

**УСПЕХИ ФИЗИЧЕСКИХ НАУК**

539[.184+196]

**ДИНАМИКА ВОЛНОВЫХ ПАКЕТОВ ВЫСОКОВОЗБУЖДЕННЫХ СОСТОЯНИЙ АТОМОВ И МОЛЕКУЛ***И.Ш. Авербух, Н.Ф. Перельман*

(Институт прикладной физики АН Республики Молдова)

## СОДЕРЖАНИЕ

|                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                     |    |
|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| 1. Введение . . . . .                                                                                                                                                                                                                                                                                                               | 41 |
| 2. Долговременная эволюция пакетов стационарных состояний в простейших квантовых системах . . . . .                                                                                                                                                                                                                                 | 43 |
| 2.1. Когерентное и сжатое состояния — пакеты стационарных состояний гармонического осциллятора. 2.2. Классические стадии эволюции, разрушение и возрождение пакетов стационарных состояний ангармонического осциллятора. 2.3. Приготовление и эволюция пакетов стационарных состояний в модельных многоуровневых квантовых системах |    |
| 3. Динамика пакетов высоковозбужденных состояний ридберговских атомов . . . . .                                                                                                                                                                                                                                                     | 56 |
| 4. Долговременная эволюция пакетов электронно-колебательных состояний молекул и лазерная фемтохимия . . . . .                                                                                                                                                                                                                       | 66 |
| 5. Пакеты квантовых состояний электромагнитного поля в нелинейно-оптических системах. Эволюция пакетов стационарных состояний в сильно-связанной системе "атомы + поле" . . . . .                                                                                                                                                   | 73 |
| 6. Заключение . . . . .                                                                                                                                                                                                                                                                                                             | 78 |
| Список литературы . . . . .                                                                                                                                                                                                                                                                                                         | 79 |

**1. Введение**

Можно ли наблюдать движение электрона по кеплеровской орбите вокруг ядра, т.е. можно ли экспериментально реализовать "резерфордовский" атом? Можно ли наблюдать колебания ядер в молекуле, подобные классическим колебаниям точечных частиц, связанных квазиупругой силой? Утвердительный ответ на эти вопросы, как хорошо известно, дает принцип соответствия квантовой механики [1]. Математическим выражением утверждения, что предсказания квантовой теории должны совпадать с предсказаниями классической механики в области справедливости последней, является то, что при достаточно больших энергиях волновые пакеты, состоящие преимущественно из коротковолновых компонент, должны двигаться по законам геометрической оптики [2, 3]. Это означает, в частности, что положение "центра тяжести" пространственно локализованного волнового пакета (среднего значения координаты частицы) должно изменяться во времени согласно уравнению Ньютона

$$M\ddot{\bar{x}} = -\frac{\partial U(\bar{x})}{\partial \bar{x}}; \quad (1)$$

здесь  $M$  — масса частицы,  $x$  — координата "центра тяжести" волнового пакета, движущегося в потенциальном поле  $U(x)$ . Как известно, для применимости уравнения (1) требуется выполнение условия [4]

$$\left| \frac{\partial U(\bar{x})}{\partial \bar{x}} \right| \gg \frac{1}{2} \left| \frac{\partial^3 U(\bar{x})}{\partial \bar{x}^3} \right| \overline{\Delta x^2}, \quad (2)$$

$$\overline{\Delta x^2} = \overline{x^2} - (\bar{x})^2.$$

Горизонтальная черта означает среднее значение величины. Неравенство (2) накладывает ограничение на длительность "классической" динамики пакета. Действительно, с течением времени дисперсия координаты  $\overline{\Delta x^2}$  возрастает вследствие расплывания волнового пакета и условие (2) нарушается. При этом возникает естественный и важный вопрос — каковы закономерности долговременной "пост-классической" эволюции волновых пакетов за пределами динамики по принципу соответствия? До последнего времени эксперимент в области атомной и молекулярной спектроскопии обходил эти фундаментальные вопросы стороной. Несмотря на то, что данные атомной и молекулярной спектроскопии послужили на заре квантовой физики базой для перехода от классических представлений к квантовым, историческим курьезом или, если угодно, некоторой нелогичностью процесса развития физического знания, явилось то, что существующий в то время эксперимент и не мог создать условий для наблюдения эффектов в пограничной между квантовой и классической физикой области. Действительно, методы традиционной оптической спектроскопии имеют, как правило, дело с возбуждением одиночных стационарных (квазистационарных) состояний атомов и молекул. Подобные состояния описывают сугубо квантовые по своей природе объекты. Так, например, ни при каких сколь угодно больших значениях квантовых чисел, отдельное стационарное состояние электрона в кулоновском поле не описывает (даже приближенно) движение локализованной частицы по "кеплеровской" орбите, равно как ни при каком значении квантового числа стационарная волновая функция гармонического осциллятора не описывает гармонические колебания локализованной частицы. Только в последнее время с помощью сверхкоротких оптических импульсов возникла возможность создания когерентных суперпозиций многих высоковозбужденных стационарных состояний атомов и молекул — локализованных волновых пакетов, представляющих собой частицеподобные образования, динамика которых подчиняется квазиклассическим законам.

Таким образом, несмотря на то, что классические представления со времени возникновения квантовой физики широко используются как эвристический базис для понимания квантовых явлений, лишь недавно появились экспериментальные возможности создания и изучения таких объектов как "резерфордовский атом", "классическая молекула" и т.п. Успех в этой области наметился сразу по нескольким направлениям, преследующим различные цели. Во-первых, это совершенствование техники работы с высоковозбужденными ридберговскими атомами и возникновение в связи с этим исследований по возбуждению и многофотонной ионизации ридберговских атомов короткими и сверхкороткими лазерными импульсами. Во-вторых, это прогресс в

развитии так называемой лазерной фемтохимии, одной из главных задач которой является исследование с помощью фемтосекундных оптических импульсов короткоживущих молекулярных комплексов, возникающих на промежуточных стадиях химических реакций. Оба этих направления активно продвигаются в последние несколько лет, как в экспериментальном, так и в теоретическом аспектах, демонстрируя результаты, имеющие общефизическую ценность и позволяющие говорить о появлении нового направления в атомной и молекулярной спектроскопии, исследующего явления в области, пограничной между квантовой и классической физикой.

Обращаясь к истории вопроса, следует отметить, что первые попытки рассмотреть волновые пакеты стационарных состояний квантовых систем, осуществляющих в классическом пределе финитное движение, восходят еще к работам Шрёдингера [5, 6]. Им было введено так называемое когерентное состояние гармонического осциллятора, обладающее минимальной неопределенностью, и поставлена задача об аналогичном волновом пакете для электрона, движущегося по кемеровской орбите в атоме водорода [6]. Усилия по обобщению понятия когерентного состояния на кеплеровскую задачу продолжаются вплоть до последнего времени [7 — 15]. Основной особенностью, осложняющей введение таких состояний в атомной физике, является нелинейность атомного "осциллятора". Проблема эволюции волновых пакетов в нелинейных системах возникла независимо в различных областях квантовой физики. Так в последние годы, как отмечалось выше, практически одновременно активно развернулись теоретические и экспериментальные исследования пакетов высоковозбужденных состояний ридберговских атомов [16 — 48], динамики пакетов колебательных состояний молекул при их импульсном лазерном возбуждении [49 — 86], пакетов квантовых состояний электромагнитного поля, генерируемых в нелинейно-оптических системах [87 — 94], эволюции волновых пакетов в системе "атом + поле" [95 — 97].

Предлагаемый обзор содержит попытку с единых позиций рассмотреть круг вопросов, связанных с этой новой областью оптической спектроскопии. Обсуждаются временные рамки применимости принципа соответствия для описания волновых пакетов и разрушение последних, обусловленное нелинейными эффектами. Рассматривается обнаруженный недавно универсальный механизм "возрождений" волновых пакетов в ходе долговременной эволюции сильно-возбужденных квантовых систем. Проанализирован ряд недавних экспериментов по генерации и детектированию волновых пакетов в ридберговских атомах и молекулах. Демонстрируется тесная связь указанного круга явлений с проблемой генерации неклассических состояний света в нелинейно-оптических системах.

## **2. Долговременная эволюция пакетов стационарных состояний в простейших квантовых системах**

**2.1. Когерентное и сжатое состояния — пакеты стационарных состояний гармонического осциллятора.** Обсудим сначала некоторые общие закономерности, свойственные эволюции пакетов квантовых систем, совершающих финитное движение, спектр которых является дискретным. Простейшей системой такого типа является гармонический осциллятор. Рассмотрим линейную суперпозицию (пакет) стационарных состояний гармонического осциллятора

$$\psi(x,t) = \sum_{n=1}^{\infty} c_n u_n(x) \exp\left(-\frac{i}{\hbar} E_n t\right); \quad (3)$$

здесь  $u_n(x)$  — стационарная волновая функция, отвечающая квантовому числу  $n$  и энергии  $E_n = \hbar\omega(n + 1/2)$ ,  $\omega$  — частота осциллятора,  $c_n$  — произвольные постоянные, зависимость которых от квантового числа  $n$  определяет локализацию пакета в энергетическом пространстве. Если выбрать  $c_n$  в виде

$$c_n = \exp\left(-\frac{1}{2} |\alpha|^2\right) \frac{\alpha^n}{(n!)^{1/2}}, \quad (4)$$

то пакет (3) представляет собой так называемое когерентное состояние гармонического осциллятора [3]. С учетом (4) суммирование в (3) проводится явно. При  $t = 0$  и вещественном  $\alpha$  это суммирование дает следующий результат:

$$\psi(x,0) = \left(\frac{1}{\pi\sigma^2}\right)^{1/4} \exp\left[-\frac{1}{2\sigma^2} \cdot (x - \sqrt{2}\alpha\sigma)^2\right]; \quad (5)$$

здесь  $\sigma = (\hbar/M\omega)^{1/2}$ ,  $M$  — масса осциллятора. Волновая функция  $\psi(x,0)$  представляет собой собственную функцию основного состояния осциллятора, смещенную из положения равновесия, относительно которого она центрирована, в положение  $x_{\max} = \sqrt{2}\alpha\sigma$  без изменения формы (волновой пакет гауссовской формы с дисперсией порядка амплитуды нулевых колебаний осциллятора). Эволюция такого пакета согласно правилам квантовой механики определяется формулой

$$\psi(x,t) = \int dx' G(x,t; x',0) \psi(x',0), \quad (6)$$

где  $G(x,t; x',0)$  — функция Грина гармонического осциллятора [98]:

$$G(x,t; x',0) = \left(\frac{M\omega}{2\pi i \hbar \sin \omega t}\right)^{1/2} \times \\ \times \exp\left\{\frac{iM\omega}{2\hbar \sin \omega t} [(x^2 + x'^2) \cos \omega t - 2xx']\right\}. \quad (7)$$

С помощью (5) — (7) нетрудно получить для плотности вероятности распределения координаты осциллятора следующее выражение [99, 100]

$$|\psi(x,t)|^2 = \left(\frac{1}{\pi\sigma^2}\right)^{1/2} \exp\left[-\frac{1}{\sigma^2} (x - \bar{x}(t))^2\right]. \quad (8)$$

Среднее значение координаты осциллятора  $\bar{x}(t)$  периодически зависит от времени с периодом классического движения  $T = 2\pi/\omega$ :

$$\bar{x}(t) = \int dx x \psi^*(x,t) \psi(x,t) = x_{\max} \cos \omega t. \quad (9)$$

Таким образом когерентное состояние (3), (4) представляет собой пространственно локализованный гауссовский волновой пакет с характерным раз-

мером локализации  $\sigma$ . Центр тяжести этого пакета, согласно (9), совершает гармонические колебания в соответствии с классическим уравнением движения. Как правило, колебания частицы в потенциальной яме становятся квазиклассическими при больших значениях амплитуды смещения. Заметим, однако, что выражение (9) является точно справедливым при любых  $\alpha$ . Этот факт является спецификой гармонического осциллятора, для которого условие (2) классичности движения центра тяжести волнового пакета выполняется автоматически ( $\partial^3 U(\bar{x})/\partial \bar{x}^3 = 0$ ). Неопределенности координаты и импульса осциллятора  $\Delta x = [\bar{x}^2 - (\bar{x})^2]^{1/2}$ ,  $\Delta p = [\bar{p}^2 - (\bar{p})^2]^{1/2}$  в когерентном состоянии не зависят от времени и равны соответственно

$$\Delta x = \frac{\sigma}{\sqrt{2}}, \quad \Delta p = \frac{\hbar}{\sqrt{2}\sigma},$$

причем произведение  $\Delta p \cdot \Delta x = \hbar/2$  принимает минимальное значение. Это означает, что пакет (3), (4) совершает эволюцию не расплываясь ни при каких, сколь угодно больших, временах. Условия квазиклассичности  $\alpha \gg 1$  означает, очевидно, что степень пространственной локализации пакета ( $\sim \sigma$ ) много меньше размера классической орбиты  $L = 2^{3/2}\alpha\sigma$ , отвечающей энергии

$$E = M\omega^2/2 \cdot (L/2)^2 = \alpha^2 \hbar \omega.$$

При этом в сумме (3) наибольший вклад дают слагаемые с  $n \sim \bar{n} = \alpha^2 \gg 1$ , так как распределение  $c_n$  имеет вид, близкий к гауссовскому с дисперсией  $\Delta n \sim \alpha \sim (\bar{n})^{1/2} \gg 1$ . Итак, для обеспечения сильной локализации пакета в пространстве число  $\Delta n$  состояний, формирующих пакет, должно быть достаточно велико. В классическом пределе  $\Delta n \sim (\bar{n})^{1/2} \rightarrow \infty$ . Отметим, что пакеты, составленные из небольшого числа состояний, демонстрируют неклассическое поведение и при весьма больших значениях  $\bar{n}$  [101].

В последние годы интенсивно изучаются так называемые "сжатые" состояния света [102], которые являются пакетами стационарных состояний осциллятора квантованного электромагнитного поля. В сжатых состояниях, в отличие от когерентных, дисперсия координаты (и импульса) периодически зависит от времени и может принимать значения, меньшие амплитуды нулевых колебаний. Это их свойство привлекает внимание с точки зрения понижения квантовых шумов в измерительных системах и системах передачи информации. Сжатое состояние можно получить, если, например, выбрать коэффициенты  $c_n$  в формуле (3) в виде [103 — 105]

$$c_n = \left( \frac{\kappa^2 - 1}{\kappa^2} \right)^{1/4} \frac{\kappa^{-n/2}}{\sqrt{2}^n n!} H_n \left( \frac{\kappa + 1}{\sqrt{2}\kappa} \right) \exp \left( - \frac{\kappa + 1}{2\kappa} \alpha^2 \right); \quad (10)$$

здесь  $H_n(z)$  — полином Эрмита. Параметр  $\kappa$  характеризует степень "сжатия". При  $t = 0$  прямое суммирование в (3) с учетом (10) дает [104]

$$\psi(x, 0) = \left( \frac{1}{\pi\sigma^2} \right)^{1/4} \left( \frac{\kappa + 1}{\kappa - 1} \right)^{1/4} \exp \left[ - \frac{(x - \sqrt{2}\alpha\sigma)^2}{2\sigma^2 \cdot (\kappa - 1)/(\kappa + 1)} \right]. \quad (11)$$

Функция  $\psi(x,0)$  представляет собой гауссиан, полученный смещением основного состояния осциллятора на величину  $\sqrt{2}\alpha\sigma$ , дисперсия которого сжата в

$$\left(\frac{\kappa+1}{\kappa-1}\right)^{1/2} \text{ раз.}$$

Таким образом неопределенность координаты "сжатого" состояния (11), в отличие от когерентного состояния, меньше амплитуды нулевых колебаний осциллятора. Очевидно, в состоянии (11)

$$x = \sqrt{2}\alpha\sigma, \quad \Delta x = \frac{\sigma}{\sqrt{2}} \left(\frac{\kappa-1}{\kappa+1}\right)^{1/2}, \quad \Delta p = \frac{\hbar}{\sqrt{2}\sigma} \left(\frac{\kappa+1}{\kappa-1}\right)^{1/2},$$

т.е. при сохранении минимальной неопределенности  $\Delta p \cdot \Delta x = \hbar/2$  "сжатие"  $\Delta x$  приводит к соответствующему увеличению неопределенности импульса. При  $\kappa \rightarrow \infty$  сжатое состояние переходит в когерентное состояние. Степень сжатия максимальна при  $\kappa \rightarrow 1$ . Эволюция сжатого состояния при  $t > 0$  определяется формулами (6), (7), (11). Для плотности вероятности распределения координаты осциллятора в сжатом состоянии нетрудно с помощью этих формул получить [99, 105]

$$|\psi(x,t)|^2 = \left(\frac{1}{\pi\sigma^2}\right)^{1/4} (\text{ch } 2r_0 - \text{sh } 2r_0 \cdot \cos 2\omega t)^{-1/2} \times \\ \times \exp\left[-\frac{(x - \bar{x}(t))^2}{\sigma^2(\text{ch } 2r_0 - \text{sh } 2r_0 \cdot \cos 2\omega t)}\right], \quad (12)$$

$$r_0 = \frac{1}{2} \ln \frac{\kappa+1}{\kappa-1}.$$

Таким образом сжатое состояние эволюционирует, сохраняя форму гауссовского волнового пакета, параметры которого периодически зависят от времени.

Центр тяжести этого пакета движется по классической траектории (9), как и в случае когерентного состояния, но, в отличие от него, неопределенности координаты и импульса периодически изменяются [105]

$$\Delta x = \frac{\sigma}{\sqrt{2}} \cdot (\text{ch } 2r_0 - \text{sh } 2r_0 \cdot \cos 2\omega t)^{1/2}, \\ \Delta p = \frac{\hbar}{\sqrt{2}\sigma} (\text{ch } 2r_0 + \text{sh } 2r_0 \cdot \cos 2\omega t)^{1/2}, \quad (13)$$

достигая максимумов и минимумов в противофазе. При этом в течение каждого периода величины  $\Delta x$  и  $\Delta p$  достигают значений, меньших соответствующих значений в когерентном состоянии. Это свойство неопределенности координаты и импульса в сжатом состоянии представляет, по существу, макроскопический квантовый эффект, поскольку он проявляется при любой, сколь угодно большой, амплитуде колебаний центра тяжести пакета.

Величина  $|c_n|^2$  представляет собой распределение колебательных квантов

в пакете стационарных состояний (3). В когерентном состоянии это — распределение Пуассона (см. (4)). В сжатом состоянии (см. (10)) распределение уже пуассоновского (субпуассоновская статистика квантов), а при сильном сжатии ( $\kappa \rightarrow 1$ ) оно становится пульсирующей функцией числа квантов  $n$ . Свойства распределения числа фотонов для света в сжатом состоянии подробно проанализированы в [104].

