Phys. B*, **34**, 2057 (2001).
48. Kracke G., Briggs J.S., Dubois A., et al. *J. Phys. B*, **27**, 3241 (1994).
49. Cionga A., Buica G. *Laser Phys.*, **8**, 164 (1998).
50. Vucic S. *Phys. Rev. A*, **65**, 033421 (2002).
51. Milosevic D.B., Ehloltzky F. *Phys. Rev. A*, **56**, 3879 (1997).
52. Milosevic D.B., Starace A.F. *J. Phys. B*, **32**, 1831 (1999).
53. Milosevic D.B., Ehloltzky F. *Phys. Rev. A*, **58**, 2319 (1998).
54. Jaron A., Kaminski J.Z., Ehloltzky F. *J. Phys. B*, **34**, 1221 (2001).
55. Shapiro M., Hepburn J.W., Brumer P. *Chem. Phys. Lett.*, **146**, 451 (1988).
56. Shapiro M., Brumer P. *Chem. Phys. Lett.*, **126**, 541 (1986).
57. Lu S.-P., Park S.M., Xie Y., Gordon R.J. *J. Chem. Phys.*, **96**, 6613 (1992).
58. Charron E., Giusti-Suzor A., Mies F.H. *Phys. Rev. Lett.*, **71**, 692 (1993).
59. Heather R.W. *Comput. Phys. Commun.*, **63**, 446 (1991).
60. Sheeshy B., Walker B., DiMauro L.F. *Phys. Rev. Lett.*, **74**, 4799 (1995).
61. Astapenko V.A. *Laser Phys.*, **13**, 1506 (2003).
62. Snitman A., Sofer I., Golub I., et al. *Phys. Rev. Lett.*, **76**, 2886 (1996).
63. Shapiro M., Brumer P. *Rep. Prog. Phys.*, **66**, 859 (2003).
64. Astapenko V., Buimistrov V.M. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **3404**, 404 (1997).
65. Astapenko V.A. *Appl. Phys. B*, **68**, 397 (1999).
66. Astapenko V.A., Buimistrov V.M. *J. Phys. D*, **36**, 1 (2003).
67. Анисимов С.И., Бендерский В.А., Фаркаш Д. *УФН*, **122**, 185 (1977).
68. Sturman B.I., Fridkin V.M. *The Photovoltaic and Photorefractive Effects in Noncentrosymmetric Materials* (Philadelphia: Gordon and Breach Science Publ., 1992).
69. Dupont E., Corkum P.B., Liu H.C., et al. *Phys. Rev. Lett.*, **74**, 3596 (1995).
70. Atanasov R., Hache A., Hughes J., et al. *Phys. Rev. Lett.*, **76**, 1703 (1996).
71. Hache A., Kostoulas Y., Atanasov R., et al. *Phys. Rev. Lett.*, **78**, 306 (1997).
72. Fraser J.M., Shkrebtii A.I., Sipe J.E., van Driel H.M. *Phys. Rev. Lett.*, **83**, 4192 (1999).
73. Hughes J.L.P., Sipe J.E. *Phys. Rev. B*, **53**, 10751 (1996).
74. Awschalom D.D., Kikkawa J.M. *Phys. Today*, **52**, 33 (1999).
75. Bhat R.D.R., Sipe J.E. *Phys. Rev. Lett.*, **85**, 5432 (2000).
76. Dyakonov M.I., Perel V.I., in *Optical Orientation*. Ed. by F.Meier, B.Zakharchenya (Amsterdam: Elsevier Science Publ., 1984).
77. Stevens M.J., Smirl A.L., Bhat R.D.R., et al. *J. Appl. Phys.*, **91**, 4382 (2002).
78. Stevens M.J., Smirl A.L., Bhat R.D.R., et al. *Phys. Rev. Lett.*, **90**, 136603-I (2003).
79. Hubner J., Ruhle W.W., Klude M., et al. *Phys. Rev. Lett.*, **90**, 216601-I (2003).
80. Bhat R.D.R., Sipe J.E. *Phys. Rev. B*, **72**, 075205 (2005).
81. Sirko L., Koch P.M. *Phys. Rev. Lett.*, **89**, 274101-I (2002).
82. Koch P.M., Zelazny S.A., Sirko L. *J. Phys. B*, **36**, 4755 (2003).