

飞秒激光参数对三态梯度型分子态布居数的影响

郭玮^{1,2}, 冯小静¹

1. 南华大学电气工程学院, 衡阳 421001

2. 中国科学院大连化学物理研究所; 分子反应动力学国家重点实验室, 大连 116023

摘要 利用含时波包研究并且首次量化了强飞秒泵浦-探测激光场中泵浦场强、泵浦波长和脉宽对三态梯度型 K_2 分子态布居数的影响。泵浦场强、泵浦波长和脉宽影响Rabi振荡, 而Rabi振荡的变化又导致了基态和激发态布居数周期性变化。量化这三个激光场参数对激发态布居数的影响验证了此周期性变化规律, 表明变化频率随着泵浦场强和脉宽的增大而变化。研究表明调节激光场参数可实现对态布居数的选择性分布, 可以为实验上实现分子的光控制提供重要参考。

关键词 含时波包法; 三态梯度型 K_2 分子; 态布居数; Rabi振荡

利用超短激光脉冲控制原子/分子的布居数转移是激光与物质相互作用的一个重要研究方向^[1-3]。研究发现激光场强、波长、脉宽和延时等激光参数影响原子/分子的布居数转移^[4-24]。理论和实验上已有对不同构型的多态原子/分子体系的研究。

Yan等^[4]研究了分子转动对 Li_2 分子布居转移和布居角分布的影响。Wollenhaupt等^[5]和Yuan等^[6-8]研究了场强、脉宽、延时和波长对 Na_2 分子基态、激发态布居数的影响。Yao等^[9-11]对三态/四态 K_2 分子的量子调控研究认为场强、泵浦波长可以控制缀饰态的选择性布居。Zhang等^[12]对 $NaLi$ 分子飞秒动力学研究发现激光场强和波长通过影响非绝热耦合强度从而影响布居数的转移效率。Ma等^[13]对 $NaRb$ 分子的研究表明, 波包在激发态势能面上的运动具有周期性, 场强影响各态布居。Xiong等^[19]研究了波长对 CsI 分子激发态布居的影响, 认为激发态布居数均在共振激发波长处达到最大, 非绝热耦合对态布居数有较大影响。Meng等^[20]认为延时影响 RbI 分子光电子能谱谱峰的峰度、位置以及离子信号布居。Miao等^[21]和Arasaki等^[22]对 NaI 分子的研究表明延时影响态布居数, 总离子信号随延时呈周期性变化。Ma等^[14]、Wang等^[15]和Meng等^[16-18]对 NO 的研究认为, 场强、延时和脉宽影响态布居数, 布居数的变化具有一定的周期性。Miao等^[23,24]研究了延时对 I_2^- 阴离子光电子能谱和基态、激发态布居数的影响, 研究表明延时改变谱峰的位置和峰高, 总光电子信号随着延时的增加呈周期性变化。

目前尚未有三态梯度型 K_2 布居数转移的研究报道。本文采用含时波包方法, 研究泵浦场强、泵浦波长、脉宽这三个激光参数对三态梯度型 K_2 分子基态、激发态及电离态布居数转移的影响。

1 基本理论

如图1所示, 本文采用 K_2 分子的三态模型: 基态 $|X\rangle (|X\rangle^1\Sigma_g^+)$ 、激发态 $|B\rangle (|B\rangle^1\Sigma_g^+)$ 和电离态 $|X^+\rangle (|X^+\rangle^2\Sigma_g^+)$ ^[9,10,25]。泵浦激光将初始处于基态 $|X\rangle$ 势能面上的 K_2 分子激发到激发态 $|B\rangle$ 势能面上。经过一段时间的延时, 探测激光将处于激发态上的分子电离到电离态, 并释放出光电子。

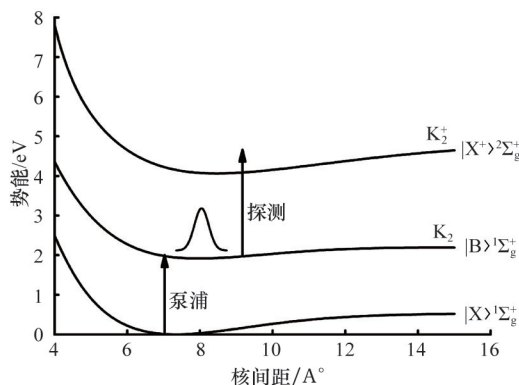


图1 K_2 分子的势能曲线

Fig. 1 Potential curves of K_2 molecule

收稿日期: 2015-06-04; 修回日期: 2015-12-17

基金项目: 国家自然科学基金项目(11447020); 湖南省自然科学基金项目(2015JJ3104)

