

NaLi分子飞秒含时光电子能谱的理论研究

张敏[†] 唐田田 张朝民

(烟台南山学院基础教学部, 烟台 265713)

(2013年9月4日收到; 2013年10月13日收到修改稿)

运用三态模型和含时波包方法, 研究了NaLi分子处于强飞秒抽运-探测激光场中的波包动力学过程和时分辨光电子能谱, 并且揭示了飞秒激光脉冲参数与NaLi分子光电子能谱之间的关系. 研究发现: 对于不同的激光波长, 波包的振动周期是不同的, 而且随着抽运-探测脉冲延迟时间的不同, NaLi分子光电子能谱的谱峰高度和位置发生变化; 当 $\lambda_1 = 352 \text{ nm}$ 并且 $\Delta t = 400 \text{ fs}$ 时, 外阱中相应的光电离信号(0.5 eV处)明显强于内阱中相应的光电离信号(1.35 eV处). 计算结果表明, NaLi分子激发态 $4^1\Sigma^+$ 上波包动力学的一些信息能够通过其光电子能谱反映出来. 这些结果可以为实验上实现分子的光控制以及量子操控过程提供一些有价值的参考信息, 并为进一步的理论研究提供重要依据.

关键词: 三态模型, 抽运-探测脉冲, 波包, 光电子能谱

PACS: 33.60.-q, 03.67.Lx, 32.80.Fb, 31.15.-p

DOI: 10.7498/aps.63.023302

1 引言

近几十年, 随着超强、超短激光技术的发展, 激光与物质的相互作用得到了越来越多实验和理论研究者的关注^[1-7], 成为分子动力学研究的热点. 由于冷原子和超冷原子捕获技术的发展, 人们开始将研究对象转移到同核和异核碱金属二聚物上. 碱金属二聚物, 如 Li_2 , Na_2 , K_2 , NaLi , NaK , NaRb 及 KLi 等, 是具有两价电子的典型分子, 其中 Na_2 分子的 $2^1\Sigma_u^+$ 态, NaK 分子的 $6^1\Sigma^+$ 态, K_2 分子的 $7^1\Sigma^+$ 态, NaRb 分子的 $6^1\Sigma^+$ 态, NaLi 分子的 $5^1\Sigma^+$ 态等具有双势阱结构. 人们对 Na_2 , NaK 等双原子分子在飞秒激光场中的时分辨光电子能谱进行了研究^[8-11]. Meier和Engel^[8]通过飞秒激光抽运-探测技术对 Na_2 分子电子动能的分布进行了研究, 并且得到了 Na_2 分子详细的振动动力学信息. Assion等^[9]利用动能时间飞行质谱仪、飞秒激光抽运-探测技术以及分子束技术, 研究了对 Na_2 分子的动力学行为. Miao等^[10]采用含时波包方法结合多光子激发, 对 Na_2 分子的电离和动力学行为进行了研究, 得到了 Na_2 分子含时光电子能谱. 采

用相同的方法, Yu等^[11]研究了处于强飞秒激光场中 NaK 分子双势阱激发态 $6^1\Sigma^+$ 上波包的演化以及时间-能量分辨光电子能谱.

据我们所知, 目前尚无采用时分辨光电子能谱研究NaLi分子的飞秒动力学行为的报道, 而对NaLi分子及其阳离子的电子结构和势能曲线已进行了研究. 2008年Petsalakis等^[12], Mabrouk和Berriche^[13]分别对NaLi的电子态进行了报道, Mabrouk和Berriche通过计算得到了NaLi分子的势能曲线、偶极矩以及光谱常数等. 2009年Khelifi等^[14]对NaLi分子和 NaLi^+ 阳离子进行了研究, 得到了其势能曲线和光谱常数. 这为本文要展开的理论计算奠定了基础.

2 理论模型

如图1所示, 本文采用三态模型: NaLi分子电子基态 $X^1\Sigma^+$ 、双势阱激发态 $4^1\Sigma^+$ 以及 NaLi^+ 阳离子基态 $X^2\Sigma^+$. 为研究方便, 分别将其标记为 X , A 和 I , 所涉及的势能曲线来自文献^[12].