**2.2.** Классические стадии эволюции, разрушение и возрождение пакетов стационарных состояний ангармонического осциллятора. Перейдем к рассмотрению финитного одномерного движения высоковозбужденных волновых пакетов в ангармоническом потенциале. В области энергий  $E$ , отвечающих большим квантовым числам, энергетический спектр является квазиэквидистантным, причем частотное расстояние  $\omega_{n+1,n} = (1/\hbar)(E_{n+1} - E_n)$  между соседними энергетическими уровнями определяется обратным периодом классического движения  $T_{cl}$ :

$$\omega_{n+1,n} \approx \omega_{cl}(E) = \frac{2\pi}{T_{cl}(E)}. \quad (14)$$

На временах, много меньших периода классических колебаний  $T_{cl}$ , дискретность спектра несущественна и первоначально пространственно локализованный пакет перемещается по классической траектории, вообще говоря, расплываясь, подобно тому как расплывалось сжатое состояние (12). Однако такое уширение не является необратимым, как в случае свободного либо инфинитного движения, и пакет почти полностью восстанавливает свою форму спустя период  $T_{cl}$  из-за квазиэквидистантного характера энергетического спектра состояний, из которых он составлен. Такое соответствие между квантовым и классическим описанием не сохраняется, однако, сколь угодно долго, как в случае гармонического осциллятора. При долговременной эволюции пакета неизбежно проявляется слабая в области высоких возбуждений неэквидистантность уровней, обусловленная зависимостью  $\omega_{cl}$  от энергии

$$\omega_{n+1,n} - \omega_{n,n-1} \approx \hbar \omega_{cl} \frac{\partial \omega_{cl}}{\partial E}. \quad (15)$$

Возникающая при этом расфазировка вкладов различных стационарных состояний в суперпозицию вида (3) приводит к развалу пакета спустя много классических периодов, накладывая тем самым ограничение на длительность "классической" эволюции пакета:

$$t \ll T_{cl} \left( \hbar \left| \frac{\partial \omega_{cl}}{\partial E} \right| \right)^{-1}. \quad (16)$$

Возникает естественный вопрос о закономерностях эволюции пакета на долговременных "пост-классических" стадиях. Довольно общий ответ на этот вопрос состоит в том, что указанная расфазировка не является полностью необратимой и на временных масштабах, много больших  $T_{cl}$ , пакет почти

точно восстанавливает свою форму и вновь эволюционирует некоторое время по "классическим" законам. Необходимость такого поведения волновых пакетов в квантовых системах с произвольным дискретным спектром может быть доказана в общем виде с помощью следующих рассуждений [106]. Пр продемонстрируем, что для квантовой системы с дискретным спектром волновой пакет вида (3) является почти периодической функцией времени. Иными словами, убедимся, что для любого, сколь угодно малого,  $\varepsilon > 0$  существует достаточно плотный набор времен  $\{\tau_\varepsilon\}$  такой, что для каждого  $\tau_\varepsilon$  из этого набора

$$\int dx |\psi(x, t + \tau_\varepsilon) - \psi(x, t)|^2 < \varepsilon \quad (17)$$

для всех  $t$ . Действительно, используя ортонормируемость стационарных состояний  $u_n(x)$  и нормированность волновой функции пакета в целом,

$$\sum_{n=1}^{\infty} |c_n|^2 = 1, \quad (18)$$

нетрудно получить

$$\int dx |\psi(x, t + \tau) - \psi(x, t)|^2 = 2 \sum_{n=1}^{\infty} |c_n|^2 \left[ 1 - \cos \left( \frac{1}{\hbar} E_n \tau \right) \right]. \quad (19)$$

Из (18) следует, что для любого малого  $\varepsilon > 0$  найдется такое значение  $n(\varepsilon) = n_0$ , что

$$\sum_{n=n_0+1}^{\infty} |c_n|^2 < \frac{\varepsilon}{8}.$$

Следовательно

$$\sum_{n=n_0+1}^{\infty} |c_n|^2 \left[ 1 - \cos \left( \frac{1}{\hbar} E_n \tau \right) \right] \leq 2 \sum_{n=n_0+1}^{\infty} |c_n|^2 < \frac{\varepsilon}{4}. \quad (20)$$

Для оставшейся конечной суммы периодических функций справедливо утверждение [107] о том, что для любого  $\varepsilon > 0$  существует достаточно плотный набор  $\{\tau_\varepsilon\}$ , такой, что

$$\sum_{n=1}^{n_0} |c_n|^2 \left[ 1 - \cos \left( \frac{1}{\hbar} E_n \tau_\varepsilon \right) \right] < \frac{\varepsilon}{4}. \quad (21)$$

Использование неравенств (20) и (21) с учетом (19) доказывает справедливость (17).

Таким образом отсутствие истинной необратимости в системах с дискретным спектром приводит, рано или поздно, к сколь угодно точному восстановлению исходного пакета. Приведенное рассуждение ничего не говорит, однако, о структуре волновой функции на промежуточных стадиях. Весьма удивительный факт, обнаруженный нами недавно [31, 32], состоит в том, что для широкого класса физических систем долговременная эволюция квазиклассических пакетов протекает (после этапа динамики по принципу соответствия) по универсальному сценарию, не зависящему ни от формы пакета,



ни от конкретной физической природы объекта. В ходе этого сценария волновая функция системы наряду с почти полным "возрождением" начального пакета претерпевает детерминированную последовательность изменений, отвечающих возникновению регулярно организованных структур из сгущений плотности вероятности с высокой степенью локализации. Форма каждого из этих сгущений однозначно определяется формой исходного волнового пакета. Образующиеся регулярные структуры являются чисто квантовыми объектами, не имеющими классических аналогов даже при очень больших энергиях и макроскопических размерах. В этом смысле можно говорить о новом макроскопическом квантовом эффекте.

Остановимся на этом вопросе подробнее. Рассмотрим вновь волновой пакет вида (3), составленный из высоковозбужденных дискретных состояний квантовой системы, осуществляющей финитное движение в области энергий  $E \approx E_{\bar{n}} (\bar{n} \gg 1)$ , в которой классическая динамика отвечает регулярному периодическому движению. Будем считать, что в момент  $t = 0$  пакет является сильно локализованным в пространстве (его пространственный размер  $\Delta x$  много меньше характерного размера  $L$  классической орбиты, отвечающей  $E \approx E_{\bar{n}}$ ). Из соотношения неопределенностей следует, что энергетическая ширина пакета  $\Delta E$  порядка

$$\Delta E \simeq v \Delta p \simeq \hbar \omega_{cl} \frac{L}{\Delta x},$$

где  $v, \Delta p$  — характерные значения скорости и неопределенности импульса. Это значит, что распределение  $|c_n|^2$ , имеющее острый максимум при  $n \approx \bar{n}$ , обладает шириной

$$\Delta n \simeq \frac{\Delta E}{\hbar \omega_{cl}} \simeq \frac{L}{\Delta x} \gg 1.$$

Для когерентного состояния гармонического осциллятора  $L \simeq (E_{\bar{n}}/M\omega^2)^{1/2}$ ,  $\Delta x \sim (\hbar/M\omega)^{1/2}$ , что дает оценку  $\Delta n \simeq (\bar{n})^{1/2}$ , совпадающую, естественно, с полученной выше с учетом явного выражения для волновой функции когерентного состояния. Таким образом, мы вновь убеждаемся, что сильно локализованный частицеподобный пакет должен состоять из большого числа стационарных состояний, тем большего, чем сильнее локализован пакет.

Учитывая слабую неэквидистантность уровней квантовой системы в области больших значений  $\bar{n}$ , можно энергию в районе  $E \simeq E_{\bar{n}}$  представить в виде

$$E \approx E_{\bar{n}} + 2\pi\hbar \frac{(n - \bar{n})}{T_{cl}} \pm 2\pi\hbar \frac{(n - \bar{n})^2}{T_{rev}} + \dots, \quad (22)$$

где  $\pm$  отвечает знаку  $\partial\omega_{cl}/\partial E$ , а

$$T_{rev} = 2T_{cl} \left( \hbar \left| \frac{\partial\omega_{cl}}{\partial E} \right| \right)^{-1}. \quad (23)$$

Здесь наряду с классическим периодом  $T_{cl}$  возник дополнительный, чисто "квантовый" временной масштаб  $T_{rev} \gg T_{cl}$ , который играет существенную роль в долговременной эволюции волновых пакетов. При

$$t/T_{cl} \ll \frac{1}{\hbar^2} \left| \frac{\partial}{\partial E} \left( \omega_{cl} \frac{\partial \omega_{cl}}{\partial E} \right) \right|^{-1}$$

можно ограничиться приведенными в (22) членами разложения и представить волновую функцию пакета в виде

$$\psi(x,t) \approx \sum_k c_k u_k(x) \cdot \exp[-2\pi i(k t/T_{cl} + k^2 t/T_{rev})], \quad (24)$$

$$k = n - \bar{n};$$

здесь и ниже энергия отсчитывается от  $E_n$  и, для определенности положено, что  $\partial \omega_{cl}/\partial E > 0$ . На временах  $T_{cl} \lesssim t \ll T_{rev}$  слагаемые, пропорциональные  $k^2$  в показателе экспоненты в (24), можно отбросить и временной масштаб  $T_{rev}$  не проявляется. При этом  $\psi(x, t + T_{cl}) = \psi(x, t)$ . Таким образом, спустя время, равное классическому периоду колебаний  $T_{cl}$ , пакет, осуществив движение по классической траектории, возвращается в прежнее положение в неизменном виде. По существу, это означает, что эволюция пакета осуществляется по принципу соответствия. Далее с течением времени начинает играть роль расфазировка отдельных слагаемых в суперпозиции (24), обусловленная квадратичными по  $k$  членами. Нетрудно убедиться, что такая расфазировка для пакета, составленного из  $\Delta n$  уровней, происходит на временах

$$t \sim \frac{T_{rev}}{(\Delta n)^2}.$$

При этом дополнительный набег фазы между различными составляющими пакета (24) (в пределах его энергетической ширины  $\Delta E \sim \hbar \omega_{cl} \Delta n$ ) оказываются порядка единицы. Расфазировка приводит к развалу пакета спустя много периодов классического движения, т.е. к ограничению длительности классической стадии эволюции пакета.

Однако, как было показано выше, в системе с дискретным спектром энергии эволюция волнового пакета не может быть полностью необратимой. И в самом деле, при  $t = T_{rev}$  дополнительные фазы, обусловленные квадратичными по  $k$  слагаемыми, в точности кратны  $2\pi$ , что означает полное восстановление исходного пакета. Очевидно, что при  $t \gtrsim T_{rev}$  классическая эволюция пакета возрождается вновь. Это обстоятельство было названо возрождением (revival) пакета [16].

Для ответа на вопрос, какова структура волновой функции при промежуточных временах  $T_{cl} \ll t \lesssim T_{rev}$ , исследуем форму пакета (24) при  $t/T_{rev} \approx m/n$ , где  $m$  и  $n$  — целые числа,  $m/n$  — несократимая дробь. Дополнительные набег фаз, обусловленные слагаемыми, пропорциональными  $k^2$ ,

равны при этом  $2\pi\Theta_k$ ,  $\Theta_k = \{mk^2/n\}$ . Здесь фигурные скобки означают дробную часть аргумента. Непосредственно можно убедиться, что величины  $\Theta_k$  образуют периодические последовательности с периодом  $l_0$ , зависящим только от знаменателя дроби  $n$

$$\Theta_{k+l_0} = \Theta_k;$$

$l_0 = n/2$  при  $n$  делящихся на 4,  $l_0 = n$  при всех остальных случаях.

Периодические последовательности  $\exp(-2\pi i\Theta_k)$  можно разложить по  $l_0$  фундаментальным последовательностям, обладающим тем же периодом

$$\exp(-2\pi i\Theta_k) = \sum_{s=0}^{l_0-1} a_s \exp(-2\pi i s k / l_0), \quad (25)$$

$$a_s = \frac{1}{l_0} \sum_{k=0}^{l_0-1} \exp\left(-2\pi i\Theta_k + 2\pi i \frac{s k}{l_0}\right). \quad (26)$$

Подставляя (25), (26) в (24), имеем

$$\psi(x,t) = \sum_{s,k} c_k a_s u_k(x) \cdot \exp -2\pi i k t / T_{cl} - 2\pi i \frac{s k}{l_0}, \quad (27)$$

или

$$\psi(x,t) = \sum_{s=0}^{l_0-1} a_s \psi_{cl}(x, t + \frac{s}{l_0} T_{cl}), \quad (28)$$

где через  $\psi_{cl}(x,t)$  обозначено

$$\psi_{cl}(x,t) = \sum_k c_k u_k(x) \exp\left(-2\pi i k \frac{t}{T_{cl}}\right). \quad (29)$$

Выражение (29) описывает, как следует из предыдущего, "классическим" образом эволюционирующий пакет. Можно показать, что число ненулевых коэффициентов  $a_s$  в формуле (28) равно  $q = (n/4)[3 - (-1)^n]$ , причем все они равны по модулю.

Итак, для любого рационального числа  $m/n$  вблизи  $t \approx T_{rev}(m/n)$  исходный пакет разбивается на  $q$  пространственно разделенных пакетов-фракций, осуществляющих движение по классическим законам со временным сдвигом на  $q$ -ю часть классического периода друг относительно друга. Такая структура была названа в [31, 32] дробным возрождением порядка  $m/n$ . Естественно, она будет хорошо выражена, если отдельные фракции не перекрываются, т.е. при  $q < L/\Delta x \sim \Delta n$ . Чем лучше выполнены условия классичности исходного пакета, тем более высокий порядок расщепления можно наблюдать.

Рассмотрим несколько конкретных структур. Простейшая из них возникает при  $t \approx T_{rev}/2$ . При этом  $a_0 = 0$ ,  $a_1 = 1$  и

$$\psi(x,t) = \psi_{cl}(x, t + \frac{1}{2} T_{cl}), \quad (30)$$

что представляет собой исходный пакет, сдвинутый по времени на половину классического периода.

Вблизи  $t \approx T_{\text{rev}}/4$

$$\psi(x,t) = \frac{1}{\sqrt{2}} \left[ \exp(-i\frac{\pi}{4}) \psi_{\text{cl}}(x,t) + \exp(+i\frac{\pi}{4}) \psi_{\text{cl}}(x,t + \frac{1}{2} T_{\text{cl}}) \right]. \quad (31)$$

Выражение (31) описывает существенно неклассический объект, представляющий собой суперпозицию двух коррелированных локализованных пакетов, макроскопически разделенных на длинах порядка размера классической орбиты. Отметим, что аналогичная структура возникает при  $t \approx 3T_{\text{rev}}/4$ .

При  $t \approx T_{\text{rev}}/3$  волновая функция принимает вид

$$\psi(x,t) = \frac{1}{3} \left[ 1 + 2\exp\left(-\frac{2\pi i}{3}\right) \right] \left[ \psi_{\text{cl}}(x,t) + \exp\left(\frac{2\pi i}{3}\right) \left( \psi_{\text{cl}}(x,t + \frac{1}{3} T_{\text{cl}}) + \psi_{\text{cl}}(x,t + \frac{2}{3} T_{\text{cl}}) \right) \right]. \quad (32)$$

Такого рода структуры, состоящие из трех пакетов, возникают также при  $t/T_{\text{rev}} \approx 1/6, 2/3, 5/6$ .

Проиллюстрируем описанные закономерности на примере ангармонического осциллятора с потенциальной энергией вида

$$U(x) = \frac{1}{2} M\omega^2 x^2 + \Gamma x^4. \quad (33)$$

Собственные состояния и энергетический спектр такого осциллятора хорошо изучены. В случае слабого ангармонизма ( $\eta = \Gamma(\hbar/M^2\omega^3) \ll 1$ ) справедливо выражение [108]

$$E_n \approx \hbar\omega \left[ \left( n + \frac{1}{2} \right) + \frac{3}{2} \eta \left( n + \frac{1}{2} \right)^2 + \frac{3}{8} \eta \right]. \quad (34)$$

Весьма наглядное представление об эволюции волновых пакетов в этой системе в квазиклассических условиях можно получить при помощи вигнеровской функции распределения [109]  $P_W(x,p,t)$ , определенной в фазовом пространстве

$$P_W(x,p,t) = \frac{1}{\pi\hbar} \int_{-\infty}^{+\infty} dy \psi^*(x+y,t) \psi(x-y,t) \exp\left(\frac{2\pi i p y}{\hbar}\right). \quad (35)$$

На рис. 1 приведены результаты численных расчетов [32, 47], изображающие распределение  $P_W(x,p,t)$  в начальный момент времени (исходный волновой пакет задавался в виде когерентного состояния гармонического осциллятора (3), (4)), а также в последующие моменты, отвечающие дробным возрождениям различного порядка. Гладкие горбы вигнеровской функции распределения отвечают расщеплению исходного пакета, локализованные сильно осцил-

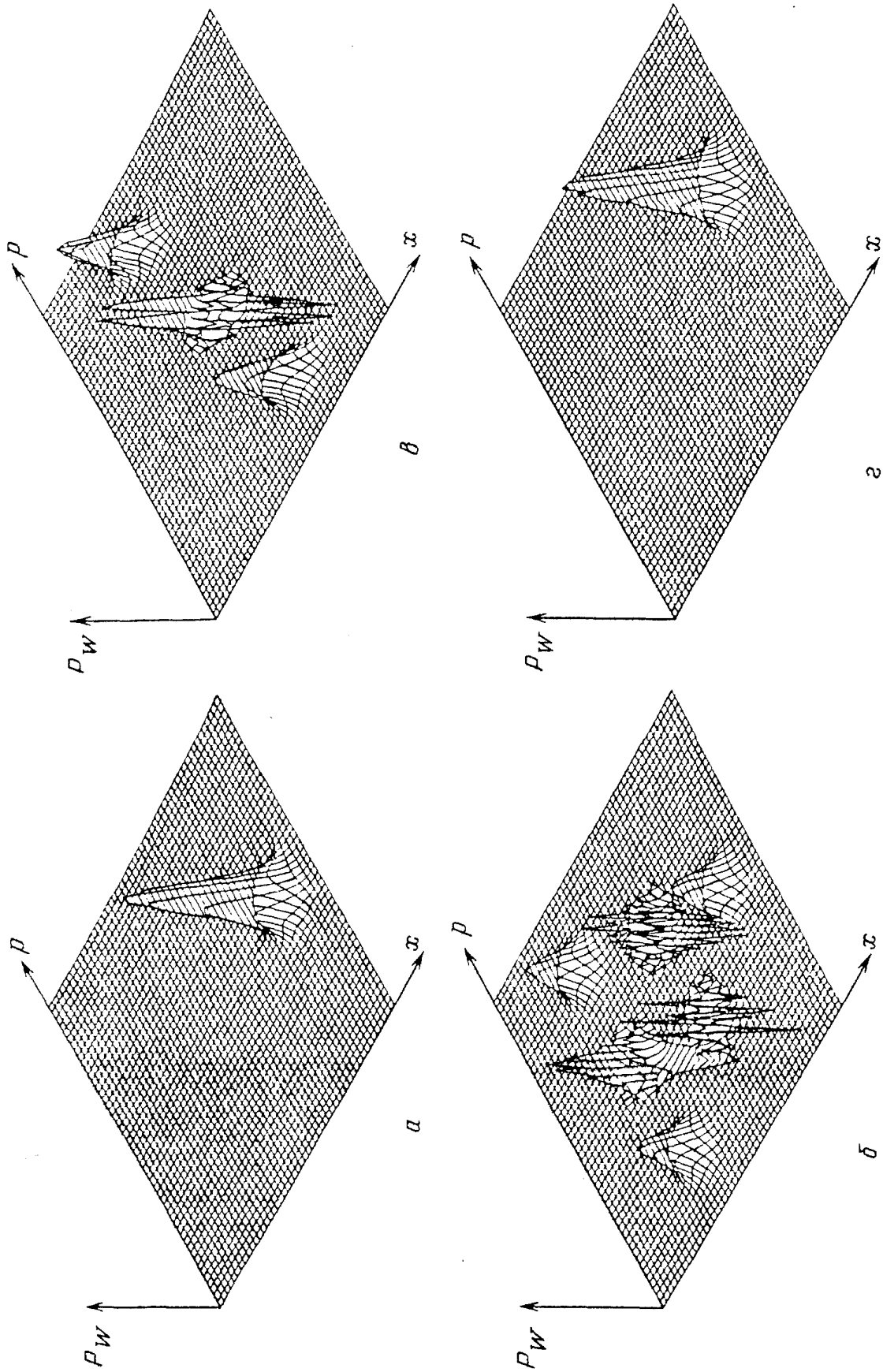


Рис. 1. Вигнеровская функция распределения ангармонического осциллятора (по [32, 47]).  $\eta = 0,001$ ,  $T_{rev} = 667T_{cl}$ ,  $\alpha = 5$ .  $a - t/T_{cl} = 0$ .  $б - t/T_{cl} = 111$ .  $в - t/T_{cl} = 166$ .  $г - t/T_{cl} = 333$

лирующие всплески на фазовой плоскости возникают из-за интерференции между различными пакетами-фракциями и не имеют классических аналогов.