作者简介: 郭玮, 副教授, 研究方向为物理电子学, 电子信箱: vella99@163.com; 冯小静(共同第一作者), 硕士研究生, 研究方向为物理电子学, 电子信箱: 1012277640@qq.com

引用格式: 郭玮, 冯小静. 飞秒激光参数对三态梯度型分子态布居数的影响[J]. 科技导报, 2016, 34(18): 84-88; doi:10.3981/j.issn.1000-7857.2016.18.009

采用波恩-奥本海默近似,且忽略核与电子之间的耦合,波函数 Ψ 可以通过求解含时薛定谔方程得到

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

系统的哈密顿量 H 可以写为

$$H = H_s + H' = T + V + H' \quad (2)$$

其中, $H_s = T + V$ 是 K_2 分子的哈密顿量, T 是核的动能算符, V 是系统的势能, H' 是 K_2 分子与激光场的相互作用算符。

对此三态模型,波函数 Ψ 可以写成列向量的形式为

$$\Psi = (\Psi_X, \Psi_B, \Psi_I)^T \quad (3)$$

其中, Ψ_X, Ψ_B, Ψ_I 分别表示基态 $|X\rangle$ 、激发态 $|B\rangle$ 、以及电离态 $|X^+\rangle$ 的波函数。电离态 $|X^+\rangle$ 是一个连续态,根据出射光电子的能量分布, Ψ_I 可以转化成一一系列的准连续态,其表示形式为

$$\Psi_I = (\Psi^{(1)}, \Psi^{(2)}, \dots, \Psi^{(N)})^T \quad (4)$$

其中, N 表示 K_2 离子电离连续态的数目。

动能算符 T 可以表示为

$$T = -\frac{\hbar^2}{2\mu} \frac{\partial^2}{\partial R^2} \begin{pmatrix} 1 & 0 & \theta \\ 0 & 1 & \theta \\ \tilde{\theta} & \tilde{\theta} & \Pi \end{pmatrix} \quad (5)$$

其中, μ 是 K_2 分子的折合质量, R 是核间距, $\theta = (0, 0, \dots, 0)$ 是一个 N 维的零向量, $\tilde{\theta}$ 是 θ 的转置向量, Π 是一个 $N \times N$ 维的单位矩阵。

势能算符 V 可以表示为

$$V = \begin{pmatrix} V_X & 0 & \theta \\ 0 & V_B & \theta \\ \tilde{\theta} & \tilde{\theta} & (V_I + \xi^{(k)})\Pi \end{pmatrix} \quad (6)$$

其中, V_X, V_B, V_I 分别表示 K_2 分子的基态 $|X\rangle$ 、激发态 $|B\rangle$ 、电离态 $|X^+\rangle$ 势能面。 $\xi^{(k)} = (k-1)\Delta\xi$ ($k=1, 2, \dots, N$) 是出射光电子的能量。

分子与激光场之间的相互作用项 H' 可以表示为

$$H' = \begin{pmatrix} 0 & W_{XB} & 0 \\ W_{XB} & 0 & W_{BI} \\ 0 & \tilde{W}_{BI} & \Lambda \end{pmatrix} \quad (7)$$

其中, $W_{BI} = (W_{BI}^{(1)}, W_{BI}^{(2)}, \dots, W_{BI}^{(N)})$ 是一个 N 维的行向量, 向量元代表的是激发态 $|B\rangle$ 和电离态 $|X^+\rangle$ 在激光场作用下的耦合, Λ 是一个 $N \times N$ 维的零矩阵。两个电子态在外场下的耦合可以表示为