[†] 通讯作者. E-mail: zhangmin0817@126.com

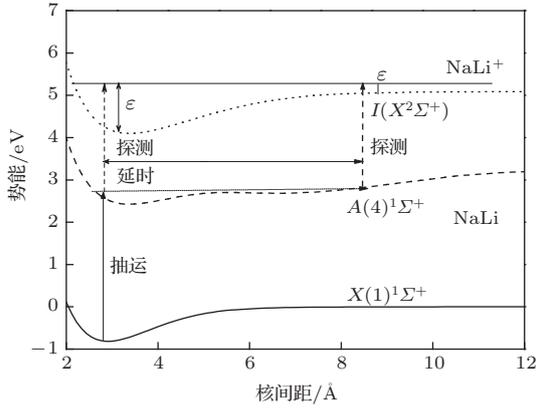


图1 三态模型: NaLi 分子基态 X , A 和 I , 相关的势能曲线的数据来自于参考文献 [12]

为了描述 NaLi 分子在强飞秒激光场中的动力学现象, 我们使用了抽运和探测两束飞秒激光脉冲. 首先利用抽运脉冲在激发态 $A(4)^1\Sigma^+$ 上制备一个

局域性相当好的初始振动波包. 经过一段延迟时间后 (主要是控制第二束脉冲出现的时间), 再发射第二束探测脉冲, 此脉冲有足够的能量可以使得处于激发态上的波包被激发到离子基态 $X^2\Sigma^+$ 上, 同时释放一个具有一定能量的电子.

为了计算 NaLi 分子各个电子态的布居, 理论处理中, 忽略分子的转动运动. 因为在飞秒尺度下, 质量较大的分子其转动运动可以忽略不计 [8]. 采用 Born-Oppenheimer 近似, 并且忽略核与电子之间的耦合, 分子体系的振动哈密顿量表示为

$$H = -\frac{\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2}{\partial R^2} I + U(R, t), \quad (1)$$

式中, m 表示 NaLi 分子的约化质量, R 表示核间距, $U(R, t)$ 表示势能矩阵. $U(R, t)$ 可以表示为

$$U(R, t) = \begin{pmatrix} V_{XX} & V_{XA} & 0 & 0 & \cdots & 0 \\ V_{AX} & V_{AA} & V_{AI,1} & \cdots & \cdots & V_{AI,n} \\ 0 & V_{I,1A} & V_{II} + E_{I,1} & 0 & \cdots & 0 \\ \vdots & \vdots & 0 & \ddots & \cdots & \vdots \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ 0 & V_{I,nA} & 0 & 0 & \cdots & V_{II} + E_{I,n} \end{pmatrix}, \quad (2)$$

矩阵中对角线 $V_{ii} (i = X, A, I)$ 分别表示 NaLi 分子的电子基态 X 、激发态 A 和离子基态 I 的势能. 我们用 n 个离散态来表示自由电子-离子对, $V_{II} + E_{I,n}$ 表示自由电子-离子对连续态离散集的总能量, $E_{I,n}$ 表示出射电子的动能. 计算中, 出射电子的动能 $E_{I,n}$ 可以通过关系式 $E_{I,n} = (E_{\max} - E_{\min})/n$ 得到, 式中 E_{\max} 和 E_{\min} 表示出射电子可能出现的最大动能值和最小动能值. 若飞秒抽运-探测激光脉冲之间的延迟时间为零, 光电子的动能则表示为 [15]

$$KE = h\nu(\text{pump}) + h\nu(\text{probe}) - IP - E_{iv}, \quad (3)$$

其中, KE 是出射的电子动能, E_{iv} 表示离子态上的振动能级, 通过 (3) 式可估算得到 E_{\max} 和 E_{\min} 的值. 假设第一束抽运激光脉冲作用完之后, 分子处于一个势能为 E_m 的中间态上, 那么光电子动能可表示为

$$KE = h\nu(\text{probe}) - (IP + E_{iv} - E_m), \quad (4)$$

(3) 和 (4) 式中 IP 均表示 NaLi 分子的第一电离势. 因此, 计算中我们选取光电子动能的范围为

0—2.0 eV.