**2.3. Приготовление и эволюция пакетов стационарных состояний в модельных многоуровневых квантовых системах.** Многие особенности динамики и генерации волновых пакетов в различных физических системах (атомах, молекулах) отражаются в простейшей модельной системе, которая неоднократно применялась в теории многофотонной ионизации атомов и молекул [110 — 114]. Эта же модель использовалась ранее для описания безызлучательных переходов в сложных молекулах [115 — 118]. Рассмотрим квантовую систему, возбуждаемую из основного состояния  $|0\rangle$  в группу уровней  $|n\rangle$  с энергиями  $E_n$  с помощью лазерного импульса с огибающей  $f(t)$ . Амплитуды вероятности  $a_n$  нахождения системы в состояниях  $|n\rangle$  подчиняются в резонансном приближении уравнениям

$$i\hbar\dot{a}_0 = \sum_n V_{0n}(t)a_n, \quad (36)$$

$$i\hbar\dot{a}_n = \Delta_n a_n + V_{n0}(t)a_0,$$

здесь  $\Delta_n = (E_n - \bar{E})/\hbar$ ,  $\bar{E}$  — энергия, отвечающая резонансу с основным состоянием, составной матричный элемент  $V_{0n}(t) \sim [f(t)]^{k_0}$ , где  $k_0$  — степень фотонности перехода из основного состояния в группу уровней  $|n\rangle$ . Решение задачи (36) при произвольной зависимости  $f(t)$  неизвестно, однако можно выделить три различных режима возбуждения, при которых возможно предсказать поведение системы.

1. Пусть импульс достаточно длинный, так что спектральная ширина  $\hbar/\tau$  ( $\tau$  — длительность импульса) возмущения  $V_{0n}(t)$  много меньше энергетического расстояния  $\delta$  между возбужденными уровнями в окрестности резонанса. Пусть также  $|V_{0n}| \ll \delta$ . В этом случае в ходе возбуждения системы осуществляется переход только на один резонансный уровень. Система описывается двухуровневой моделью, в ней происходят рабиевские биения [119] между основным и резонансным возбужденным уровнем. Если возбужденный уровень ионизируется тем же импульсом, то процесс многофотонной ионизации через это промежуточное состояние носит резонансный характер [113, 118].

2. Пусть импульс по-прежнему слабый ( $|V_{0n}| \ll \delta$ ), но достаточно короткий  $\hbar/\tau \gtrsim \delta$ . Тогда амплитуда  $\bar{a}_n$  вероятности нахождения в состоянии  $|n\rangle$  после окончания импульса равна

$$|\bar{a}_n| \approx \frac{1}{\hbar} \left| \int_{-\infty}^{+\infty} dt V_{0n}(t) \exp(i\Delta_n t/\hbar) \right|, \quad (37)$$

а волновая функция системы представляет собой пакет  $\sum_n \bar{a}_n \exp(-iE_n t/\hbar) |n\rangle$ . Если энергетический спектр в окрестности  $\bar{E}$  имеет

квазиэквиливантный характер ( $E_n \approx \bar{E} + n\delta$ ), а матричный элемент  $V_{0n}$  слабо зависит от  $n$ , то в случае однофотонного возбуждения  $\ddot{a}_n$  определяется Фурье-образом  $f_n$  огибающей импульса  $f(t)$ . Временную динамику образовавшегося пакета можно проследить по временной зависимости послесвечения системы с переходом на нижележащий уровень, либо по зависимости от времени сигнала ионизации дополнительным лазерным полем. Если матричный элемент перехода в конечное состояние слабо зависит от энергии, то мгновенная скорость радиационного (либо ионизационного) процесса пропорциональна

$$I(t) \propto \left| \sum_n f_n \exp(in\delta t/\hbar) \right|^2 \quad (38)$$

и определяется квантовыми биениями большого числа переходов. Если  $\hbar/\tau \gg \delta$ , то, в отличие от обычных квантовых биений, связанных с когерентным заселением небольшого числа уровней [120], в моменты времени  $t = 2\pi n\hbar/\delta$  интенсивность процесса  $I(t)$  испытывает резкие всплески (рекурренции). Их возникновение аналогично появлению резких дифракционных пиков при рассеянии волн на дифракционной решетке, содержащей большое число штрихов [121]. Вблизи  $n$ -й рекурренции суммирование в (38) можно заменить интегрированием, и, как следует из (37), (38), форма каждого пика свечения (ионизации) воспроизводит форму исходного возбуждающего импульса [16, 121].

3. Если импульс возбуждения достаточно сильный ( $|V_{0n}| \gg \delta$ ) и длинный, то образование пакета уже не описывается теорией возмущений. Возникающие здесь особенности можно проследить для случая ступенчатого возбуждения, которое скачком включается при  $t = 0$  и остается далее неизменным. На временах  $t \ll \hbar/\delta$  импульс "не различает" дискретного характера энергетического спектра и "воспринимает" уровни  $E_n$  как континуум с плотностью состояний  $\rho = \frac{1}{\delta}$ . При этом основное состояние опустошается по экспоненциальному закону [115 — 118]

$$|a_0(t)|^2 = \exp(-\gamma t), \quad (39)$$

где величина ( $|V_{0n}| \equiv V$ )

$$\gamma = 2\pi V^2 \rho / \hbar = \frac{2\pi V^2}{\hbar \delta}$$

определяется "золотым правилом" квантовой механики. Таким образом возникает масштаб времени  $\gamma^{-1}$ , в течение которого из возбужденных состояний образуется пакет "опустошения". Дискретность спектра приводит к тому, что вблизи моментов времени  $t \rightarrow n\hbar/\delta$  система с заметной вероятностью вновь оказывается в основном состоянии. В случае точной эквидистантности возбужденных уровней и независимости величины матричного элемента перехода

от номера уровня (модель Биксона—Джортнера [115]) известно точное решение для временной зависимости  $a_0(t)$  [122, 123]

$$a_0(t) = \sum_{n=0}^{\infty} \exp(-in\Delta_0 t/\hbar) \exp[-\gamma(t - n\xi)/2] L_n(\gamma(t - n\xi)) \Theta(t - n\xi), \quad (40)$$

где  $\xi = 2\pi\hbar/\delta$ ,  $\Theta(z)$  — единичная ступенчатая функция,  $\Delta_0$  расстройка  $\bar{E}$  относительно ближайшего уровня квазиконтинуума, функция  $L_n(z)$  имеет вид

$$L_n(z) = L_0(z), \quad n = 0,$$

$$L_n(z) = L_n(z) - L_{n-1}(z), \quad n \geq 1;$$

здесь  $L_n(z)$  — полином Лаггера. При  $\hbar\gamma/\delta \gg 1$  вблизи  $t = 0$   $a_n(t)$  экспоненциально убывает (сравните с (39)). Вблизи  $t = t_1 = 2\pi\hbar/\delta$  зависимость  $a_0(t)$  имеет вид  $|a_0(t)|^2 = \gamma(t - t_1) \exp[-\gamma(t - t_1)]$  и т.д. В работах [110, 111] была развита приближенная теория фотовозбуждения квазиконтинуума длинным оптическим импульсом, основанная на существовании двух различных временных масштабов ( $\gamma^{-1}$  и  $\hbar/\delta$ ) и позволяющая описать форму каждой рекуррентии и в случае неточного равенства всех матричных элементов перехода.

### 3. Динамика пакетов высоковозбужденных состояний ридберговских атомов

Совершенство техники генерации коротких световых импульсов создало условия, при которых в процессе оптического возбуждения атомов длительность возбуждающего импульса может быть столь мала (или его спектральная ширина столь велика), что возбуждается не отдельное стационарное состояние атома, как в традиционной оптической спектроскопии, а создается линейная суперпозиция (пакет) довольно большого числа стационарных состояний с различными энергиями. Эволюция этого пакета, как было показано выше на простых моделях, должна подчиняться на различных стадиях, как классическим, так и квантовым закономерностям. Наиболее яркие проявления этих закономерностей должны наблюдаться при импульсном возбуждении высокоэнергетических ридберговских состояний атомов. Возможными способами наблюдения за динамикой создаваемых волновых пакетов является регистрация спонтанного излучения возбужденных атомов либо их ионизация коротким оптическим импульсом, задержанным на некоторое время относительно возбуждающего импульса. На стадии "классического" движения по вытянутой кеплеровской орбите излучение атома представляет собой регулярно повторяющиеся (с периодом классического движения) всплески, отвечающие прохождению пакета на минимальном расстоянии от ядра (или атомного остова в многоэлектронном атоме), где ускорение электрона максимально. Развалу пакета отвечает возникновение нерегулярной псевдохаотической картины, сопровождающей затухание пиков излучения. Однако с течением времени регулярная периодичная картина всплесков излучения восстанавливается, чему отвечают возрождения локализованного частицеподобного пакета на кеплеровской орбите.



Впервые детальный численный расчет возбуждения высокоэнергетических состояний атома водорода коротким оптическим импульсом и временного хода излучения образованного при этом пакета стационарных состояний было проведено в работе [16]. Рассчитывалось возбуждение атома лазерным импульсом длительностью  $\tau \approx 10$  пс в группу уровней, примыкающих к уровню с главным квантовым числом  $\bar{n} = 85$ . Соответствующий период классического движения  $T_{cl} = 2\pi\bar{n}^3\hbar/Ry \approx 94$  пс, что на порядок превышает длительность импульса и обеспечивает создание в ходе возбуждения пакета из многих стационарных состояний с различными главными квантовыми числами  $n$  вблизи  $\bar{n}$ . Поскольку возбуждение атома осуществляется из основного уровня, в пакете присутствуют состояния с малыми значениями углового момента, что на классическом языке соответствует частицам, движущимся по сильно вытянутой кеплеровской орбите. Результаты численного расчета [16] приве-

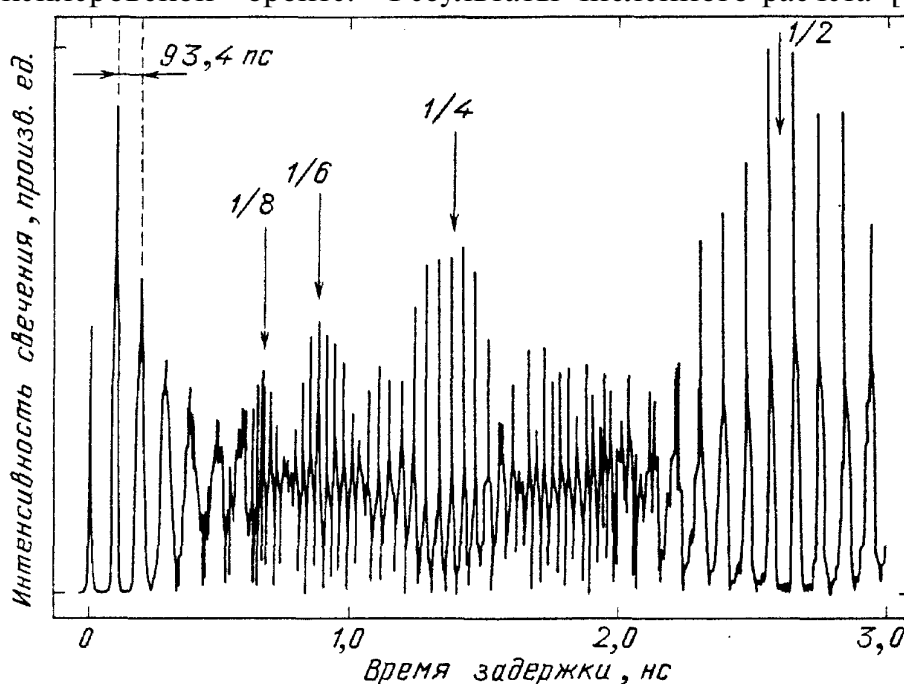


Рис. 2. Интенсивность спонтанного излучения ридберговского атома, возбужденного коротким лазерным импульсом (по работе [16]). Стрелками указаны (согласно [31, 32]) дробные возродения различного порядка

дены на рис. 2. Как следует из рисунка, на начальной стадии эволюции пакета в излучении наблюдаются острые пики, повторяющиеся спустя каждый период классического движения по кеплеровской орбите. Спустя 35 периодов  $T_{cl}$  картина излучения для начальной стадии повторяется, что отвечает дробному возродению порядка  $1/2$  ( $T_{rev} \approx 5,2$  нс). Аналогичная зависимость вероятности электронного рамановского перехода, индуцированного двумя последовательными лазерными импульсами, от времени задержки между ними была обнаружена в [19, 22]. Полученная в работе [16] детальная картина временного хода излучения подробно анализировалась в [31, 32], где указано, что при дробных возродениях более высоких порядков, показанных на рис. 2 стрелками, всплески излучения соответствуют прохождению на минимальном расстоянии от ядра каждого из фрагментов расщепленного пакета. Поэтому вблизи моментов времени  $T_{rev}/4$ ,  $T_{rev}/6$ ,  $T_{rev}/8$  и т.д. пики излучения следуют вдвое, втрое, вчетверо и т.д. чаще, чем на начальной стадии или на

стадии  $T_{\text{rev}}/2$ , где пакет восстанавливается со сдвигом по времени на  $T_{\text{cl}}/2$ . В работе [80] численно исследована временная зависимость интенсивности излучения пакета, составленного из колебательных состояний двухатомного иона, и были обнаружены аналогичные проявления разрушения пакета и его последующего возрождения.

Пространственно-временная структура пакетов ридберговских состояний, движущихся по кеплеровской орбите, исследована в работе [46]. Там изучена долговременная эволюция пакетов из стационарных состояний  $\psi_{n,l,m_l}$  атома водорода с различными главными квантовыми числами  $n$  и предельными для заданного  $n$  значениями орбитального квантового числа  $l = n - 1$  и проекции момента  $m_l = n - 1$ . Распределение населенностей уровней в пакете считалось гауссовским:

$$\psi(\mathbf{r}, t) = \sum_n c_n \psi_{n,n-1,n-1}(\mathbf{r}) \exp(itRy/2\hbar n^2), \quad (41)$$

$$c_n = (2\pi\sigma_0)^{-1/2} \exp\left[-\frac{1}{4\sigma_0}(n - \bar{n})^2\right],$$

$$\psi_{n,n-1,n-1}(\mathbf{r}) = N_n r^{-(n-1)} \exp\left(-\frac{r}{na_B}\right) (\sin \vartheta)^{n-1} \exp[i(n-1)\phi];$$

здесь  $a_B$  — боровский радиус,  $N_n$  — нормировочная постоянная. Пакет состояний (41) локализован как в радиальном ( $r$ ) направлении, так и в угловых ( $\vartheta, \phi$ ) переменных. В [46] была прослежена эволюция этого пакета при значениях параметров  $\bar{n} = 320$ ,  $\sigma_0 = 2,5$ . Разложение энергии атома вблизи  $n = \bar{n}$  имеет вид (сравните с (22)):

$$-\frac{Ry}{2n^2} = -\frac{Ry}{2\bar{n}^2} \left[ 1 - 2\frac{\Delta n}{\bar{n}} + 3\left(\frac{\Delta n}{\bar{n}}\right)^2 - \dots \right], \quad (42)$$

$$\Delta n = n - \bar{n}.$$

Исследование временной динамики пакета (41) демонстрирует последовательное включение временных масштабов, следующих из разложения (42) (рис. 3). На временах  $t \lesssim T_{\text{cl}} = 2\pi\bar{n}^3\hbar/Ry$  пакет движется по круговой кеплеровской орбите, лежащей в плоскости, перпендикулярной оси квантования, расплываясь из-за неэквидистантности ридберговских уровней. При временах  $t = (m_0/n_0)T_{\text{rev}}$  ( $m_0, n_0$  — взаимно простые целые числа) он испытывает последовательность дробных возрождений в полном соответствии со сценарием [31, 32], описанным в п. 2. Таким образом в долговременной эволюции волновых пакетов высоковозбужденных ридберговских состояний атомов неизбежно проявляются как классические, так и квантовые свойства, связанные с дискретностью и неэквидистантностью атомного спектра (нелинейностью атомного осциллятора).