$$W_{XB} = \hbar\Omega_1(R)\cos(\omega_1 t) \quad (8)$$

$$W_{BI}^{(k)} = \hbar\Omega_2(R)\cos[\omega_2(t - \Delta t)] \quad (9)$$

其中, $\Omega_1 = \frac{1}{\hbar}\mu_{XB}(R) \cdot e_1 f_1(t)$ 和 $\Omega_2 = \frac{1}{\hbar}\mu_{BI}(R) \cdot e_2 f_2(t)$ 分别表示基态 $|X\rangle$ 和激发态 $|B\rangle$ 、激发态 $|B\rangle$ 和电离态 $|X^+\rangle$ 之间的 Rabi 频率, $\mu_{XB}(R)$ 和 $\mu_{BI}(R)$ 分别表示基态 $|X\rangle$ 和激发态 $|B\rangle$ 、激发态 $|B\rangle$ 和电离态 $|X^+\rangle$ 之间的跃迁偶极矩 ($k=1, 2, \dots, N$), e_1 和 e_2 分别表示泵浦和探测激光场的幅值, ω_1 和 ω_2 是它们的角频率, 它们的包络采取高斯形式分别为 $f_1(t) = \exp[-4\ln 2 \cdot (t/\tau)^2]$, $f_2(t) = \exp[-4\ln 2 \cdot (t/\Delta t)^2]$ 。 τ 是它们的半高全宽(简称脉宽), $|X\rangle$ 是泵浦和探测脉冲之间的延时。

利用分裂算符-傅里叶变换数值求解含时薛定谔方程^[26-30],一旦求得任意时刻的波函数,便可以得到分子在各电子态上的概率^[9,10,12-16,19-21]

$$P_i(t) = \int |\Psi_i(R, t)|^2 dR, (i = X, B, I) \quad (10)$$

在本文的计算中,相关参量的取值如下:电离态数目 $N=71$,光电子的能量 $\xi^{(k)}$ 的取值范围为 $0 \sim 1.4$ eV。激发态和电离态之间的跃迁偶极矩 $\mu_{BI}(R)$ 取为 $\mu_{XB}(R)$ 的 $1/10$ ^[31,32]。

2 结果与讨论

图2是不同泵浦场强下各态布居数随时间的变化图。实线、虚线、点线分别表示基态 $|X\rangle$ 、激发态 $|B\rangle$ 、和电离态 $|X^+\rangle$ 布居数。激光场的其它参数为:探测场强 $I_2 = 5.0 \times 10^{11} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$, 泵浦波长 $\lambda_1 = 640 \text{ nm}$, 探测波长 $\lambda_2 = 460 \text{ nm}$, 脉宽 $\tau = 30 \text{ fs}$, 延时 $\Delta t = 1800 \text{ fs}$ 。

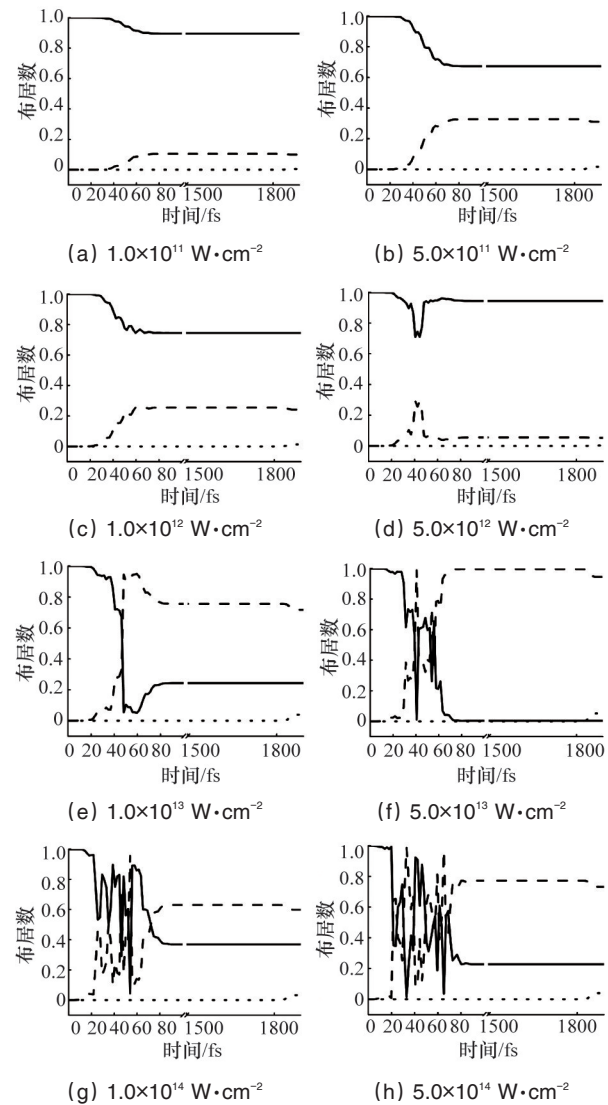


图2 不同泵浦场强下,各态布居数随时间的变化
Fig. 2 The time evolution of state populations of different pump intensities