对于 n 的取值, 必须要对动力学结果进行精确的计算, 确保计算结果的收敛性和简便性. 首先根据计算得出的出射电子的动能范围, 将出射电子的动能范围分成 30, 40, 50, 60 和 70 等份进行光电子能谱的计算. 计算结果表明: 当 n 取值为 30, 40 和 50 时, 得到的光电子能谱的形状发生变化; 但当 n 为 50, 60, 和 70 时得到的光电子能谱的图形几乎没有变化. 在数值模拟计算中, 如果所涉及的电子态越多, 势能矩阵就会越大, 计算机在进行对角化时耗费的时间就越多. 因此为了节省计算机资源并且节约时间, 本文选取 n 为 50.

(2) 式中势能矩阵的非对角元素 V_{ij} 分别表示 NaLi 分子的基态和激发态、激发态和离子基态之间的耦合, 表达式为

$$V_{ij} = \mu_{ij} E(t), (i, j = X, A, I), \quad (5)$$

其中 μ_{ij} 分别表示基态 X 和激发态 A 、激发态 A 和离子基态 I 之间的跃迁偶极矩; X 和 A 之间的跃迁偶极矩 μ_{XA} 数据来自文献 [13]. A 和 I 之间的跃迁

偶极矩 μ_{AI} 一般很难通过计算得到, 本文中跃迁偶极矩 μ_{AI} 的数据取为 μ_{XA} 的十分之一^[16].

$\mathbf{E}(t)$ 为激光脉冲产生的电场, 表达式为

$$\mathbf{E}(t) = \{E_1 f(t_1) \cos(\omega_1 t) + E_2 f(t_2 - \Delta t) \cos(\omega_2 t)\} \hat{e}, \quad (6)$$

式中 E_1 和 E_2 分别表示抽运和探测脉冲沿线偏振方向 \hat{e} 上的电场振幅, ω_1 和 ω_2 分别为抽运和探测脉冲的角频率, Δt 为两脉冲之间的延迟时间. $f(t_1)$ 和 $f(t_2 - \Delta t)$ 分别是两脉冲的包络因子, 表达式分

别为

$$f(t_1) = \exp \left[-2 \ln 2 \left(\frac{t}{\tau_1} \right)^2 \right], \quad (7)$$

$$f(t_2 - \Delta t) = \exp \left[-2 \ln 2 \left(\frac{t - \Delta t}{\tau_1} \right)^2 \right], \quad (8)$$

其中 τ_1 为抽运脉冲的半高全宽 (FWHM), τ_2 为探测脉冲的 FWHM.

因此, NaLi 分子体系的含时薛定谔矩阵方程可以表示为

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \begin{pmatrix} \Psi_X \\ \Psi_A \\ \Psi_{I1} \\ \vdots \\ \Psi_{In} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} H_{XX} & H_{XA} & 0 & 0 & \cdots & 0 \\ H_{AX} & H_{AA} & H_{AI,1} & \cdots & \cdots & H_{AI,n} \\ 0 & H_{I,1A} & H_{II} + E_{I,1} & 0 & \cdots & 0 \\ \vdots & \vdots & 0 & \ddots & \cdots & \vdots \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ 0 & H_{I,nA} & 0 & 0 & \cdots & H_{II} + E_{I,n} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \Psi_X \\ \Psi_A \\ \Psi_{I1} \\ \vdots \\ \Psi_{In} \end{pmatrix}, \quad (9)$$

方程中 $\Psi_i (i = X, A)$ 和 $\Psi_{In} (n = 1, \dots, 50)$ 分别表示 NaLi 分子的束缚态和准连续态 (50 份离散态) 的波函数. 其中对角元素的哈密顿量为

$$H_{ii} = -\frac{\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2}{\partial R^2} + V_{ii}(R, t), \quad (10)$$