Интересное предложение по компрессии (временному сжатию) оптических импульсов, использующей особенности временной эволюции ридберговских волновых пакетов, было сделано в [37]. Сфазированность состояний в

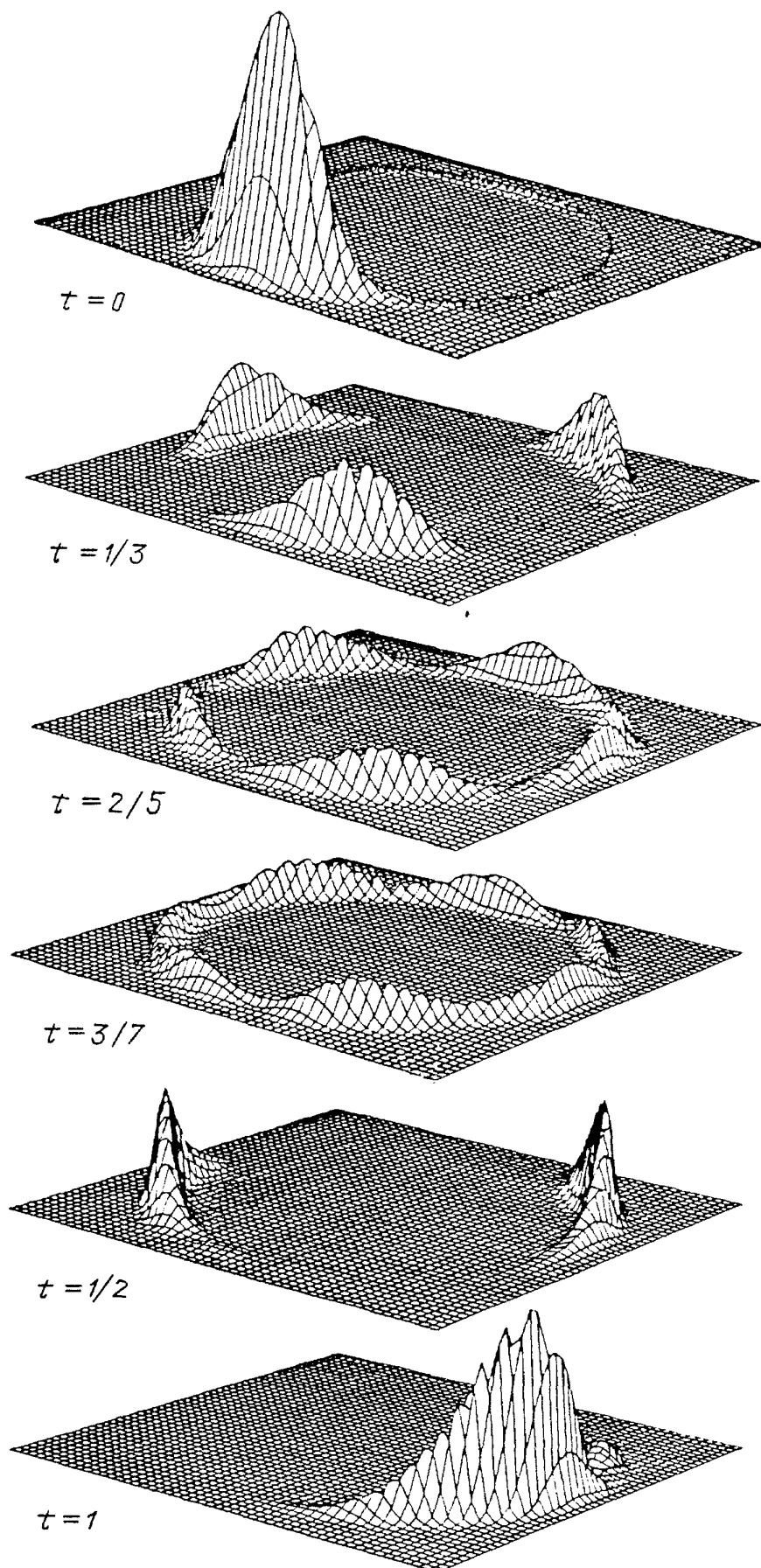


Рис. 3. Эволюция распределения плотности вероятности в  $x, y$ -плоскости для волнового пакета электрона, движущегося по круговой кеплеровской орбите (по [46]). Время  $t$  измеряется в единицах  $T_{\text{rev}}/2$

линейной суперпозиции вида (24), как уже отмечалось выше, нарушается с течением времени из-за неэквидистантности спектра. На пространственном языке это означает, что в ходе колебаний те части пакета, которые образованы состояниями с большими энергиями, отстают от более низкоэнергетических частей из-за увеличения классического периода с ростом энергии. Если возбуждать низкоэнергетические части пакета с некоторой временной задержкой по отношению к высокоэнергетическим, то с течением времени эти части сфазированы, образуя сильно локализованный в пространстве пакет. Такой характер возбуждения может быть обеспечен за счет chirpa частоты возбуждающего импульса (уменьшения ее со временем, например, по линейному закону). Как показано в [37], при прохождении такого сфазированного пакета на минимальном расстоянии от ядра атом может излучить импульс более короткий по длительности, чем возбуждающий. Таким образом, в отличие от традиционных методов компрессии световых импульсов [124] предложенный способ основан на дисперсионных свойствах волн де-Бройля в одиночном атоме. В [37] обсуждается также возможность использования chirpa собственных частот атома за счет динамического эффекта Штарка вместо chirpa частоты излучения возбуждающего атома.

Динамику пакета ридберговских состояний, образованного в результате воздействия на атом короткого лазерного импульса, было предложено также наблюдать экспериментально по зависимости вероятности электронного рамановского перехода, индуцированного вторым оптическим импульсом, от времени задержки относительно первого [19, 22], либо по аналогичной зависимости сигнала задержанной фотоионизации [26, 42, 43]. Полуклассическая теория двухфотонных процессов возбуждения и ионизации ридберговских состояний оптических электронов в атомах развита в работах [18, 19, 22, 27, 28, 41]. С помощью методов теории квантового дефекта там исследовано взаимодействие ридберговского пакета с ионным остатком и обнаружены интерференционные явления, возникающие из-за периодически повторяющихся процессов упругого и неупругого рассеяния пакета на этом остатке.

Влияние образования линейных суперпозиций атомных состояний на процесс ионизации атома в сильном поле лазерного излучения рассматривалось теоретически в ряде работ [26, 42 — 44, 125]. В [44] исследована ситуация, когда два близких атомных уровня сильно перемешиваются друг с другом за счет резонансных процессов поглощения и вынужденного излучения фотонов через состояния континуума. Вследствие этих процессов в сильном поле образуется такая линейная суперпозиция атомных состояний, вероятность перехода из которой в континуум мала из-за деструктивной интерференции. В определенном смысле это означает стабилизацию атома сильным полем. Этот эффект родственен известному, начиная с классической работы Фано [126], эффекту образования нераспадающихся состояний в модели двух дискретных уровней, лежащих на фоне континуума и взаимодействующих с ним. По существу, аналогичное происхождение имеет также эффект пленения населенностей в трехуровневых квантовых системах, резонансно возбуждаемых двумя лазерными полями [127]. Большой интерес представляет перенесение этих результатов на случай многоуровневых квантовых систем и, в частности, ридберговских атомов. Учет реального многоуровневого атомного спектра и полей произвольной силы приводит к значительным математическим трудностям, что несомненно повышает ценность модельных рассуждений. В [26, 42, 43] в модели квазиэквидистантного спектра и "плоского" континуума продемонстрирована возможность стабилизации многоуровневого атома за счет обра-

зования пакетов высоковозбужденных атомных состояний сильным полем. В работе [30] были получены некоторые аналитические результаты при исследовании образования ридберговских волновых пакетов сильными оптическими импульсами специального вида. Подробный обзор теоретических методов описания лазерного возбуждения пакетов стационарных состояний в ридберговских атомах можно найти в [48].

Один из первых экспериментов, в ходе которого создавался пакет ридберговских состояний атома, описан в работе [25]. С помощью лазерных импульсов длительностью  $\tau \approx 3$  пс осуществлялась  $3 + 1$ -фотонная ионизация атомов ксенона (энергия трех фотонов попадала в область ридберговских состояний вблизи порога ионизации ксенона). Если спектральная ширина возбуждающего импульса, связанная с его конечной длительностью, меньше расстояния между соседними атомными уровнями, то процесс ионизации может быть усилен за счет промежуточного резонанса в ридберговской области. Если же спектральная ширина импульса покрывает несколько уровней (что сопровождается образованием пакета стационарных состояний), то область ридберговских уровней проявляет свойства континуума и резонансное увеличение вероятности ионизации не проявляется. В эксперименте [25] наблюдался переход от резонансного режима ионизации к нерезонансному при увеличении частоты лазерного излучения с сохранением его спектральной ширины. Смена режимов при этом связана со сгущением ридберговских уровней при приближении к порогу ионизации. Информация о создании пакета ридберговских состояний содержится в результатах [25] неявно, поскольку за время длительности ионизирующего импульса, значительно меньшее (в нерезонансном режиме) классического периода кеплеровского движения, пакет не успевает сместиться и, соответственно, его наиболее характерные динамические свойства не проявляются. Теоретическое исследование вблизи пороговой многофотонной ионизации атомов короткими лазерными импульсами, отвечающие условиям эксперимента [25], проведено в работе [38].

Впервые электронный волновой пакет, локализованный в угловых переменных, был создан в работе [23] с помощью метода, описанного в [17, 21]. Возбуждение пакета осуществлялось из основного состояния атома натрия в группу ридберговских состояний с главным квантовым числом  $n = 50$ , которые перемешивались циркулярно поляризованным радиочастотным полем с амплитудой  $0,3$  В/см и частотой  $65$  МГц. Радиочастотное поле настраивалось вблизи тридцатифотонного резонанса между состоянием  $50d$  и состоянием с  $n = 50$  и орбитальным квантовым числом  $l = 32$  (уровень  $n = 50$  в атоме натрия слегка расщеплен на группу состояний с различными  $l$ ). В ходе импульсного оптического возбуждения населялось около десяти "одетых" радиочастотных состояний. После адиабатического отключения (за время  $\sim 5$  мкс) радиочастотного поля возникал пакет, локализованный в угловых переменных (но не радиально) с угловой шириной  $\sim 20^\circ$ . Пакет первоначально ориентирован вдоль направления вектора напряженности радиочастотного поля в момент возбуждения, а затем начинает медленно прецессировать. Причиной прецессии на квантовом языке является нестационарность пакета состояний с различными  $l$ , обусловленная нарушением орбитального вырождения уровней натрия. Авторы [23] интерпретируют эту нестационарность на классическом языке как прецессию кеплеровской орбиты из-за некоторого отличия потенциала, действующего на оптический электрон, от кулоновского. На рис. 4 приведено распределение плотности вероятности для пакета, локализованного в угловых переменных [23]. Резкая анизотропия в угловом распределении

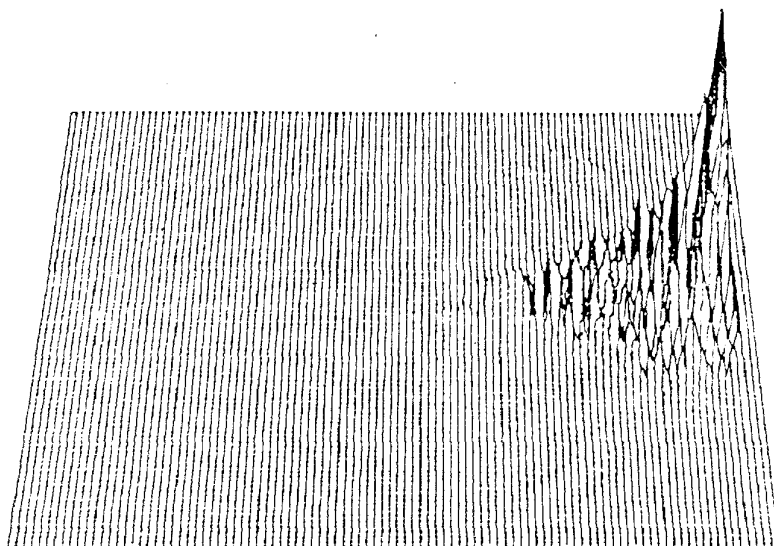


Рис. 4. Распределение плотности вероятности в плоскости  $x, y$  для волнового пакета, локализованного в угловых переменных (по [23]). Пик распределения расположен на расстоянии 5000 боровских радиусов от ядра. Пакет образован из состояний с большими значениями углового момента ( $n = 50, 29 < l < 37, m_l = l$ )

электронной плотности регистрировалась с помощью ионизации пакета. Прецессия пакета и его расплывание в условиях эксперимента [23] не фиксировались из-за их медленности (характерное время порядка миллисекунд).

Радиально локализованный ридберговский волновой пакет наблюдался впервые в работе [24]. В ходе этого эксперимента с помощью 6 пс лазерных импульсов путем двухфотонного возбуждения создавался вблизи кора атома рубидия пакет ридберговских состояний внешнего электрона с различными главными квантовыми числами в районе  $\bar{n} = 42$ . Пакет был образован только из состояний  $s$  и  $d$  типа (с преобладанием  $d$ -состояний), что приводило к угловой делокализации плотности вероятности. Образованный пакет подобен сферической оболочке, радиус которой осциллирует с периодом кеплеровского движения  $T_{cl} = 2\pi\bar{n}^3\hbar/Ry$  между минимальным и максимальным расстояниями от кора, определяемыми классическими точками поворота. Хотя в его временной эволюции проявляются черты классической динамики, подобный пакет все же еще далек от частицы, движущейся по кеплеровской орбите. Присутствие пакета вблизи кора регистрировалось по сигналу ионизации, вызванной дополнительным пробным импульсом, сдвинутым по времени относительно импульса, создавшего пакет. Вероятность поглощения фотона максимальна, когда электрон находится вблизи кора. Поэтому максимум сигнала ионизации приходится на времена задержки, отвечающие возвращению электрона к кору после удаления от него на максимальное расстояние. Авторам [24] удалось наблюдать два подобных возвращения пакета. Экспериментально полученное время возврата  $9,4 \pm 1,0$  пс хорошо согласуется с теоретическими значениями  $T_c = 10,2$  пс ( $\bar{n} = 42$ ). После двух возвращений пакет распадался. Большая величина дисперсии связана со значительной вариацией энергетических расстояний между уровнями с различными  $n$  в районе  $\bar{n} = 42(\omega_{n,n-1} - \omega_{n+1,n} \approx (\bar{n})^{-4}Ry/\hbar)$ .

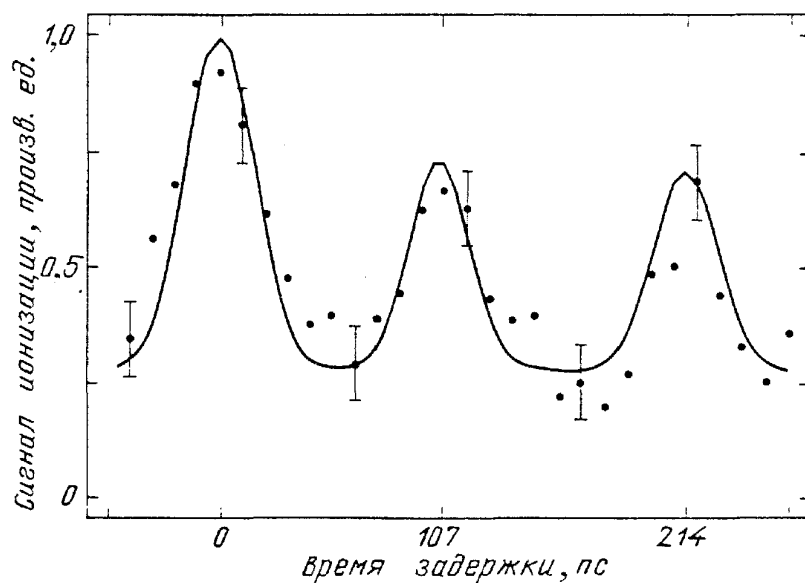


Рис. 5. Экспериментальные и теоретические результаты для сигнала ионизации атомов калия (точки и сплошная кривая соответственно; по [33]). По горизонтальной оси отложено время задержки между возбуждающим и ионизирующим лазерными импульсами

В близком по постановке эксперименте [33], выполненном на атомах калия, осуществлялось двухфотонное возбуждение из основного состояния группы уровней (в основном  $d$  типа) с  $n$  в районе  $\bar{n} = 89$ , чему отвечает  $T_{cl} = 107$  пс. Спектральная ширина лазерного импульса накрывала несколько уровней ( $\Delta n = 5$ ), в связи с чем в сигнале последующей задержанной ионизации наблюдались довольно резкие пики (рис. 5) с периодом классического движения. Уменьшение высоты пиков связывается авторами [33] с двумя причинами: расплыванием пакета, обусловленным слабой неэквидистантностью уровней, и флуктуациями частоты лазера от импульса к импульсу.