从图2中可以得出:

1) 在泵浦脉冲的作用下,基态和激发态布居数呈现出 Rabi 振荡;泵浦脉冲消失后,Rabi 振荡立即停止,基态和激发态布居数保持不变。在探测脉冲的作用下,有少部分激发态分子被电离到电离态。

2) Rabi 振荡频率随着泵浦场强的增强而增大。在对 $\text{Na}_2^{[5]}$ 、 $\text{K}_2^{[9-11]}$ 、 $\text{NaLi}^{[12]}$ 、 $\text{NaRb}^{[13]}$ 、 $\text{NO}^{[14-18]}$ 等分子的研究中已经观察到了类似的现象。这是因为激发概率^[12,13,16]

$$P(t) = (e_i^2 / \hbar^2 \Omega_i^2) \sin^2\left(\frac{1}{2} \Omega_i t\right) \quad (11)$$

其中, $\Omega_i = [(\omega_i - \omega_{AB})^2 + e_i^2 / \hbar^2]^{1/2}$ 是泵浦激光场的 Rabi 频率, ω_{AB} 是基态和激发态之间的跃迁共振频率, 泵浦激光场幅值 $e_i \propto \sqrt{I_i}$ 。

因此很容易得出 Rabi 频率与泵浦场强之间的关系,即泵浦场强越强,Rabi 频率越大。Rabi 振荡的振幅随着时间的变化而变化,这是基态和激发态联合的动力学行为造成的^[14,16]。

3) 随着泵浦场强的增强,基态和激发态布居数周期性变化。这是 Rabi 振荡导致的^[15,18]。泵浦场强不同会导致 Rabi 振荡频率的不同,从而导致泵浦脉冲消失之后各电子态布居数的不同。类似的布居数随场强周期性变化的规律已经在 $\text{NO}^{[15,18]}$ 和四态 $\text{Na}_2^{[5]}$ 分子中观察到。

图3是不同泵浦波长下各态布居数随时间的变化图。

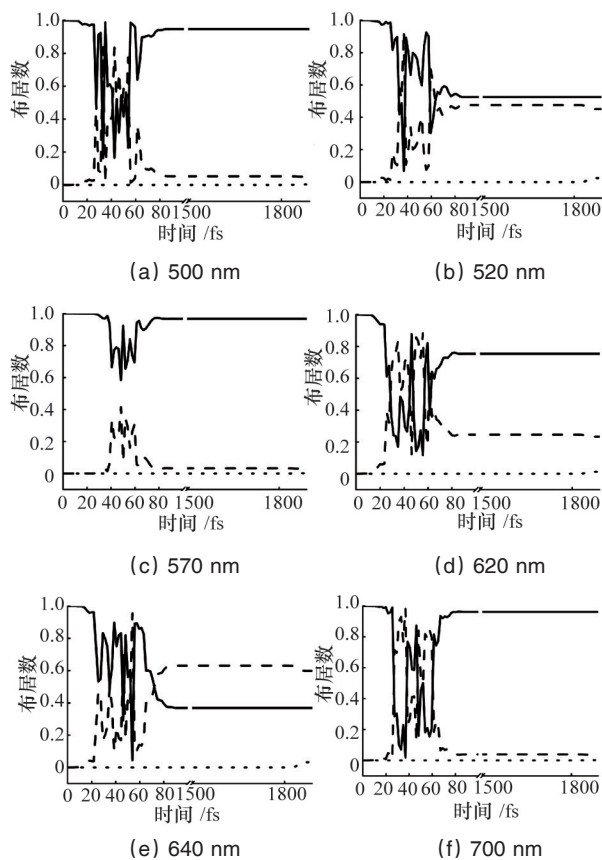


图3 不同泵浦波长下,各态布居数随时间的变化
Fig. 3 The time evolution of state populations of different pump wavelengths

从图3可以看出:

1) 基态和激发态布居数呈现出 Rabi 振荡,泵浦脉冲消失后,Rabi 振荡立即停止。这与 NaCs 态布居的波长依赖性研究结论一致^[33]。在探测脉冲的作用下,有少部分激发态分子被电离到电离态。