非对角元素的哈密顿量为

$$H_{ij} = H_{ji} = V_{ij} = \mu_{ij} E(t). \quad (11)$$

通过分裂算符傅里叶变换的方法对方程 (9) 进行求解. 波包随时间的演化可以表示为

$$\Psi(R, t + \Delta t)$$

$$\approx U_T^{1/2}(R, t) U_V U_T^{1/2}(R, t) \Psi(R, t), \quad (12)$$

式中, U_T 表示动能演化算符, U_V 表示势能演化算符. 动能演化算符 U_T 可以通过下式得到:

$$U_T = \exp \left[-\frac{i\Delta t}{\hbar} T_R \right] = F^{-1} \exp \left[-\frac{i\hbar k^2 \Delta t}{2m} \right] F, \quad (13)$$

其中 F 表示傅里叶变换:

$$F[f] = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} \exp(ikR') f(R') dR'. \quad (14)$$

在原子单位制下, 计算得到的势能演化算符 U_V 为

$$U_V = \exp[-i\mathbf{V}\Delta t] = \mathbf{M} \exp[-i\mathbf{M}^T \mathbf{V} \mathbf{M} \Delta t] \mathbf{M}^T$$

$$= \mathbf{M} \begin{pmatrix} \exp(-i\lambda_1 \Delta t) & 0 & \cdots & 0 \\ 0 & \exp(-i\lambda_2 \Delta t) & \cdots & 0 \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ 0 & 0 & \cdots & \exp(-i\lambda_{n+2} \Delta t) \end{pmatrix} \mathbf{M}^T, \quad (15)$$

其中, \mathbf{M} 为幺正变换矩阵, 其上角标符号 T 表示对矩阵进行转置, \mathbf{M}^T 表示 \mathbf{M} 的转置矩阵, $\lambda_i (i = 1, \dots, n+2)$ 为势能矩阵 \mathbf{V} 的本征值.

经过 n 步传播之后, 任意时刻的波函数表示为

$$\Psi(R, t + n\Delta t)$$

$$\approx \left[\prod_{k=0}^{n-1} U_T^{1/2}(R, t + k\Delta t) U_V U_T^{1/2}(R, t + k\Delta t) \right] \times \Psi(R, t). \quad (16)$$

只要能够求出任意时刻的波函数 ((16) 式), 每个电

子态上的布居都可以由下式计算得到:

$$P_i(t) = \int dR |\Psi_i(R, t)|^2, \quad i = X, A, I + 1, \dots, I + n. \quad (17)$$

一旦确定了各个态上的布居, 光电子能谱就可以表示为

$$P(E) = \lim_{t \rightarrow \infty} \int dR \sum_i |\Psi_{Ii}(R, t)|^2, \quad i = 1, 2, \dots, n. \quad (18)$$

3 结果与讨论

图 1 显示 NaLi 分子激发态 $4^1\Sigma^+$ 的势能曲线具有双势阱结构, 其内阱和外阱的极小值分别位于 $R = 3.38673 \text{ \AA}$ 和 $R = 6.56179 \text{ \AA}$, 相应的势能分别为 $U(R) = 2.42726 \text{ eV}$ 和 $U(R) = 2.68413 \text{ eV}$. 两势阱之间的势垒位于 $R = 5.60928 \text{ \AA}$, 相应的势能为 $E_b = 2.70264 \text{ eV}$. NaLi 分子基态 $X^1\Sigma^+$ 的振动基态的能量为 $E_{00} = -0.81585 \text{ eV}$. 本文中, 抽运和探测激光脉冲的脉冲宽度均固定为 85 fs, 强度均为 $4.0 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$.