Долговременное поведение электронного волнового пакета в ридберговском атоме, явления его развала и возрождения были экспериментально изучены в недавней работе [45]. В [45] группа уровней атома калия с  $\bar{n} = 65$  возбуждалась однофотонно, а не двухфотонно как в [33]. Это позволило избежать влияния сдвига уровней атома из-за высокочастотного эффекта Штарка во время возбуждения. Обусловленный эффектом Штарка чирп частоты перехода незначительно модифицирует поведение пакета на коротких временах, но существенно искажает его долговременную эволюцию. Как и в предшествующих экспериментах, в [45] наблюдался сигнал фотоионизации атома задержанным пробным импульсом. На рис. 6 отчетливо видны пять осцилляции сигнала, отвечающих классическому движению с  $\bar{n} = 65$ , за которыми следует разрушение пакета из-за дисперсии. Экспериментальные результаты хорошо согласуются с теоретическими, приведенными на нижней части рисунка. Примерно через пятнадцать периодов после возбуждения сигнал задержанной фотоионизации почти полностью восстанавливает исходную форму, что свидетельствует о возрождении порядка  $1/2$  пакета, как это показано в [16, 31, 32]. На верхней горизонтальной оси рис. 6 отложены периоды классического кеплеровского движения электрона. Как следует из экспериментальных и расчетных кривых, пакет возрождается со сдвигом на  $1/2$  периода

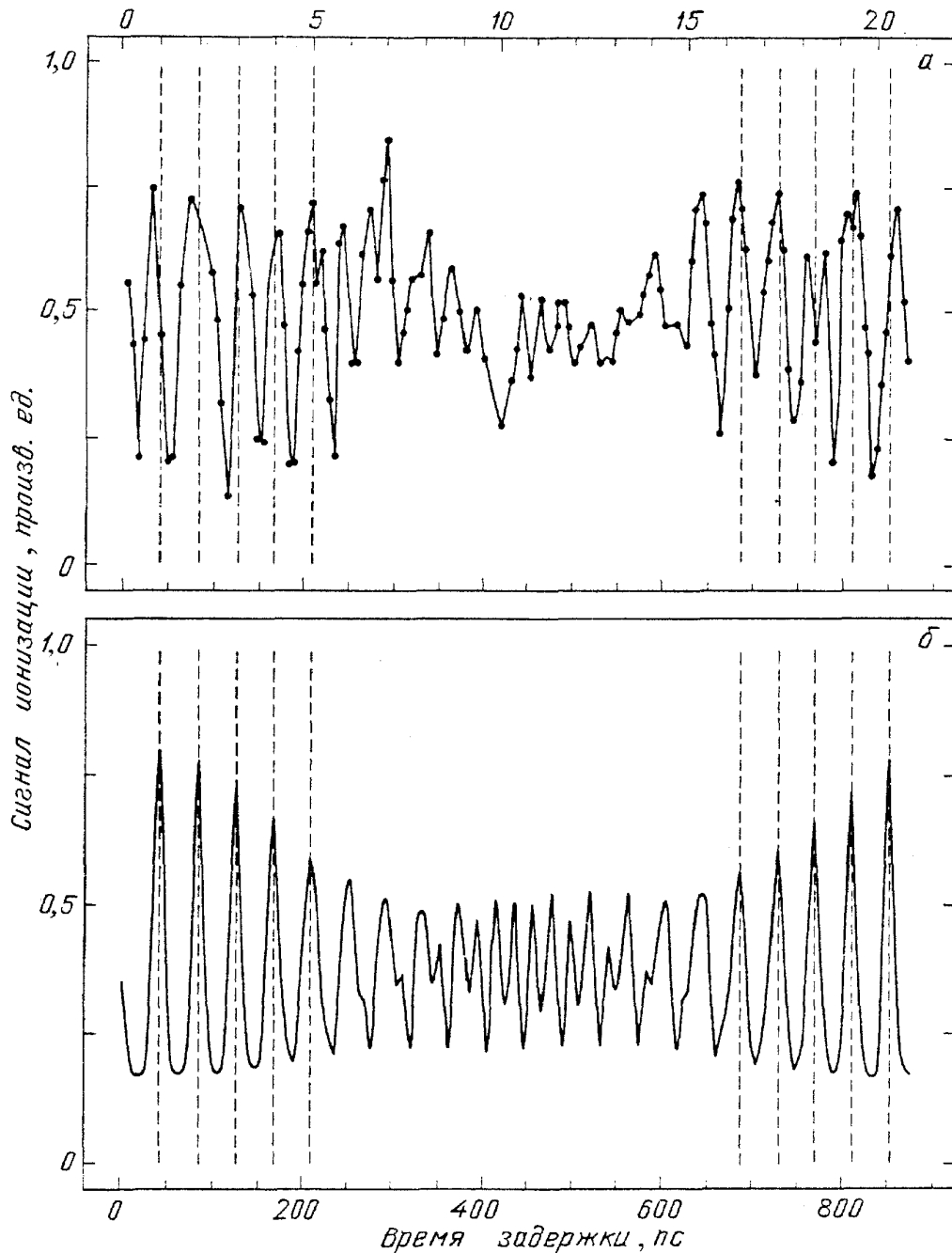


Рис. 6. Ионизационный сигнал как функция времени задержки между возбуждающим и ионизирующим импульсами (по [45]). *a* — Результаты эксперимента с атомами калия. Вертикальные пунктирные линии разделены интервалами времени, равными периоду классического движения. *б* — Результаты теоретического расчета

относительно положения, которое занимал бы классический электрон, движущийся столь длительное время. Это, очевидно, находится в соответствии с обсужденным выше сценарием дробных возрождений. На расчетной кривой рис. 6 в средней части наблюдаются осцилляции с удвоенной кеплеровской частотой, что должно отвечать расщеплению пакета на две компоненты (дробное возрождение порядка  $1/4$ ). В [45] эта область задержек была недостаточно хорошо разрешена, однако более тщательное экспериментальное исследование [144], проведенное недавно, достоверно продемонстрировало дробное возрождение указанного типа.

Расплывание волнового пакета может быть существенно уменьшено при



почти эквидистантном расположении уровней. В работе [34] сообщалось о создании долгоживущего волнового пакета, образованного когерентной суперпозицией "параболических" состояний атомов рубидия в постоянном электрическом поле. Из-за наличия поля ридберговские уровни водородоподобного атома расщепляются в результате эффекта Штарка. Для слабых полей штарковский сдвиг линеен по полю и уровень с главным квантовым числом  $n$  расщепляется на группу подуровней с энергиями

$$E_{nk} = -\frac{1}{2n^2} Ry + \frac{3}{2} e_0 a_B F n k;$$

здесь  $F$  — величина напряженности электрического поля,  $k = n_1 - n_2$ , где  $n_1, n_2$  — параболические квантовые числа. Таким образом, расстояние между подуровнями постоянно, что отвечает биениям в линейной суперпозиции "параболических" состояний с единым периодом  $T = 2\pi\hbar/3e_0 a_B F n$ . В ходе этих биений изменяется населенность состояний с различными  $l$  и угловая часть волновой функции осциллирует между более или менее сферическим распределением для малых  $l$  и сильно вытянутым вдоль направления поля распределением для больших  $l \sim n - 1$ . В ходе эксперимента [34] с помощью 7 пс лазерных импульсов осуществлялось двухфотонное возбуждение группы уровней с  $n = 23$  атома рубидия, находящегося в постоянном электрическом поле с напряженностью 247,5 В/см. Эволюция образованного пакета "параболических" состояний наблюдалась путем регистрации сигнала ионизации с помощью сдвинутого во времени пробного лазерного импульса. Сигнал ионизации максимален, когда в ходе биений в основном заселены состояния с малыми  $l$  и минимален, когда  $l = n - 1$ . На рис. 7 изображена зависимость сигнала ионизации от времени задержки между импульсами. Наблюдается до десяти осцилляций с периодом 46 пс, который хорошо согласуется с теоретическим значением 45,8 пс.

Таким образом эксперименты с ридберговскими атомами позволили с до-

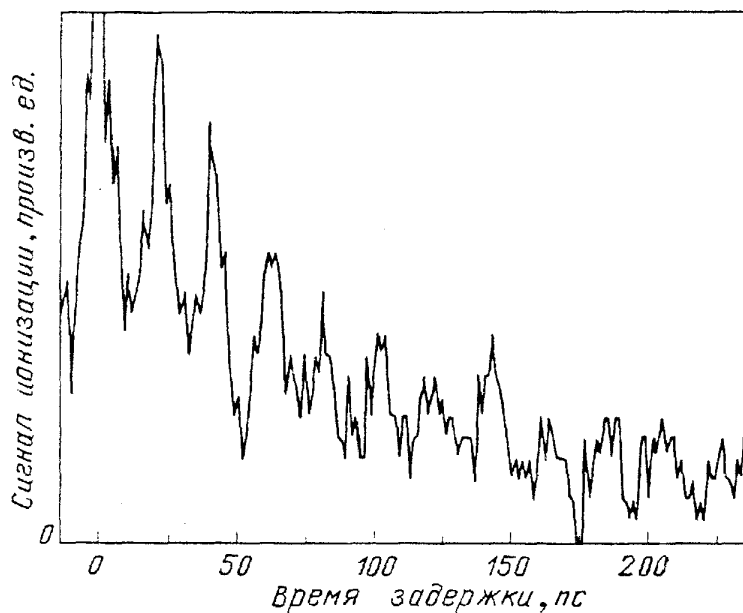


Рис. 7. Сигнал ионизации атомов рубидия в постоянном электрическом поле как функция времени задержки между возбуждающим и ионизирующим импульсами (по [34])

статочной достоверностью наблюдать эволюцию пакетов из высоковозбужденных состояний, в ходе которой проявляются черты классической динамики. Однако к настоящему времени “резерфордский атом”, о котором говорилось во Введении, еще не реализован. Полученные пакеты локализованы либо в радиальном, либо в угловых переменных, в то время как пакет, соответствующий классической частице, должен представлять собой трехмерный сгусток “электронной плотности”, все характерные размеры которого значительно меньше размеров классической орбиты.

#### 4. Долговременная эволюция пакетов электронно-колебательных состояний молекул и лазерная фемтохимия

Наряду с исследованиями ридберговских волновых пакетов в атомах в последние годы независимо и весьма успешно развивается новое молекулярно-спектроскопическое направление, стимулированное потребностями химии и получившее название фемтосекундной лазерной химии [49, 50]. Исследование динамики химических превращений в реальном масштабе времени является для химии фундаментальной задачей. Характерные времена молекулярных перестроек бывают порядка  $10^{-12}$  с и менее. Поэтому только методы фемтосекундной спектроскопии обладают достаточным временным разрешением для наблюдения отдельных стадий перестроек химических связей. Поскольку периоды колебаний ядер молекул составляют часто сотни фемтосекунд, то при возбуждении молекул фемтосекундными оптическими импульсами создаются условия для образования пакетов стационарных состояний, отвечающих отдельным колебательным уровням молекулы. Эволюция этих пакетов может быть, естественно, ассоциирована с перемещением ядер по классическим траекториям в ходе химических трансформаций молекул.

На рис. 8 приведена одна из возможных схем наблюдения ядерного движения при химических превращениях [49]. Адиабатический потенциал  $V_0$  отвечает связанному состоянию молекулы, два отталкивательных термина  $V_1$  и  $V_2$  соответствуют диссоциированным состояниям молекулы с различной степенью возбуждения одного из фрагментов. Начальный пакет из состояний термина  $V_1$  создается коротким импульсом накачки на длине волны  $\lambda_1$ . Возникшее отталкивание приводит ядра в движение по терму  $V_1$ , увеличивая межъядерное расстояние. С некоторой временной задержкой на молекулу воздействуют коротким зондирующим импульсом с длиной волны  $\lambda_2$ , поглощение которого сопровождается переходом на терм  $V_2$ . В соответствии с принципом Франка—Кондона поглощение будет наиболее активно, если за время задержки пакет окажется в области, где

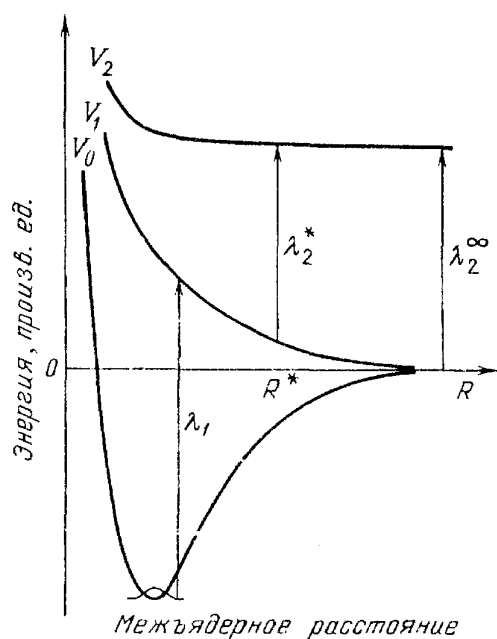


Рис. 8. Потенциальные кривые молекулярной системы, возбуждаемой двумя задержанными друг относительно друга оптическими импульсами (по [49])

энергия  $V_2$  выше энергии  $V_1$ . В соответствии с принципом Франка—Кондона поглощение будет наиболее активно, если за время задержки пакет окажется в области, где

$V_2(R) - V_1(R) = 2\pi\hbar c/\lambda_2$  ( $c$  — скорость света). При  $\lambda_2 = \lambda_2^*$  (зондирование переходного состояния) этому отвечает всплеск на зависимости вероятности поглощения от задержки. Если же второй импульс настроен на переход в свободном продукте реакции ( $R \rightarrow \infty$ ,  $\lambda_2 = \lambda_2^\infty$ ), то, поскольку любой пакет рано или поздно оказывается в области больших межъядерных расстояний, сигнал поглощения выходит на плато с ростом задержки. Об эффективности поглощения пробного импульса можно судить, например, по интегральному сигналу последующего свечения при обратном спонтанном переходе  $V_2 \rightarrow V_1$ . Заметим, что изменение положения пика поглощения при сканировании длины волны зондирующего импульса предоставляет уникальную возможность восстановления зависимости адиабатических потенциалов от межъядерного расстояния. Идея такого эксперимента была реализована в работах [51, 52], где по опи-

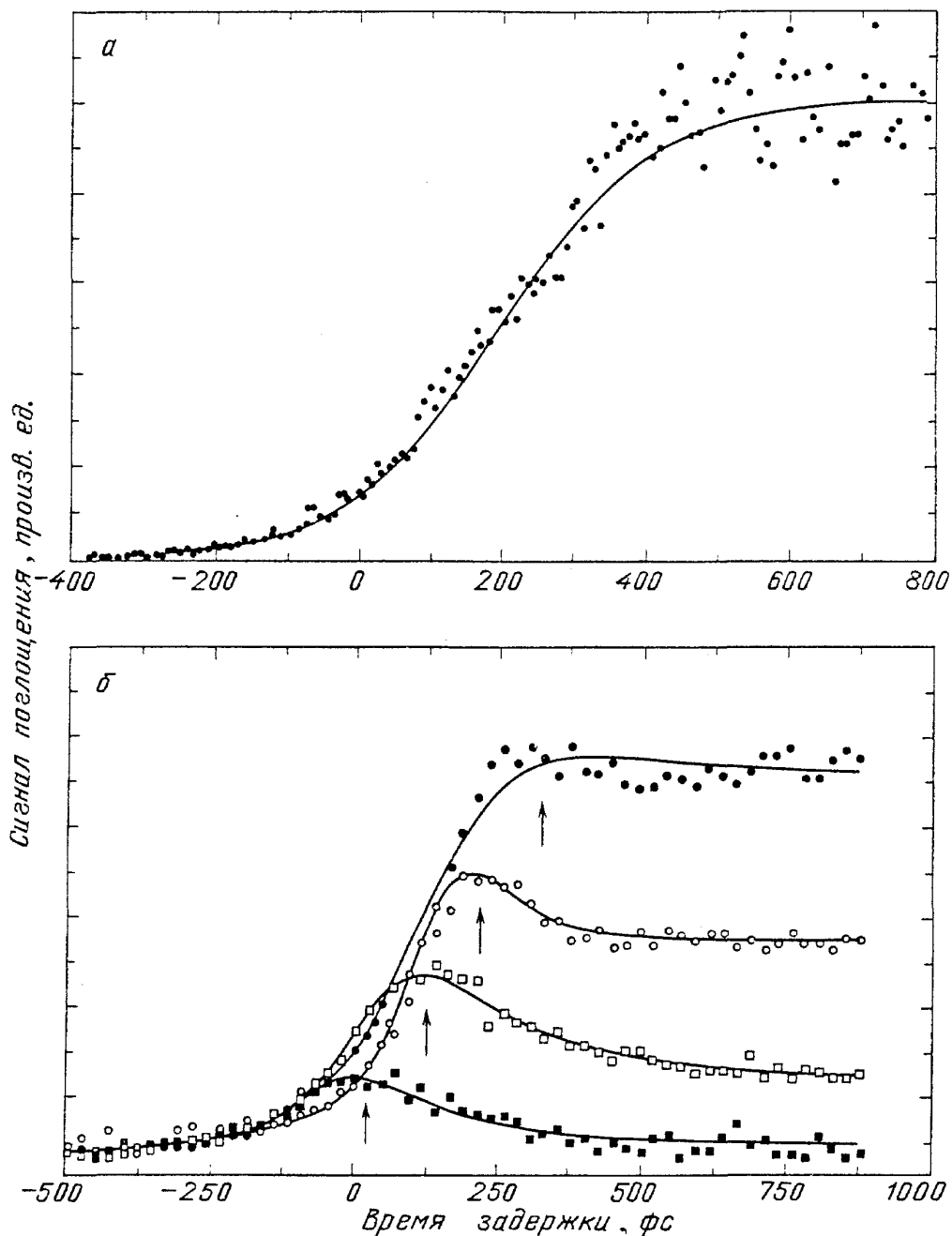


Рис. 9. Сигнал поглощения в экспериментах с молекулами ICN (по [51, 52]).  $a - \lambda_2^\infty = 385,5$  нм,  $b - \lambda_2^* = 391,4; 390,4; 389,8$  и  $389,7$  нм. Максимум смещается вправо с уменьшением длины волны

санной схеме наблюдалась диссоциация цианистого иода ( $\lambda_1 = 307$  нм,  $\lambda_2^\infty = 388,5$  нм). Осуществлялось сканирование длины волны зондирующего импульса на 10 нм в красную сторону. Ожидаемые и экспериментальные зависимости находятся в хорошем согласии (рис. 9). Время развала молекулы, оцененное из эксперимента, составило примерно  $205 \pm 30$  фс. Теоретическое исследование динамики волновых пакетов в молекуле ICN и сигналов задержанного поглощения в ходе ее диссоциации содержится также в [58 — 60, 62].