2) 随着泵浦波长的增长,基态和激发态布居数周期性变化。基态和激发态布居数的这种周期性变化也可以用 Rabi 振荡来解释。由于泵浦波长影响基态和激发态之间的跃迁共振频率 ω_{AB} ,再结合式(11)可知:泵浦波长不同也会导致 Rabi 频率不同,从而导致泵浦脉冲消失之后各电子态布居数的不同^[12,15]。

3) 当泵浦波长为共振波长 640 nm(图3(e))时,激发态布居数达到最大,此时激发概率最高。这与研究 $\text{NaLi}^{[12]}$ 、 $\text{NO}^{[15,16]}$ 和 $\text{CsI}^{[19]}$ 分子得出的结论一致。

图4是不同脉宽下各态布居数随时间的变化图。

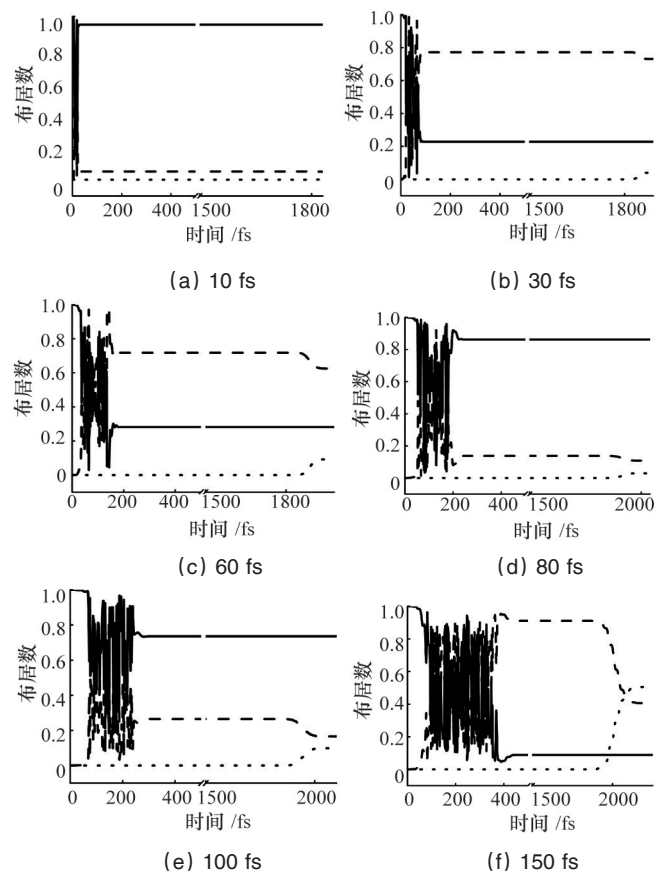


图4 不同脉宽下,各态布居数随时间的变化

Fig. 4 The time evolution of state populations of different pulse widths

从图4可以得出:

1) 在泵浦脉冲作用期间,基态和激发态布居数呈现出较强的 Rabi 振荡。且脉宽越长,Rabi 振荡的时间越长。在探测脉冲的作用下,有部分激发态分子被电离到电离态。脉宽越长,开始电离的时间越晚。

2) 随着脉宽的增长,基态、激发态和电离态布居数周期

性变化。态布居数随脉宽的这种周期性变化规律已经在NO分子中观察到^[15,18]。这可以用面积原理 $P(t) \propto \sin^2 \Theta$ 来解释^[18], 其中 $P(t)$ 是激发概率, 脉冲面积 $\Theta = 4 \frac{1}{\hbar} \mu_{AB} e_i \int_0^\infty f_i(t) dt$ 正比于脉宽^[9], 因此脉宽通过改变脉冲面积使激发态布居数发生上述变化^[18]。

从图2~图4中可以看出, 三态梯度型 K_2 分子基态和激发态布居数随泵浦场强、泵浦波长和脉宽周期性变化。为了更深入地研究这种变化规律, 图5~图7是对激发态布居数随这3个参数变化的量化结果。

图5是不同脉宽下, 激发态布居数随泵浦场强的变化图, 实线、虚线、点线分别表示脉宽 $\tau = 10, 30, 100$ fs。可以得出:

1) 激发态布居数随泵浦场强周期性变化。Rabi振荡频率随着泵浦场强的变化而变化, 这导致了泵浦脉冲消失之后各电子态布居数的不同^[15,18]。

2) 变化频率随着脉宽的增大而增大。

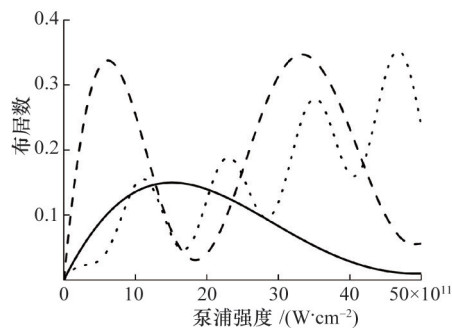


图5 不同脉宽下, 激发态布居数随泵浦场强的变化
Fig. 5 The variation of the excited state population with the pump intensity

图6是不同泵浦场强下, 激发态布居数随泵浦波长的变化图, 实线、虚线、点线分别表示泵浦场强为 $I_1 = 5.0 \times 10^{11}, 5.0 \times 10^{12}, 1.0 \times 10^{14}$ W·cm⁻²。可以得出:

1) 激发态布居数随泵浦波长周期性变化, Rabi振荡频率随着泵浦波长的变化而变化, 这导致了泵浦脉冲消失之后各电子态布居数的不同^[12,15]。

2) 变化频率随着泵浦场强的增强而增大。

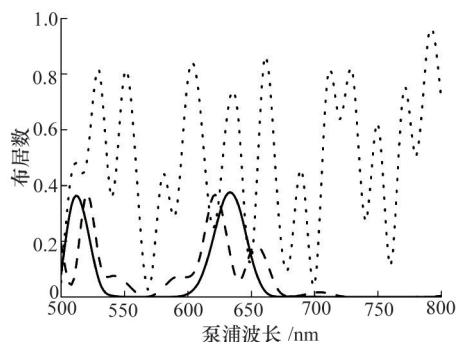


图6 不同泵浦场强下, 激发态布居数随泵浦波长的变化
Fig. 6 The variation of the excited state population with the pump wavelength

图7是不同泵浦场强下, 激发态布居数随脉宽的变化图, 实线、虚线、点线分别表示泵浦场强为 $I_1 = 5.0 \times 10^{11}, 5.0 \times 10^{12}, 5.0 \times 10^{14}$ W·cm⁻²。可以得出:

1) 激发态布居数随脉宽周期性变化, 脉宽通过改变脉冲面积导致泵浦脉冲消失之后各电子态布居数的不同^[18]。

2) 变化频率随着泵浦场强的增强而增大, 这与文献[18]中的结果一致。

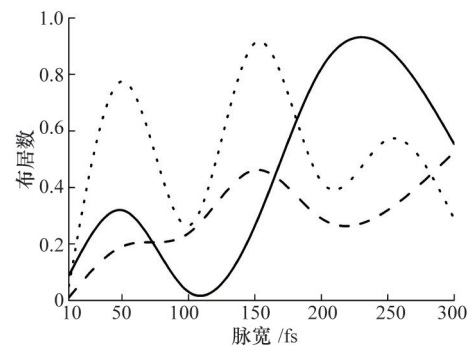


图7 不同泵浦场强下, 激发态布居数随脉宽的变化
Fig. 7 The variation of the excited state population with the pulse width

3 结论

利用含时波包法研究了泵浦场强、泵浦波长、脉宽对三态梯度型 K_2 分子基态、激发态以及电离态布居数的影响, 并且首次量化了这三个参数对激发态布居数的影响。结果表明Rabi振荡频率随着泵浦场强的增强而增大, Rabi振荡导致态布居数随这三个参数周期性变化。量化这三个激光场参数对激发态布居数的影响不仅验证了这一周期性变化规律, 还表明变化频率随泵浦场强和脉宽的增大而增大。本研究结果表明通过控制激光场参数可以实现态布居数的选择性分布。并为实验上实现分子的光控制以及量子调控过程提供一定的参考。

参考文献 (References)