3.1 飞秒激光波长对双势阱激发态 $4^1\Sigma^+$ 波包演化的影响

为了描述波长对 $4^1\Sigma^+$ 态上波包随时间和核间距演化的影响, 我们讨论了以下三种情况: $E_a < E_b$, $E_a \approx E_b$ 和 $E_a > E_b$ (其中, $E_a = E_{00} + h\omega$, E_a 是抽运脉冲的能量). 当 $E_a < E_b$ 时, 相应的抽运激光脉冲的波长 λ_1 为 371 nm, 波包随时间和核间距的演化过程显示在图 2 中. 从图 2 中可以观察到在 $4^1\Sigma^+$ 态上制备的波包都陷于内阱中, 并且波包仅在内阱中运动 (大约 3.4 \AA 处), 其运动周期大约为 200 fs. 当 $E_a \approx E_b$ ($\lambda_1 = 352 \text{ nm}$) 时, 如图 3, 波包在势垒区域被分裂成两部分, 其中一部分波包仍然局限于内阱中, 另一部分波包则越过了势垒, 向外阱 (核间距增大的方向) 移动. 在内阱中运动的波包其运动周期大约为 750 fs, 外阱中的波包在外转折点 (大约 8 \AA 处) 被反射回来, 并向内阱方向运动, 其振动周期大约为 600 fs. 出现上述现象的原因是由于此时激光脉冲的能量能够将分子激发到接近势垒高度的振动态上, 使得位于势垒上方和下方的振动态被激发的概率几乎相等^[17], 所以波包在势垒处发生分裂. 当 $E_a > E_b$ ($\lambda_1 = 345 \text{ nm}$) 时, 如图 4, 在内阱中运动的波包减少, 几乎所有的波

包越过势垒区域向核间距增大的方向运动, 之后波包又在外转折点处被反射回来向内运动. 由于势阱具有非谐的特性, 波包的分布将会变得越来越宽, 甚至会填充于整个势阱中.

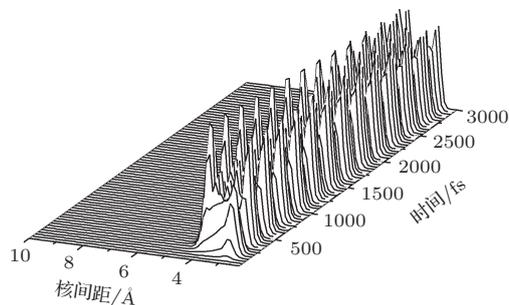


图 2 $E_a < E_b$ 并且 $\lambda_1 = 371 \text{ nm}$, 随时间和核间距的变化 NaLi 分子双势阱激发态 $4^1\Sigma^+$ 上波包的演化

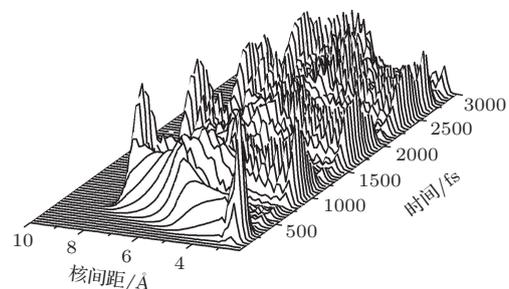


图 3 $E_a \approx E_b$ 并且 $\lambda_1 = 352 \text{ nm}$, 随时间和核间距的变化 NaLi 分子双势阱激发态 $4^1\Sigma^+$ 上波包的演化

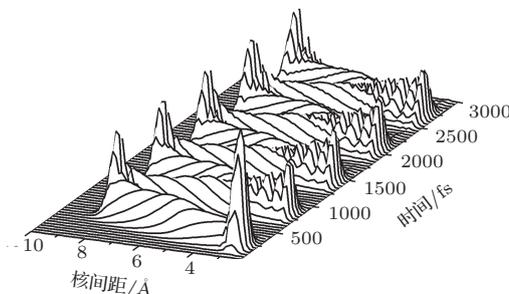


图 4 $E_a > E_b$ 并且 $\lambda_1 = 345 \text{ nm}$, 随时间和核间距的变化 NaLi 分子双势阱激发态 $4^1\Sigma^+$ 上波包的演化