Указанная техника позволяет не только контролировать переходные стадии в процессе образования и разрыва химических связей, но и наблюдать в реальном масштабе времени колебательное движение волнового пакета в случае, когда терм, на который осуществляется накачка, не является разлетным. Ярким примером такого рода служат фемтосекундные эксперименты [53, 54], по исследованию динамики преддиссоциации возбужденной молекулы NaI на нейтральные фрагменты Na + I. Потенциальные кривые для этой реакции приведены на рис. 10. Основное состояние молекулы NaI носит ионный характер. Поскольку при значительном удалении атомов энергия, отвечающая  $\text{Na}^+ + \text{I}^-$  больше, чем соответствующая  $\text{Na} + \text{I}$ , при  $R_x \approx 6,93 \text{ \AA}$  происходит

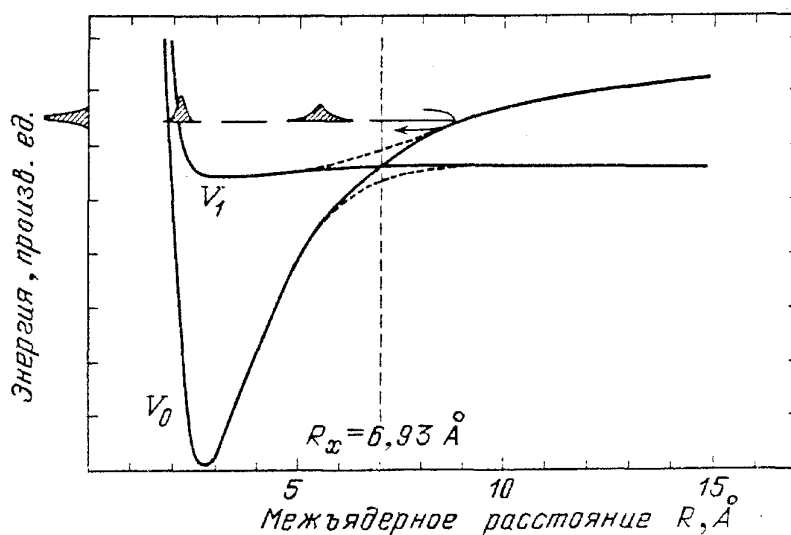


Рис. 10. Потенциальные кривые молекулы NaI (по [53, 54]). Колоколообразная кривая слева от вертикальной оси показывает спектральную ширину возбуждающего импульса. Движение пакета, составленного из колебательных состояний, показано в виде перемещающегося вдоль горизонтальной оси распределения плотности вероятности

квазипересечение ионного и ковалентного диабатических термов. Значительное взаимодействие между ними в окрестности  $R_x$  приводит к образованию адиабатических термов, указанных на рис. 10 пунктиром, при этом верхний из них является связывательным. Короткий лазерный импульс накачки с  $\lambda_1 = 310$  нм создает из основного состояния NaI волновой пакет в ковалентном состоянии, который начинает осциллирующее движение в верхнем адиабатическом терме. При каждом прохождении области квазипересечения пакет с вероятностью 0,1 осуществляет ландау-зинеровский неадиабатический переход на нижний адиабатический терм. В результате волновая функция системы в асимптотической области ( $R \rightarrow \infty$ ) на ковалентном терме представляет

собой последовательность идущих друг за другом пакетов. В случае, когда последующий короткий зондирующий импульс настроен в резонанс с D-линией поглощения в свободном атоме натрия ( $\lambda_2^0 = 549$  нм), зависимость интегрального сигнала обратного свечения от времени задержки между накачкой и зондированием имеет вид лестницы (верхняя кривая на рис. 11). Ступеньки отвечают появлению на ковалентном терме все новых пакетов с течением времени. Если же второй импульс отстроен от резонанса с D-переходом, то тем самым зондируется населенность атомов натрия, все еще запертых в переходном состоянии  $[\text{Na} \dots \text{I}]$ , и временная зависимость сигнала имеет вид периодической последовательности пиков (нижняя кривая рис. 11). В [53, 54] было показано, что частота следования пиков совпадает с частотой классических колебаний в верхнем адиабатическом терме при энергиях, определяемых длиной волны импульса накачки. Спад интенсивности пиков согласуется с величиной вероятности ландау-зинеровского перехода при прохождении области квазипересечения. Указанные эксперименты стимулировали детальные теоретические исследования нестационарных пакетных явлений в ходе этой

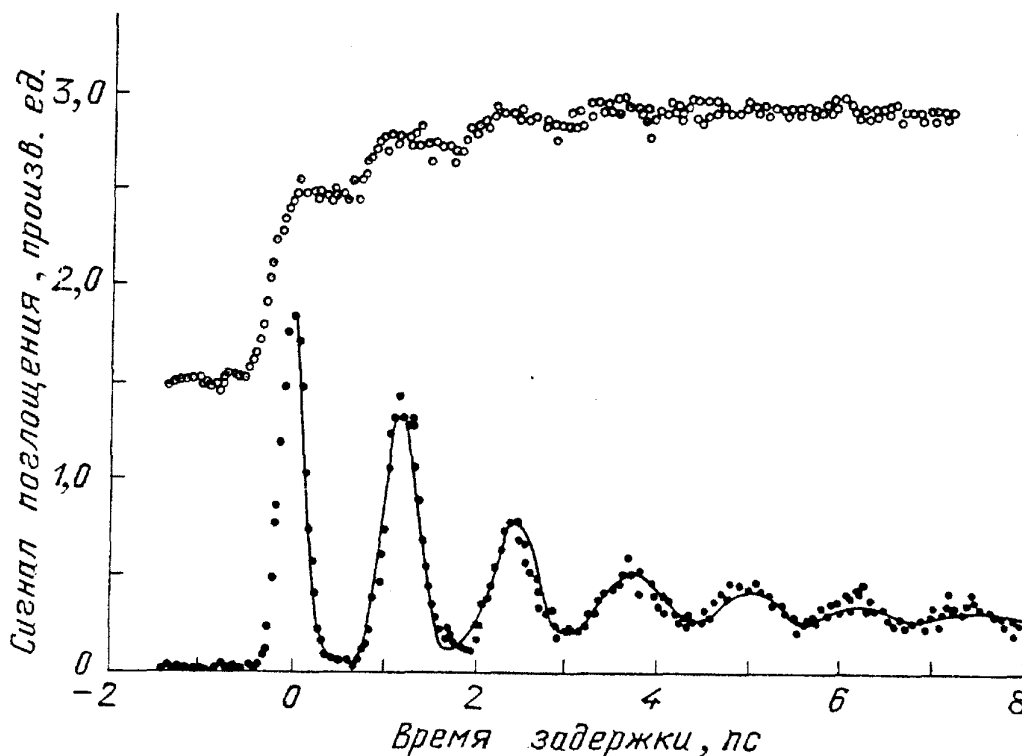


Рис. 11. Сигнал поглощения в экспериментах с молекулами NaI как функция времени задержки между возбуждающим и зондирующим импульсами (по [53, 54]). Пояснения в тексте

реакции [53, 54, 61, 64 — 69].

Существенные успехи в наблюдении долговременной эволюции пакетов колебательных состояний молекул были достигнуты в работах [55, 56], посвященных импульсному оптическому возбуждению молекул иодина (I). На рис. 12 показаны основной и два возбужденных терма этой молекулы. Возбуждение из основного состояния X на терм В осуществляется на длине волны  $\lambda_1 = 620$  нм коротким импульсом длительностью 50 фс; при этом создается

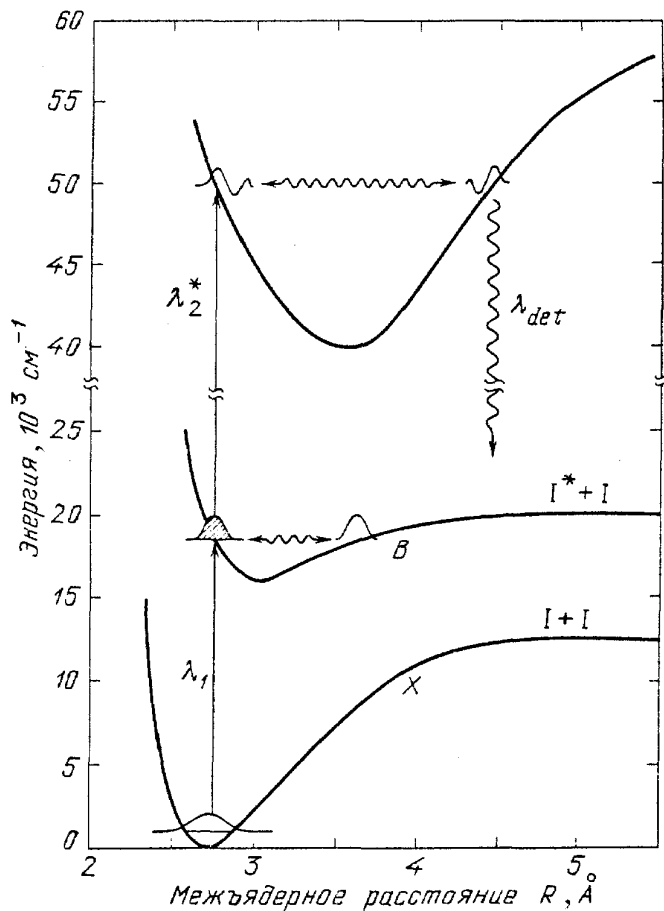


Рис. 12. Потенциальные кривые и схема возбуждения молекулы  $I_2$  (по [55])

пакет из нескольких колебательных уровней в районе вибронного квантового числа  $\nu = 3$  этого терма. Наличие пакета фиксируется задержанным импульсом с длиной волны  $\lambda_2^*$  по наблюдению, например, зависимости интенсивности люминесценции на длине волны  $\lambda_{det}$  от времени задержки. Результаты эксперимента показаны на рис. 13. На нем видны множественные осцилляции детектируемого сигнала, отвечающие долговременным колебаниям частицеподобного пакета. Наряду с колебаниями с классическим периодом  $\sim 300$  фс видны хорошо выраженные пульсации на огибающей сигнала. Интерпретация этих результатов дана в работе [56], исходя из того, что колебательный спектр терма В в группе

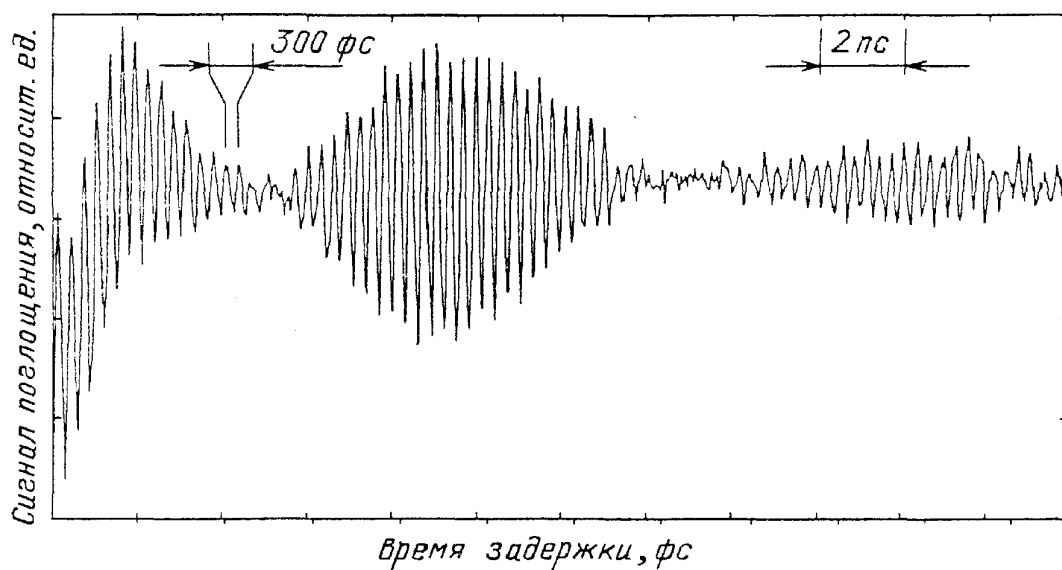


Рис. 13. Зависимость сигнала поглощения от времени задержки между возбуждающим и зондирующим импульсами в экспериментах с молекулами  $I_2$  (по [55])

уровней, заселяемых импульсом накачки  $\lambda_1$ , неэквидистантен. В этом случае детектируемый сигнал  $I(t)$  представляется в виде фурье-разложения

$$I(t) = \sum_{i,j} A_{ij} \cos \omega_{ij} t, \quad (43)$$

где величины  $A_{ij}$  зависят от параметров возбуждающего и задержанного лазерных импульсов и трех задействованных в схеме эксперимента термов. Частоты  $\omega_{ij}$  зависят только от взаимного расположения колебательных уровней в терме  $V$ . Очевидно, что в случае эквидистантного спектра  $\omega_{ij} = \omega, 2\omega, 3\omega, \dots$ , где  $\omega$  — частота гармонических ядерных колебаний. Обратное фурье-преобразование измеренного сигнала действительно продемонстрировало наличие нескольких различных колебательных частот в разложении (43) (рис. 14). Биения на огибающей сигнала являются следствием этой многоча-

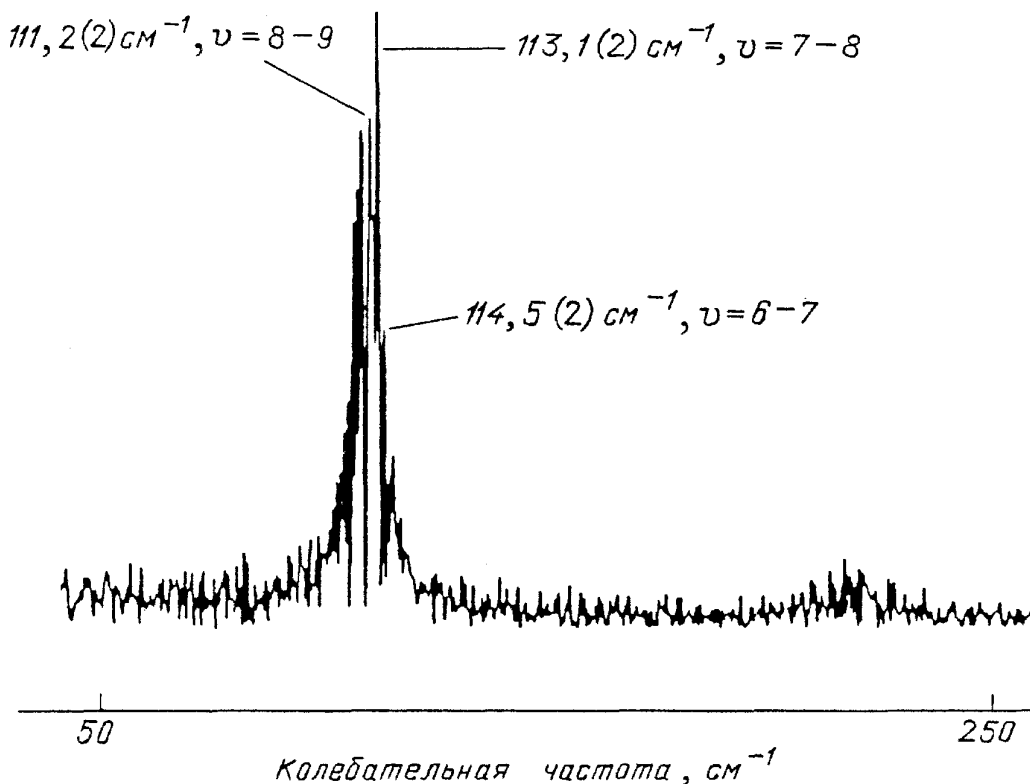


Рис. 14. Фурье-образ сигнала поглощения в экспериментах с молекулами  $I_2$  (по [56]). Стрелками показаны колебательные частоты, отвечающие смежным энергетическим уровням с колебательными квантовыми числами  $\nu$

стотности (неэквидистантности колебательного спектра). Заметим, что временное разрешение в эксперименте [56] было недостаточным для наблюдения частот, кратных частотным расстояниям между соседними энергетическими уровнями, так как длительность считывающего импульса для этого была недостаточно мала. В работах [56, 59] обсуждается интересная возможность решения обратной задачи спектроскопии — восстановления адиабатических потенциалов молекулы по данным временного хода  $I(t)$ . Осуществляя, например, обратное фурье-преобразование сигнала  $I(t)$  удастся найти взаимное расположение колебательных уровней в довольно широком энергетическом диапазоне [56] (порядка энергетической ширины возбуждающего импульса),

что позволяет решить упомянутую обратную задачу с помощью известных методов [128]. Существенным преимуществом такой "временной фурье-спектроскопии" по отношению к прямым спектроскопическим способам определения колебательного спектра в терме В является, например, то, что  $I(t)$  содержит информацию о межуронневых биениях в терме В не зависящую от расположения аналогичных уровней в других термах, задействованных в экспериментальной схеме. Получение такой же независимой информации обычными спектроскопическими методами, исследующими резонансные переходы между парами уровней, принадлежащих различным термам, затруднено. Достоинства и недостатки описанной в этом параграфе спектроскопии, основанной на импульсном возбуждении и исследовании временного хода откликов молекул, подробно обсуждаются в работе [70].

Описанные выше эксперименты с молекулами дают, таким образом, утвердительный ответ на поставленный во Введении вопрос о возможности наблюдения классических колебаний ядер, а также демонстрируют особенности пост-классических стадий ядерного движения. Ситуация с наблюдением этих эффектов в молекулах по ряду причин проще, чем в ридберговских атомах, рассмотренных в параграфе 4. Во-первых, наличие в двухатомных молекулах единственной колебательной степени свободы существенно упрощает условия возбуждения частице-подобных пространственно-локализованных пакетов. Единственным требованием, по существу, здесь является вовлечение в образование пакета достаточно большого числа уровней. Это достигается за счет спектральной ширины короткого возбуждающего импульса. Сказанное относится и к многоатомным молекулам, если в них оптически возбуждается одномерная связь. Напомним, что основным препятствием на пути решения аналогичной задачи в водородоподобных атомах является ее трехмерный характер.

Во-вторых, особенностью молекулярных колебательных спектров является наличие в них весьма широких энергетических областей, содержащих большое число практически эквидистантных уровней. Это позволяет создавать пакеты, длительное время совершающие периодические колебания без расплывания. Указанные группы уровней могут находиться на большом удалении от порога диссоциации, что выгодно отличает в этом плане молекулы от ридберговских атомов, где необходимые уровни примыкают к границе непрерывного спектра.

Отметим также, что к одномерным молекулярным волновым пакетам без дополнительных оговорок относятся изложенные в параграфе 2 общие соображения, основанные на простейших допущениях о характере энергетического спектра. Приведенные нами эксперименты служат для их иллюстрации, и, конечно, не исчерпывают всех аспектов лазерной фемтохимии. Большинство теоретических работ в этой области содержат расчеты, учитывающие особенности спектров конкретных молекул при различных схемах возбуждения. Расчеты такого рода необходимы при количественном анализе результатов экспериментов и диктуются большим разнообразием молекулярных спектров. Это также отличает ситуацию с молекулами от таковой в водородоподобных атомах, где ридберговские состояния имеют универсальный характер. Читатель, интересующийся конкретными расчетами, найдет их в цитированных выше работах. Их детальное обсуждение выходит за рамки настоящего обзора,



посвященного общим аспектам динамики волновых пакетов.