- [1] Magnier S, Persico M, Rahman N. Rabi oscillations between dissociative molecular states[J]. Physical Review Letters, 1999, 83(11): 2159-2162.
- [2] Malinovskaya S A, Malinovsky V S. Chirped-pulse adiabatic control in coherent anti-Stokes Raman scattering for imaging of biological structure and dynamics[J]. Optics Letters, 2007, 32(6): 707-709.
- [3] 王荣, 修俊玲, 牛英煜. 利用多光子跃迁控制基态HF分子布居转移[J]. 物理学报, 2013, 62(9): 93301.
- [4] Wang Rong, Xiu Junling, Niu Yingyu. Population transfer of HF molecules in the ground electronic state through multiphoton transition[J]. Acta Physica Sinica, 2013, 62(9): 93301.
- [5] Yan Tianmin, Han Yongchang, Yuan Kaijun, et al. Steering population transfer via continuum structure of the Li₂ molecule with ultrashort laser pulses[J]. Chemical Physics, 2008, 348(1): 39-44.
- [6] Wollenhaupt M, Assion A, Bazhan O, et al. One-parameter control of quantum dynamics using femtosecond pump-probe photoelectron spectroscopy on a model system[J]. Applied Physics B, 2002, 74(1): s121-s125.
- [6] Yuan Kaijun, Wang Senming, Cong Shulin. Controlling population

- transfer and dissociation rate of Na₂ molecules with Ultra-Short intense laser pulses[J]. Chinese Physics Letters, 2005, 22(10): 2534–2537.
- [7] Yuan Kaijun, Wang Senming, Sun Zhigang, et al. Selective vibrational population transfer between electronic states of the Na₂ molecule with ultrashort laser pulses[J]. Chemical Physics, 2006, 326(2): 605–610.
- [8] Han Yongchang, Wang Senming, Yuan Kaijun, et al. Population transfer of the Na₂ molecule via continuum state[J]. Chemical Physics, 2007, 333(2): 119–127.
- [9] Yao Hongbin, Zheng Yujun. Quantum control of a molecular system in an intense field via the selective population of dressed states[J]. Physical Chemistry Chemical Physics, 2011, 13(19): 8900–8907.
- [10] Yao Hongbin, Zheng Yujun. Autler–Townes splitting in photoelectron spectra of K₂ molecule[J]. Chinese Physics B, 2012, 21(2): 023302.
- [11] 姚洪斌, 李文亮, 张季, 等. K₂分子在强激光场下的量子调控: 缀饰态选择性分布[J]. 物理学报, 2014, 63(17): 178201.
Yao Hongbin, Li Wenliang, Zhang Ji, et al. Quantum control of K₂ molecule in an intense laser field: Selective population of dressed states[J]. Acta Physica Sinica, 2014, 63(17): 178201.
- [12] Zhang Min, Wang Meishan, Xiong Delin, et al. The influence of femtosecond laser parameters on the wavepacket and population of the diabatic excited states of NaLi[J]. Molecular Physics, 2013, 111(1): 61–71.
- [13] Ma Ning, Wang Meishan, Yang Chanlu, et al. Theoretical study of the influence of intense femtosecond laser field on the evolution of the wave packet and the population of NaRb molecule[J]. Chinese Physics B, 2010, 19(2): 023301.
- [14] 马宁, 王美山, 杨传路, 等. 激光场强度对NO电子态粒子数布居影响的理论研究[J]. 物理学报, 2010, 59(1): 215–221.
Ma Ning, Wang Meishan, Yang Chuanlu, et al. Theoretical study of the influence of laser intensity on the population of the NO molecule electronic states[J]. Acta Physica Sinica, 2010, 59(1): 215–221.
- [15] Wang Jun, Liu Fang, Yue Da Guang, et al. Influence of laser fields on the vibrational population of molecules and its wave-packet dynamical investigation[J]. Chinese Physics B, 2010, 19(12): 123301.
- [16] Meng Qingtian, Yang Guanghui, Han Keli. Time-dependent wave packet approach to Rabi oscillation in strong laser field[J]. International Journal of Quantum Chemistry, 2003, 95(1): 30–36.
- [17] Meng Qingtian, Yang Guanghui, Sun Hailin, et al. Theoretical study of the femtosecond-resolved photoelectron spectrum of the NO molecule [J]. Physical Review A, 2003, 67(6): 063202.
- [18] Meng Qingtian, Liu Xinguo, Zhang Q G, et al. Time-dependent wavepacket approach to the influence of intense fields on the population of molecular excited states[J]. Chemical Physics, 2005, 316(1): 93–98.
- [19] Xiong Delin, Wang Meishan, Yang Chuanlu, et al. Control of reaction channels of CsI molecule by ultra-short laser pulse[J]. Chinese Physics B, 2010, 19(10): 103303.