3.2 NaLi 分子时间分辨光电子能谱

为了研究 NaLi 分子的光电离过程, 计算中选取探测激光脉冲的波长 λ_2 为 413 nm (此时 λ_1 为 371 nm) 和 440 nm (λ_1 为 352 和 335 nm). 随动能 (E_K) 和抽运-探测脉冲延迟时间 (Δt) 变化的 NaLi 分子时间分辨光电子能谱 (PES) 显示在图 5—9 中. 当 $\lambda_1 = 335 \text{ nm}$ ($\lambda_2 = 440 \text{ nm}$) 时, 由于光电子信号非常弱, 为了分析方便, 我们将其信号扩大了 1000 倍. 在 $E_K > 0.8 \text{ eV}$ 的范围

内, PES 峰值对应于内阱中的光电子信号; 而在 $E_K < 0.8$ eV 的范围内, PES 峰值对应外阱中的信息.

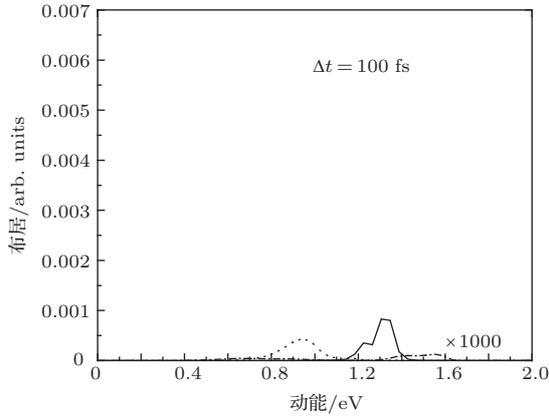


图5 延迟时间为 100 fs 时, 随着动能变化的 NaLi 分子光电子能谱 实线、虚线和点线分别表示 $\lambda_1 = 371$ nm ($\lambda_2 = 413$ nm), $\lambda_1 = 352$ nm ($\lambda_2 = 440$ nm) 以及 $\lambda_1 = 335$ nm ($\lambda_2 = 440$ nm)

不同延迟时间下, 随动能变化的 NaLi 分子 PES 显示在图 5—7 中. 图 5 和 6(a)—(d) 对应的延迟时间分别为 100, 150, 200, 300, 400 fs, 图 7(a)—(d) 对应的延迟时间分别为 500, 600,

700, 800 fs. 图中实线、虚线和点线分别代表 $\lambda_1 = 371$ nm ($\lambda_2 = 413$ nm), $\lambda_1 = 352$ nm ($\lambda_2 = 440$ nm) 和 $\lambda_1 = 335$ nm ($\lambda_2 = 440$ nm). 当 $\Delta t = 100$ fs 时, 如图 5, 无论抽运激光脉冲能量多大, 光电子信号主要集中在内阱中, 外阱中的光电子信号很弱. 这是由于当 $\Delta t \leq 100$ fs 时, 波包几乎全部局限于内阱中, 只有极少部分波包能越过势垒, 向核间距增大的方向移动. 当 $\lambda_1 = 371$ nm 时, 如图 8 所示, 尽管 Δt 不同, 仅在 1.35 eV 附近出现了一个比较大的 PES 峰值, 此时波长 λ_1 仅仅影响 PES 谱峰高度. 随着延迟时间的变化, PES 峰值出现周期性变化并且向动能增大的区域发生轻微的移动. 这恰好反映出, 当 $\lambda_1 = 371$ nm 时, 激发主要发生在了势垒下方的振动态上, 并且波包只陷于内阱中.