### 5. Пакеты квантовых состояний электромагнитного поля в нелинейно-оптических системах. Эволюция пакетов стационарных состояний в сильно-связанной системе "атомы+поле"

Как уже отмечалось выше, особенности долговременной эволюции пакетов стационарных состояний нелинейных квантовых систем (с неэквидистантным спектром) носят достаточно универсальный характер и проявляются во многих деталях уже в простейшем случае одномерного осциллятора со слабой ангармоничностью. В силу этого представляется естественным и закономерным то, что с этими явлениями впервые столкнулись при исследовании состояний электромагнитного поля, генерируемых нелинейно-оптическими средами, которые можно описать моделью слабо-ангармонического осциллятора. В связи с этой проблемой в ряде работ [87 — 91, 93, 94] было рассмотрено долговременное поведение пакетов стационарных состояний полевого осциллятора с гамильтонианом

$$H = \hbar \{ \omega (a^+ a) + \lambda (a^+ a)^2 \}; \quad (44)$$

здесь  $\omega$  — частота моды электромагнитного поля;  $a^+$ ,  $a$  — операторы рождения и уничтожения фотонов. Гамильтониан (44) использовался для описания распространения света через нелинейный световод, причем нелинейное слагаемое, пропорциональное  $\lambda$ , возникает из-за керровской нелинейности среды [129]. В работах [87, 88] была исследована временная зависимость так называемой  $Q$ -функции

$$Q(\alpha, \alpha^*, t) = \text{Tr}(\hat{\rho}(t) |\alpha\rangle\langle\alpha|),$$

где  $\hat{\rho}(t)$  — матрица плотности исследуемой системы с гамильтонианом (44),  $|\alpha\rangle$  — когерентное состояние гармонического осциллятора. Предполагалось, что в начальный момент времени система пребывала в когерентном состоянии  $|\alpha_0\rangle$ . Величина  $Q(\alpha, \alpha^*, t)$  даст представление о локализации волновой функции системы в фазовом пространстве. Выполненный в [87] прямой численный расчет показал, что первоначально локализованная  $Q$  — функция с течением времени расплывается, испытывая интерференционные явления, но затем вновь восстанавливает локализацию, образуя регулярные пространственные структуры (отметим также работу [92], в которой были обнаружены аналогичные особенности в поведении нелинейного осциллятора, подверженного воздействию внешней периодической силы). Физические причины такого поведения были вскрыты в работе [89], где было показано, что в процессе эволюции начального когерентного состояния в системе с гамильтонианом (44) возникает линейная суперпозиция двух когерентных состояний, сдвинутых по фазе на  $\pi$  относительно друг друга (одно из них запаздывает по отношению к другому на  $1/2$  периода колебаний  $T = 2\pi/\omega$ ). В соответствии с анализом, проведенным в [31, 32] (см. также п. 2 настоящего обзора), это отвечает дробному возрождению порядка  $1/4$ . Состояния такого рода рассматривались ранее с формальных позиций в [130], где были названы обобщенными коге-

рентными состояниями. Авторы работ [89, 91] предложили использовать обнаруженный ими эффект для генерации неклассических состояний света, сохраняющих квантовые свойства при макроскопически большом среднем числе фотонов. Аналогичный эффект был обнаружен также в работах [93, 94] при исследовании квантовой системы, моделирующей оптические процессы в средах с нелинейным двулучепреломлением и в [90] при рассмотрении квантовой модели четырехволнового смесителя. При этом в [94] было высказано предположение о возможности существования многопакетных структур, возникающих в ходе эволюции начального состояния в моменты времени  $t \approx \approx T_{\text{rev}}/2^k$ ,  $k = 2, 3, \dots$ , хотя там и не удалось их аналитически описать. Решение этой задачи также содержится в универсальном сценарии дробных возрождений [31, 32].

Для регистрации подобных макроскопических состояний света, сохраняющих существенно квантовые свойства (по этой причине их иногда называют "оптическими шредингеровскими кошками" [89 — 91]), было предложено [89, 91] использовать фазо-чувствительную технику гомодинного детектирования [131 — 133]. При этом способе измерения исследуемое электромагнитное поле смешивается на поверхности фотодетектора с мощным опорным лучом той же частоты, фаза которого  $\vartheta$  контролируется экспериментатором и может изменяться. Статистическое распределение суммарного числа фотоэлектронов, зарегистрированных таким детектором за определенное время, отражает многопакетный характер состояния исходного поля в фоковском пространстве. Квантовая когерентность между пакетами-фракциями проявляется в интерференционных биениях в статистическом распределении суммарного числа фотоотчетов при определенных значениях  $\vartheta$  [89, 91, 94].

К обсуждаемой в настоящем обзоре проблеме следует также отнести исследования долговременной эволюции пакетов, составленных из стационарных состояний сильно связанной системы "атомы+поле" (см., например, обзор [95]). При использовании двухуровневой (или несколько-уровневой) модели атома невозможно, естественно, проследить переход к полностью классическому описанию резонансного взаимодействия света с веществом. Однако особенности долговременной эволюции пакетов, их разрушений и возрождений во многом схожи с теми, которые были обсуждены выше, имеют сходные причины и проявления.

Простейшая, полностью квантовая модель взаимодействия света с веществом — модель Джейнса — Каммингса, описывает поведение одиночного двухуровневого атома, связанного с единственной модой квантованного электромагнитного поля [134, 135]. В резонансном приближении гамильтониан модели имеет вид:

$$H = \frac{1}{2} \hbar \omega_0 \sigma_3 + \hbar \lambda (\sigma_+ a + \sigma_- a^\dagger) + \hbar \omega (a^\dagger a + \frac{1}{2}); \quad (45)$$

здесь  $\sigma_{3,\pm}$  — матрицы Паули,  $a^\dagger$  и  $a$  — бозевские операторы рождения и уничтожения квантов полевой моды, частота поля  $\omega$  близка к частоте  $\omega_0$  атомного перехода:  $|\Delta| \ll \omega_0$ ,  $\omega$ ,  $\Delta = \omega_0 - \omega$ ,  $\lambda$  — константа связи. При  $\lambda = 0$  собственные состояния гамильтониана (45) имеют вид  $|1, n\rangle = |1\rangle|n\rangle$  и

$|2, n\rangle = |2\rangle|n\rangle$ , где вектор  $|1\rangle$  ( $|2\rangle$ ) описывает атом, находящийся в основном (возбужденном) состоянии, а  $|n\rangle$  --  $n$ -квантовое состояние полевого осциллятора. Поскольку гамильтониан (45) связывает состояние типа  $|2, n\rangle$  только с  $|1, n+1\rangle$ , то собственные вектора, энергетический спектр и временная зависимость волновой функции системы находятся точным образом. Если, например, при  $t = 0$  вектор состояния имеет вид

$$|\psi(0)\rangle = |1\rangle \sum_{n=0}^{\infty} a_n |n\rangle, \quad (46)$$

то, в наиболее простом случае точного резонанса ( $\Delta = 0$ ),

$$|\psi(t)\rangle = \sum_{n=0}^{\infty} \{a_n \cos(\Omega_n t) |1, n\rangle \exp(-in\omega t) - ia_{n+1} \sin(\Omega_n t) |2, n\rangle \exp[-i(n+1)\omega t]\}, \quad (47)$$

$$\Omega_n = \lambda n^{1/2}.$$

Из (47) следует, что, например, населенность основного состояния атома изменяется со временем по закону

$$n_1(t) = \sum_{n=0}^{\infty} |a_n|^2 \cos^2 \Omega_n t. \quad (48)$$

Будем считать, что коэффициенты  $a_n$  исходного полевого пакета имеют максимальные модули при  $n = \bar{n} \gg 1$  и существенно спадают при удалении от этого центрального значения на величину  $\Delta n$  ( $1 \ll \Delta n \ll \bar{n}$ ). До сих пор, пока косинусы в (48), отвечающие переходам между различными компонентами пакета, осциллируют синфазно, эту осциллирующую функцию можно вынести за знак суммирования при среднем значении  $n = \bar{n}$  и воспользоваться условием нормировки  $\sum_n |a_n|^2 = 1$

$$n_1(t) \approx \cos^2(\Omega_{\bar{n}} t). \quad (49)$$

Выражение (49) описывает хорошо известные рабиевские биения населенности [113, 119] с частотой  $\Omega_{\bar{n}} = \lambda \bar{n}^{1/2}$  в двухуровневой системе, подверженной действию классического электромагнитного поля. Условие справедливости этой формулы имеет здесь вид:

$$\left. \frac{d\Omega_n}{dn} \right|_{\bar{n}} (\Delta n) t \ll 1, \quad (50)$$

т.е.

$$t \ll t_0 \Leftrightarrow \left( \left. \frac{d\Omega_n}{dn} \right|_{\bar{n}} \Delta n \right)^{-1}. \quad (51)$$

Для начального пакета, имеющего вид когерентного состояния полевой моды,

величина  $t_0 \sim \lambda^{-1}$  не зависит от  $\bar{n}$  (это справедливо только в случае точного резонанса [96, 97]).

При  $t \gtrsim t_0$  между различными слагаемыми в (48) из-за непостоянства  $\Omega_n$  набегают значительные фазовые сдвиги, в результате чего происходит "усреднение" вкладов этих слагаемых на фоне плавного распределения  $a_n$ . Рабиевские биения прекращаются (происходит т.н. коллапс [136]) и населенности уровней атома перестают зависеть от времени ( $n_2(t) = n_1(t) = 1/2$ ). Форма огибающей коллапсирующих рабиевских биений в случае точного резонанса была исследована в [136], а при наличии расстройки в [96, 97]. Явление коллапса, как и обсужденное выше разрушение волнового пакета, обусловлено зависимостью  $\Omega_n$  и  $n$

$$\Omega_n = \Omega_{\bar{n}} + \left. \frac{d\Omega_n}{dn} \right|_{\bar{n}} \Delta n + \dots \quad (52)$$

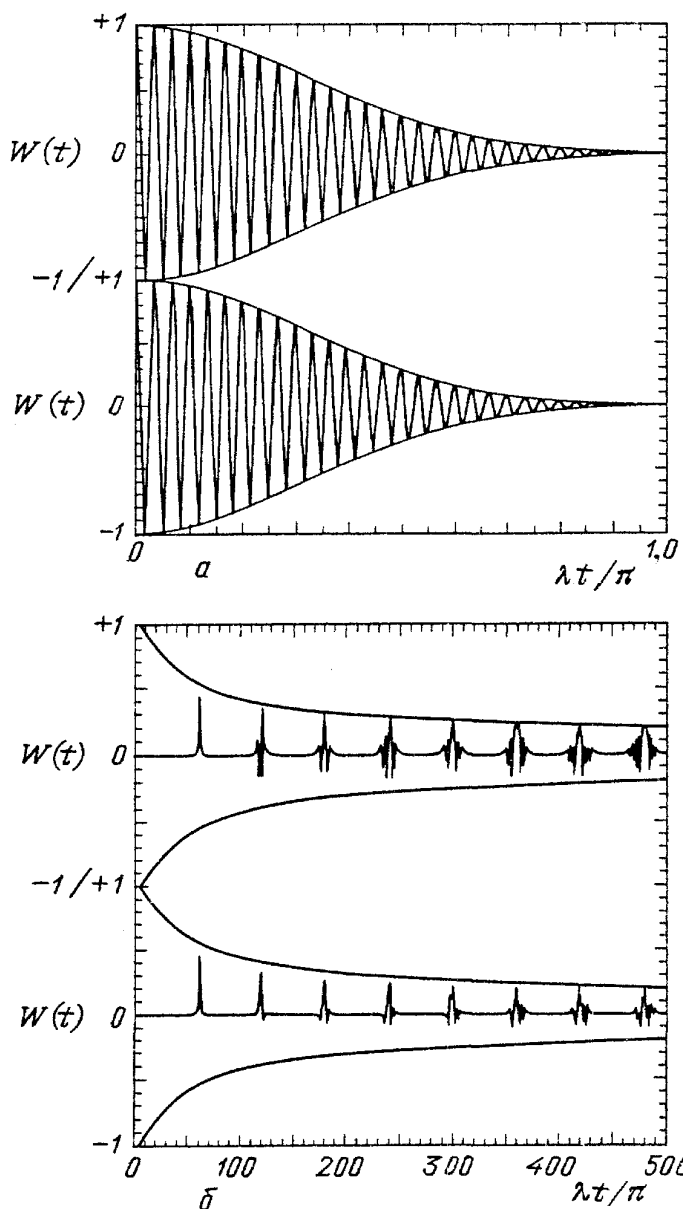


Рис. 15. Долговременная эволюция атомной инверсии  $W(t) = n_2(t) - n_1(t)$  (по работе [97]). *a* — Коллапс. *б* — Возрождения биений Раби

В работах [96, 97] было впервые обращено внимание на то, что при  $t \sim T_{\text{rev}} = \pi(d\Omega_n/dn|_{\bar{n}})^{-1} \gg t_0$  дополнительные фазовые сдвиги между различными вкладками в (48), обусловленные непостоянством  $\Omega_n$ , становятся кратными  $\pi$ . При этом начальный временной ход биений населенности приблизительно восстанавливается (происходит их возрождение), а затем они вновь коллапсируют. Приближенные возрождения происходят также при  $t = mT_{\text{rev}}$  ( $m = 2, 3, 4 \dots$ ) (рис. 15). Форма огибающих биений вблизи каждого возрождения, а также пульсации в режиме, когда эти огибающие начинают перекрываться, подробно исследованы в [97, 137, 138]. Аналогичные особенности проявляются также во временной динамике среднего дипольного момента атома. В случае двухфотонного резонанса атома с полевой модой приближенная периодичность возрождений становится точной [139]. Воз-

рождения рабиевских пульсаций населенности в модели Джейнса—Каммингса обусловлены дискретным характером энергии квантованного электромагнитного поля и представляют собой чисто квантовое явление. Коллапс и возрождение рабиевских нутаций были впервые наблюдаемы в ходе эксперимента [140] (см. также обзор [141]), в котором пучок атомов рубидия в состоянии  $63p_{3/2}$  пропусклся сквозь высокодобротный сверхпроводящий микроволновой резонатор. Двухуровневой системе модели Джейнса—Каммингса отвечал переход между ридберговскими состояниями  $63p_{3/2} - 61d_{5/2}$ , на частоту которого был настроен резонатор. Количество неравновесных фотонов в моде, возникающих при переходе атомов на нижний уровень, определяется потоком атомов через резонатор. Измерения производились при различных значениях потока, при этом внутри резонатора никогда не находилось одновременно более одного атома. Время взаимодействия атомов с полем (время пролета резонатора) управлялось с помощью изменения скорости атомного пучка. Населенность атомов в верхнем состоянии после прохода резонатора контролировалась по сигналу ионизации. При малых потоках в зависимости атомной инверсии от времени наблюдались рабиевские биения. С увеличением потока биения сглаживались, а затем вновь возникали, что интерпретировалось как коллапс и возрождение.

Нетривиальная временная динамика усредненных величин (населенностей уровней, среднего дипольного момента атома) непосредственно связана с перестройкой пакета состояний полевого осциллятора. Покажем это с помощью аргументов, аналогичных использованным при рассмотрении дробных возрождений в § 2. Рассмотрим, например, вид той части волновой функции поля, которая отвечает нахождению атома в состоянии 1 спустя время  $t$ :

$$\begin{aligned}
 |\psi_1(t)\rangle = & \frac{1}{2} |1\rangle \sum_{n=0}^{\infty} a_n \exp(-i\Omega_n t - in\omega t) |n\rangle + \\
 & + \frac{1}{2} |1\rangle \sum_{n=0}^{\infty} a_n \exp(i\Omega_n t - in\omega t) |n\rangle \quad (53)
 \end{aligned}$$

(внутрирезонаторное поле в таком состоянии может быть получено путем регистрации атомов, покидающих резонатор спустя время взаимодействия  $t$ , и отбора только тех реализаций, когда атом оказывается в состоянии 1). Вероятность регистрации атома в нижнем энергетическом состоянии равна, естественно,  $|\langle \psi_1(t) | \psi_1(t) \rangle|^2$ . Если считать, что в начальный момент времени поле находилось в когерентном состоянии и пренебречь отличием  $\Omega_n$  от  $\Omega_{\bar{n}}$ , то  $|\psi_1(t)\rangle$  представляет собой суперпозицию двух наложенных друг на друга пакетов, имеющих гауссовскую форму в "пространстве" полевого осциллятора, и колеблющихся синфазно

$$\langle 1 | \psi_1(t) \rangle \approx \frac{1}{2} \exp(-i\Omega_{\bar{n}} t) |\alpha \exp(-i\omega t)\rangle + \frac{1}{2} \exp(i\Omega_{\bar{n}} t) |\alpha \exp(-i\omega t)\rangle.$$

Если удержать в разложении (52) члены первого порядка по  $(n - \bar{n})$ , то последние приводят к эффективной перенормировке частот колебаний пакетов  $\omega \rightarrow \omega \pm d\Omega_n/dn|_{\bar{n}}$ . В результате первоначально сфазированные пакеты в (53) разойдутся, перестанут перекрываться, что уничтожит их интерференцию и приведет к коллапсу биений населенности. Спустя время  $T_{\text{rev}}$  пакеты вновь перекроются, что проявится в возрождении биений. Подобная связь явлений коллапса и возрождений в модели Джейнса—Каммингса с расщеплением полевого пакета была недавно теоретически обнаружена в работах [142, 143] в ходе изучения долговременного поведения  $Q$ -функции электромагнитной моды.

## 6. Заключение

Исследование динамики пакетов из высоковозбужденных стационарных состояний различных квантовых систем привело за последние несколько лет к ряду важнейших результатов. Стало возможным в ходе экспериментов с импульсным лазерным возбуждением атомов и молекул наблюдать эффекты, относящиеся к области, пограничной между квантовой и классической физикой. Появилась практическая возможность создания локализованных волновых пакетов, движущихся согласно квазиклассическим законам и описывающих почти классические колебания ядер в молекулах и кеплеровское движение электрона в атоме. По существу впервые с момента создания квантовой механики атомных частиц принцип соответствия и границы его применимости стали предметом непосредственного экспериментального исследования. Теоретически и экспериментально было показано, что долговременная "пост-классическая" эволюция волновых пакетов протекает достаточно универсальным образом, приводя к образованию макроскопических квантовых структур, сменяющих друг друга с течением времени. Механизмы образования когерентных пакетных структур в волновых функциях атомных частиц оказались тесно связанными с механизмами генерации неклассических состояний света в нелинейно-оптических системах, обусловленными существенно квантовой природой электромагнитного поля. В целом это открывает новые перспективы для проверки оптическими методами основополагающих положений квантовой механики. Наряду с этим обнаружили и некоторые возможности практического использования этого круга явлений.

Исследования пакетной динамики в описанном выше аспекте весьма далеки от завершения. Поэтому было бы опрометчивым давать пространные прогнозы их дальнейшего развития. Отметим лишь некоторые проблемы. Было бы важным реализовать пакет ридберговских состояний атома, локализованный как в радиальном, так и в угловых переменных, представляющий собой частице-подобное образование, движущееся по кеплеровской орбите. Тем самым, наконец, будет впервые реализован резерфордский атом, представление о котором сыграло столь важную роль в становлении квантовой механики. Весьма важными являются исследования долговременной эволюции пакетов также и с точки зрения соотношения проявлений динамического хаоса в классических и квантовых системах. Учитывая универсальность закономерностей эволюции волновых пакетов в квантовых системах с дискретным спектром, значительный интерес представляет включение в число изучаемых объ-

ектов квантовых размерных полупроводниковых структур, например, квантовых ям. Использование этих микроэлектронных структур с квантовыми свойствами предоставляет еще один путь перехода в указанную пограничную область через физику так называемых мезоскопических явлений. Этот путь, по существу, альтернативен описанному в настоящем обзоре, так как переход в мезоскопическую область осуществляется со стороны макроскопии.