- [20] Liu Chunhua, Meng Qingtian, Zhang Qinggang. Theoretical treatment of intense laser fields influence on the femtosecond time-resolved photoelectron spectrum of RbI molecule[J]. Chemical Physics, 2006, 326(2): 344–348.
- [21] Miao Xiangyang, Zhang Junfeng, Jia Xiangfu. Probing the process of photodissociation of the NaI molecule with pump-probe femtosecond spectroscopy[J]. EPL (Europhysics Letters), 2008, 82(3): 33001.
- [22] Arasaki Y, Takatsuka K, Wang K, et al. Studies of electron transfer in NaI with pump-probe femtosecond photoelectron spectroscopy[J]. The Journal of Chemical Physics, 2003, 119(15): 7913–7923.
- [23] Miao Xiangyang, Wang Lei, Yao Li, et al. Theoretical study of the femtosecond-resolved photoelectron spectrum of the anion[J]. Chemical physics letters, 2006, 433(1): 28–31.
- [24] Miao Xiangyang, Li Xin, Song Heshan. Probing wave packet dynamics of I₂⁻ anions with pump-probe femtosecond spectroscopy[J]. Chinese Physics Letters, 2008, 25(3): 915–918.
- [25] Schwoerer H, Pausch R, Heid M, et al. Femtosecond time-resolved two-photon ionization spectroscopy of K₂[J]. Journal of Chemical Physics, 1997, 107(23): 9749–9754.
- [26] Sun Zhigang, Lou Nanquan. Autler–townes splitting in the multiphoton resonance ionization spectrum of molecules produced by ultrashort laser pulses[J]. Physical review letters, 2003, 91(2): 023002.
- [27] Zhang Hong, Han Keli, Zhao Yi, et al. A real time dynamical calculation of H₂⁻ photodissociation[J]. Chemical Physics Letters, 1997, 271(4): 204–208.
- [28] Xie Tingxian, Zhang Yang, Zhao Meiyu, et al. Calculations of the F+HD reaction on three potential energy surfaces[J]. Physical Chemistry Chemical Physics, 2003, 5(10): 2034–2038.
- [29] Hu Jie, Han Keli, He Guozhong. Correlation quantum dynamics between an electron and D₂⁺ molecule with attosecond resolution[J]. Physical Review Letters, 2005, 95(12): 123001.
- [30] Chu Tianshu, Zhang Yan, Han Keli. The time-dependent quantum wave packet approach to the electronically nonadiabatic processes in chemical reactions[J]. International Reviews in Physical Chemistry, 2006, 25(1–2): 201–235.
- [31] Baumert T, Engel V, Meier C, et al. High laser field effects in multiphoton ionization of Na₂. Experiment and quantum calculations [J]. Chemical Physics Letters, 1992, 200(5): 488–494.
- [32] Meier C, Engel V. Interference structure in the photoelectron spectra obtained from multiphoton ionization of Na₂ with a strong femtosecond laser pulse[J]. Physical Review Letters, 1994, 73(24): 3207.
- [33] Zhang Caixia, Niu Yuquan, Meng Qingtian. Time-dependent approach to the double-channel dissociation of the NaCs molecule induced by pulsed lasers[J]. Chinese Physics B, 2014, 23(10): 103301.

Effects of femtosecond laser parameters on state populations of three-level ladder molecule

GUO Wei^{1,2}, FENG Xiaojing¹

1. School of Electrical Engineering, University of South China, Hengyang 421001, China

2. State Key Laboratory of Molecular Reaction Dynamics; Dalian Institute of Chemical Physics, Chinese Academy of Sciences, Dalian 116023, China

Abstract The effects of the pump intensity, the wavelength and the pulse width on the state populations of the three-level ladder K₂ molecule driven by intense femtosecond pump-probe pulses are investigated by employing the time-dependent wave packet approach and are thus quantified. The Rabi oscillation is affected by the pump intensity, the wavelength and the pulse width, and its variation results in a periodical change of the populations in the ground state and the excited state. Quantifying their effects on the population of the excited state verifies the periodical nature and shows that the frequency varies with the increasing pump intensity and pulse width. The results illustrate that the needed population in the electronic state of interest can be obtained by controlling these parameters, which provides some important basis for light manipulation of molecular processes.

Keywords time-dependent wave packet approach; three-level K₂ molecule; state populations; Rabi oscillation

(编辑 傅雪)