当 $\lambda_1 = 352$ nm ($\lambda_2 = 440$ nm), $\Delta t = 150$ fs 时, 如图 6(a), 在外阱对应的区域开始出现一些比较弱的光电子信号. 当 $\Delta t = 200$ fs 时, 如图 6(b), PES 中出现了双峰结构, 在内阱和外阱对应区域都出现了光电子信号. 当 $\Delta t = 300$ fs 时, 如图 6(c), 双峰结构的信号仅存在于外阱对应的区域, 内阱对

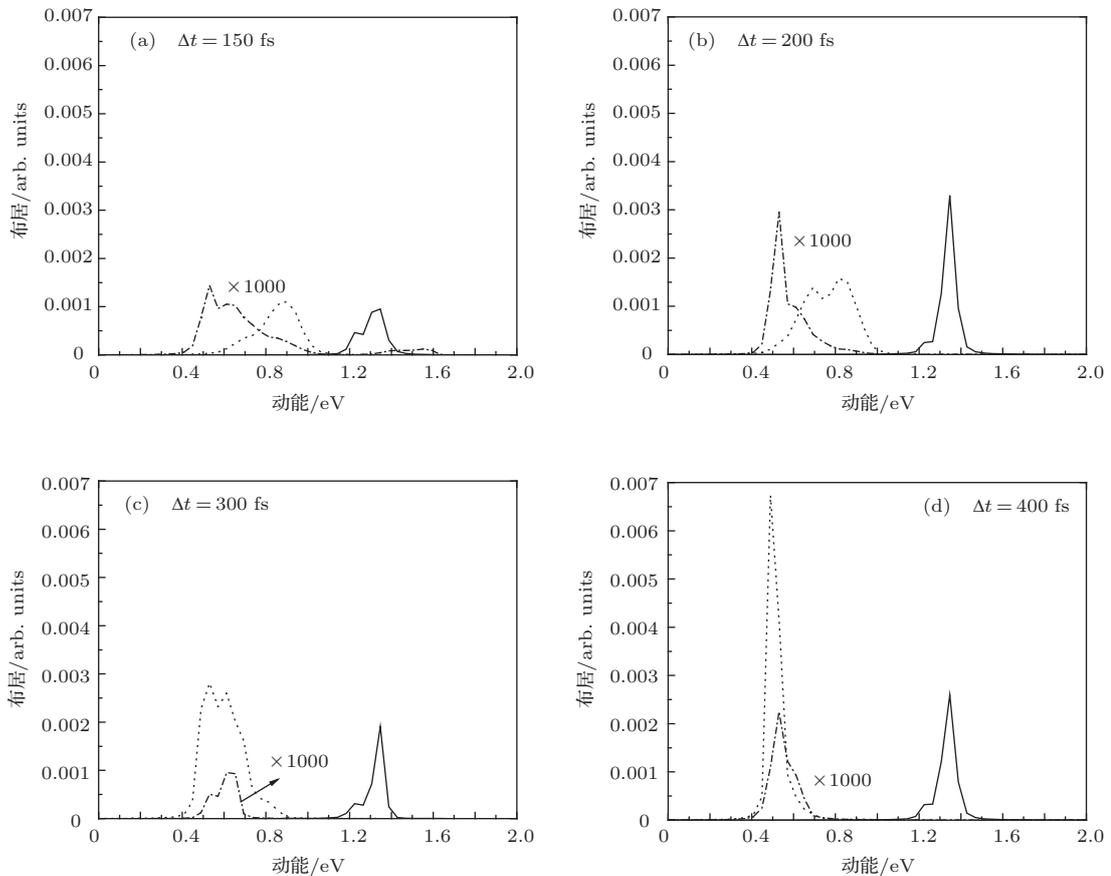


图6 不同的延迟时间下, 随着动能变化的 NaLi 分子光电子能谱 实线、虚线和点线分别表示 $\lambda_1 = 371$ nm ($\lambda_2 = 413$ nm), $\lambda_1 = 352$ nm ($\lambda_2 = 440$ nm) 以及 $\lambda_1 = 335$ nm ($\lambda_2 = 440$ nm)