Авторы признательны Н.Б. Делоне, стимулировавшему настоящий обзор, а также Дж. Эберли, Х. Метью, К. Страуду, А. Мекоззи, П. Томбеси, Б. Йюрку и П. Цоллеру за любезное предоставление отписок последних работ, в том числе находящихся на стадии публикации.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- [1] *Bohr N.*//Zs. Phys. 1923. Bd. 13. S. 117.
2. *Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М.* Квантовая механика. — М.: Наука, 1974.
  3. *Мессиа А.* Квантовая механика. Т. 1. — М.: Наука, 1979.
  4. *Блохинцев Д.И.* Основы квантовой механики. — М.: Высшая школа. 1963.
  5. *Schrodinger E.*//Naturwissenschaften. 1926. Bd. 28. S. 664.
  6. *Letters on Wave Mechanics*/Ed. K. Przibram. — Philosophical Library. 1967. — Pp. 55 — 75.
  7. *Perelomov A.M.*// Commun. Math. Phys. 1972. V. 26. P. 222.
  8. *Barut A.O., Girardello I.*//Ibidem. 1971. V. 21. P. 41.
  9. *Nieto M.M., Simmons L.M. Jr.*//Phys. Rev. Lett. 1978. V. 41. P. 207.
  10. *Nieto M.M.*//Phys. Rev. Ser. D. 1980. V. 22. P. 391.
- [11] *Gutschik V.P., Nieto M.M.*//Ibidem. P. 403.
12. *Mostowski J.*//Lett. Math. Phys. 1977. V. 2. P. 1.
  13. *Gerry C.C.*//Phys. Rev. Ser. A. 1986. V. 33. P. 6.
  14. *Bhaumic D., Dutta-Roy B., Ghosh G.*// J. Phys. Ser. A. 1986. V. 19. P. 1355.
  15. *Brown L.S.*//Am. J. Phys. 1973. V. 41. P. 525.
  16. *Parker J., Stroud C.R., Jr.*//Phys. Rev. Lett. 1986. V. 56. P. 716 — 719.
  17. *Molander W.A., Stroud C.R., Jr. Yeazell J.A.*// J. Phys. Ser. B. 1986. V. 19. P. L461.
  18. *Parker J., Stroud C.R., Jr.*//Phys. Scripta. 1986. V. T12. P. 70.
  19. *Alber G., Ritsch H., Zoller P.*//Phys. Rev. Ser. A. 1986. V. 34. P. 1058.
  20. *Van Linden van den Heuvell H.B., Muller H.G., Varschuur J.W.J., ten Wolde A.* // J Phys. Ser. B. 1987. V. 20. P. L517.
- [21] *Yeazell J.A., Stroud C.R. Jr.*//Phys. Rev. Ser. A. 1987. V. 35. P. 2806.
22. *Henle W.A., Ritsch H., Zoller P.* // Phys. Rev. Ser. A. 1987. V. 36. P. 683.
  23. *Yeazell J.A., Stroud C.R., Jr.*//Phys. Rev. Lett. 1988. V. 60. P. 1494.
  24. *Ten Wolde A., Noordam L.D., Lagendijk A., van Linden van den Heuvell H.B.*//Ibidem. V. 61. P. 2099.
  25. *Noordam L.D., ten Wolde A., Muller H.G., Lagendijk A., van Linden van den Heuvell H.B.* // J. Phys. Ser. B. 1988. V. 21. P. 1,533.
  26. *Fedorov M.V., Movsesian A.M.* // J. Opt. Soc. Am. Ser. B. 1988. V. 5. P. 850.
  27. *Alber G., Zoller P.*//Phys. Rev. Ser. A. 1988. V. 37. P. 337,
  28. *Alber G., Hashwanter Th., Zoller P.*// J. Opt. Soc. Am. Ser. B. 1988. V. 5. P. 2439.
  29. *Альбер Г., Цоллер Н.*//КЭ. 1988. Т. 15. С. 1142.
  30. *Grochmalicki J., Lewetibtein M.*// J Phys. Ser. B. 1988. V. 21. P. 3285.
- [31] *Averbukh I.Sh., Perelman N.F.*// Phys. Ser. A. 1989. V. 139. P. 449.
32. *Авербух И.Ш. Перельман Н.Ф.*//ЖЭТФ. 1989. Т. 96. С. 818.
  33. *Yeazell J.A., Mallalieu M., Parker J., Stroud C.R., Jr.*//Phys. Rev. Ser. A. 1989. V. 40. P. 5040.
  34. *Ten Wolde A., Noordam L.D., Lagendijk A., van Linden van den Heuvell H.B.*//Ibidem. P. 485.
  35. *Noordam L.D., ten Wolde A., Lagendijk A., van Linden van den Heuvell H.B.*//Ibidem. P. 6999.
  36. *Noordam L.D., Verschuur J.W., Agostini P., Muller H.G., Breger P., Migus A., van Linden van den Heuvell H.B.*// J. Phys. Ser. B. 1989. V. 22. P. L57.
  37. *Noordam L.D., Muller H.G., ten Wolde A., van Linden van den Heuvell H. B.*//Intensity-induced chirped Rydberg wave packets: a new way of creating short light pulses. — Preprint. FOM-Institute

- for Atomic and Molecular Physics. — Amsterdam, 1990.
38. *Gratle H., Alber G., Zoller P.*// J Phys. Ser. B. 1989, V. 22. P. L547.
  39. *Alber G., Zoller P.*//Phys. Rev. 1989. V. 40. P. 1321.
  40. *Быков В.П.*// Кр. сообщ. физ., ФИАН СССР. 1989. № 1. С. 7.
  - [41] *Alber G.*//Phys. Rev. Ser. A. 1989. V. 40. P. 1321.
  42. *Мовсесян А.М., Федоров М.В.*//ЖЭТФ, 1989. Т. 95. С. 47.
  43. *Fedorov M.V., Movsesian A.M.*// J. Opt. Soc. Am. Ser. B. 1989. V. 6. P. 1504.
  44. *Parker J., Stroud C.R., Jr.*//Phys. Rev. Ser. A. 1990 V. 41, P. 1602.
  45. *Yeazell J.A., Mallalieu M., Stroud C.R., Jr.* //Phys. Rev. Lett. 1990. V. 64. P. 2007.
  46. *Dacic Gaeta Z., Stroud C.R., Jr.*//Phys. Rev. Ser. A. 1990 (submitted).
  47. *Averbukh I.Sh., Perelman N.F.*//Acta Phys. Polon. Ser. A. 1990. V. 78. P. 33.
  48. *Alber G., Zoller P.*//Phys. Rep. 1990 (submitted).
  49. *Zewail A.H.*//Science. 1988. V. 242, No. 4885. P. 1645.
  50. *Rosker M.J., Dantus M., Zewail A.H.*// Ibidem. V. 241. P. 1200.
  - [51] *Dantus M., Rosker M.J., Zewail A.H.*// J. Chem. Phys. 1987. V. 87. P. 2395.
  52. *Dantus M., Bowman R.M., Zewail A.H.*// Ibidem. 1988. V. 89. P. 6128.
  53. *Rosker M.J., Rose T.S., Zewail A.H.*//Chem. Phys. Lett. 1988. V. 146. P. 175.
  54. *Rose T.S., Rosker M.J., Zewail A.H.*//Chem. Phys. Lett. 1988. V. 88. P. 6672.
  55. *Bowman R.M., Dantus M., Zewail A.H.*//Chem. Phys. Lett. 1989. V. 161. P. 297.
  56. *Gruebele M., Roberts C., Dantus M., Bowman R.W., Zewail A.H.*// Chem. Phys. Lett. 1990. V. 166. P. 459.
  57. *Williams S.O., Imre D.G.*// J. Phys. Chem. 1988. V. 92. P. 6636.
  58. *Williams S.O., Imre D.G.*// Ibidem. P. 6648.
  59. *Bernstein R.B., Zewail A.H.*// J. Chem. Phys. 1989. V. 90. P. 829.
  60. *Soo-Y. Lee, Pollard W.T., Mathies R.A.*//Chem. Phys. Lett. 1989. V. 160. P. 531.
  - [61] *Lin S.H., Fain B.*//Ibidem. V. 155. P. 216.
  62. *Heather R., Metiu H.*//Ibidem. V. 157. P. 505.
  63. *Beswick J.A., Jortner J.*//Ibidem. 1990. V. 168. P. 246.
  64. *Soo-Y. Lee, Pollard W.T., Mathies R.A.*// J. Chem. Phys. 1989. V. 90. P. 6146.
  65. *Engel V., Metiu H.*//Ibidem. V. 91. P. 1596.
  66. *Engl V., Metiu H., Almeida R., Marcus R.A., Zewail A.N.*//Chem. Phys. Lett. 1988. V. 152. P. 1.
  67. *Marcus R.A.*//Ibidem. P. 8.
  68. *Engl V., Metiu H.*// J. Chem. Phys. 1989. V. 90. P. 6116.
  69. *Fain B., Lin S.H., Hamer I.*//Ibidem. V. 91. P. 4485.
  70. *Metiu H., Engel V.*//Coherence, transience and interference in photo-dissociation with ultra-stiom pulses. — Preprint: Santa Barbara: University of California, 1990.
  - [71] *Tannor D.J., Rice S.A.*// J. Chem. Phys. 1983. V. 10, P. 5013.
  72. *Tannor D.J., Kosloff R., Rice S.A.*//Ibidem 1985. V. 10. P. 5805.
  73. *Hurtke B., Kosloff R., Ruliman S.*//Chem. Phys. Lett. 1989. V. 158. P. 238.
  74. *Dantus M., Bowman R.M., Baskin J.S., Zewail A.H.*//Ibidem. V. 159. P. 406.
  75. *Brumer P., Shapiro M.*//Ibidem. 1986. V. 126. P. 541.
  76. *Seideman T., Shapiro M.*// J. Chem. Phys. 1989. V. 90. P. 7139.
  77. *Shapiro M., Brumer P.*//Ibidem. P. 6179.
  78. *Yi Jing Yan, Fried L.E., Mukamel S.*//Ibidem. V. 93, P. 8149.
  79. *Averbukh I.Sh., Kovarsky V.A., Perelnuun N.F.*//Phys. U-tt. Ser. A. 1989. V. 137. П 267.
  80. *Su T.M.*//Chem. Phys. 1990. V. 144. P. 93.
  - [81] *Stock C., Schneider R., Domcke W.*//J. Chem. Phys 1989, V. 90. P. 7184.
  82. *Janszky J., Kohayashi T., Vinogradov An.V.*//Opl. Commun. 1990. V. 76. P. 30.
  83. *Vinogradov An. V., Jamzky J.*//Acta Phys. Polon. Ser. A. 1990. V. 78. P. 231.
  84. *Benjamin L., Wilson K.R.*// J Chem. Phys. 1989. V. 90. P. 4176.
  85. *Choi S.E., Eight J.C.*//Ibidem. P. 2593.
  86. *Engel V., Metiu H.*//Chem. Phys. Lett. 1989. V. 155. P. 77.
  87. *Milburn G.J.*//Phys. Rev. Ser. A. 1986. V. 33. P. 674.
  88. *Milburn G.J., Holmes C.A.*//Phys. Rev. Lett. 1986. V. 56. P. 2237.
  89. *Yurk B., Stoler D.*//Ibidem. V. 57. P. 13.
  90. *Yurke B., Stoler D.*//Phys. Rev. Ser. A. 1987. V. 35. P. 4846.
  - [91] *Yurke B., Stoler D.*// Physica. Ser. B. 1988. V. 151. P. 298.
  92. *Takahashi K., Saitn N.*//Phys. Rev. Lett. 1985. V. 55. P. 645.
  93. *Mecozzi A., Tombesi P.*//Ibidem. 1987. V. 58. P. 1055.
  94. *Tombezi P., Mecozzi A.*// J. Opt. Soc. Am. Ser. B. 1987. V. 4. P. 1700.



95. *Yoo H.I., Eberly J.H.*//Phys. Rep. 1985. V. 118. P. 239.
96. *Eberly J.H., Narozhny N.B., Sanchez-Mondragon J.J.*//Phys. Rev. Lett. 1980. V. 44. P. 1323.
97. *Narozhny N.B., Sanchez-Mondragon J.J., Eberly J.H.*//Phys. Rev. Ser. A. 1981. V. 23. P. 236.
98. *Фейнман Р., Хибс А.* Квантовая механика и интегралы по траекториям. — М.: Мир, 1968.
99. *Гольдман И.И., Кривченко В.Д.* Сборник задач по квантовой механике. — М.: Гостехиздат, 1957.
100. *Луиселл У.* Излучение и шумы в квантовой электронике. — М.: Наука, 1972.
101. *Cabrera G.G., Kiwi M.*//Phys. Rev. Ser. A. 1987. V. 36. P. 2995.
102. *Walls D.F.*//Nature, London. 1983. V. 306. P. 141.
103. *Henry R.W., Clotzer S.G.*//Am. J. Phys. 1988. V. 56. P. 318.
104. *Schleich W., Wheeler J.A.*// J. Opt. Soc. Am. Ser. B. 1987. V. 4. P. 1715.
105. *Gronbech-Jensen N., Christiansen P.L., Ramanujam P.S.*// J. Opt. Soc. Am. Ser. B. 1989. V. 6. P. 2423.
106. *Hogg T., Huberman B.A.*// Phys. Rev. Lett. 1982. V. 48. P. 711.
107. *Besicovich A.S.* Almost Periodic Functions. — Cambridge, England, Cambridge Univ. Press, 1932.
108. *Фок В.А.* Начала квантовой механики. — М.: Наука, 1976.
109. *Hillery M., O'Connell R.F., Scully M.O., Wigner E.P.*//Phys. Rep. 1984. V. 106. P. 121.
110. *Eberly J.H., Yeh J.J., Bowden C.M.*//Chem. Phys. Lett. 1982. V. 86. P. 76.
- [111] *Yeh J.J., Bowden C.M., Eberly J.H.*// J. Chem. Phys. 1982. V. 76. P. 5936.
112. *Kyrola E., Eberly J.H.*// Ibidem. 1985. V. 82. P. 1841.
113. *Делоне Н.Б., Крайнов В.П.* Атом в сильном световом поле. — М.: Атомиздат, 1978.
114. *Акулин В.М., Карлов И.В.* Интенсивные резонансные взаимодействия в квантовой электронике. — М.: Наука, 1987.
115. *Vixion M., Jortner J.*// J. Chem. Phys. 1968. V. 48. P. 715.
116. *Englman R.* Nonradiative Decay of Ions and Molecules in Solids. — Amsterdam, New York; Oxford: North-Holland, 1979.
117. *Медведев Э.С., Ошеров В.И.* Теория безызлучательных переходов в многоатомных молекулах. — М.: Наука, 1983.
118. *Коварский В.А., Перельман Н.Ф., Авербух И.Ш.* Многоквантовые процессы. — М.: Энергоатомиздат, 1985.
119. *Аллен Л., Эберли Дж.* Оптический резонанс и двухуровневые атомы. — М.: Мир, 1978.
120. *Александров К.Б./УФН.* 1972. Т. 107. С. 595.
121. *Averbukh I.Sh., Kovarsky V.A., Perelman N.F.*//Phys. Lett. Ser. A. 1979. V. 70. P. 289.
122. *Lefebvre R., Savolainen J.*// J. Chem. Phys. 1974. V. 60. P. 2509.
123. *Galbraith H.W., Ackerhalt J.R., Milonni P.W.*// Ibidem. 1983. V. 78. P. 790.
124. *Ахманов С.А., Вислоух В.А., Чиркан А.С.* Оптика фемтосекундных лазерных импульсов. — М.: Наука, 1988.
125. *Андрюшин А.И., Казаков А.Е., Федоров М.В.*//ЖЭТФ. 1979. Т. 76. С. 1907.
126. *Fano U.*// Phys. Rev. 1961. V. 124. P. 1866.
127. *Arimondo E., Orriols G.*//Nuovo Cimento Lett. 1976. V. 17. P. 333.
128. *Schwartz C., LeRoy R.J.*// J. Chem. Phys. 1984. V. 81. P. 3996.
129. *Imoto N., Haus H.A., Yamamoto Y.*//Phys. Rev. Ser. A. 1985. V. 32. P. 2287.
130. *Titulaer U., Glauber R.*//Ibidem. 1965. V. 145, P. 1041.
- [131] *Yuen H.P., Shapiro J.H.*// IEEE Trans. Inform. Theory. 1980. V. 26. P. 78.
132. *Yuen H.P., Chan V.W.S.*//Opt. Lett. 1983. V. 8. P. 177.
133. *Schumaker B.L.*//Ibidem. 1984. V. 9. P. 189.
134. *Jaynes E.T., Cummings F.W.*//Proc. Inst. Elect. Eng. 1963. V. 51. P. 89.
135. *Jaynes E.T.* Stanford University Microwave Laboratory Report No. 502. — P. 1958.
136. *Cummings F.W.*//Phys. Rev. Ser. A. 1965. V. 140. P. 1051.
137. *Yoo H.L., Sanchez-Mondragon J.J., Eberly J.H.*// J. Phys. Ser. A. 1981. V. 14. P. 1383.
138. *Hioe F.T., Yoo H.I., Eberly J.H.*// Coupled Nonlinear Oscillators/Eds. J. Chandra, A.C. Scott. — Amsterdam: North-Holland, 1983. — P. 95.
139. *Buck B., Sukumar C.V.*//Phys. Lett. Ser. A. 1981. V. 81. P. 132.
140. *Rempe G., Walther H., Klein N.*//Phys. Rev. Lett. 1987. V. 58. P. 353.
141. *Бетеров ИМ, Лернер П.Б.*//УФН. 1989. Т. 159. С. 665.
142. *Eiselt J., Risken H.*//Opt. Commun. 1989. V. 72. P. 351.
143. *Phoenix S.D.J., Knight P.L.*// J. Opt. Soc. Am. Ser. B. 1990. V. 7. P. 116.
144. *Yeazell J.A., Stroud C.R., Jr.*//Phys. Rev. Ser. A. (submitted).

Статья поступила 16.01.91 г.,  
после доработки 25.03.91 г.