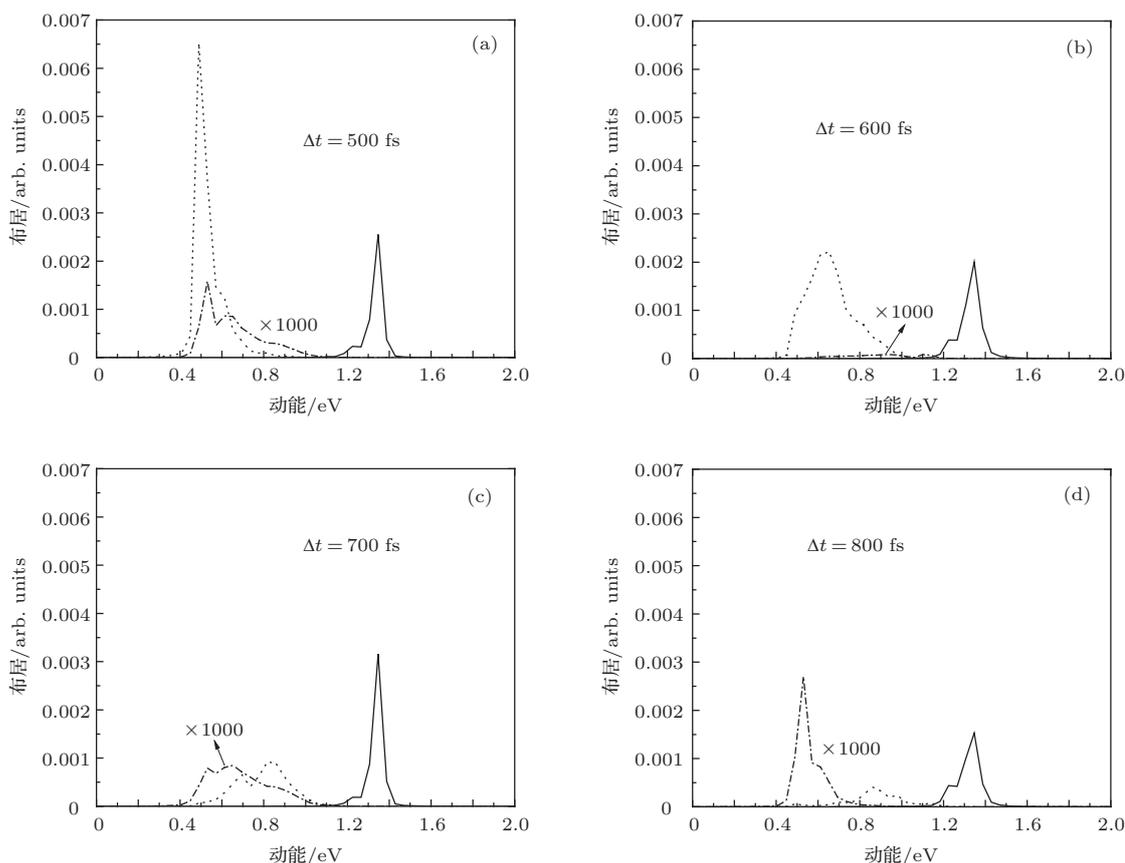


图7 不同的延迟时间下, 随着动能变化的 NaLi 分子光电子能谱 实线、虚线和点线分别表示 $\lambda_1 = 371$ nm ($\lambda_2 = 413$ nm), $\lambda_1 = 352$ nm ($\lambda_2 = 440$ nm) 以及 $\lambda_1 = 335$ nm ($\lambda_2 = 440$ nm)

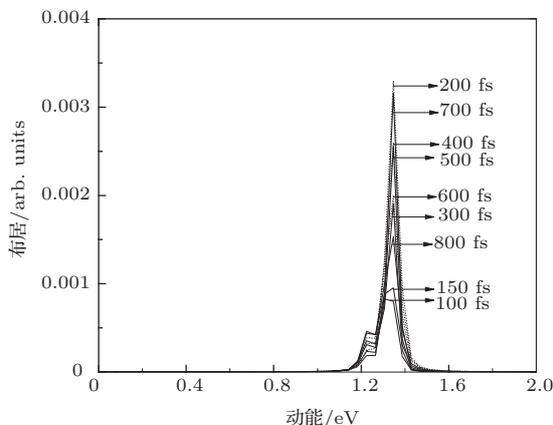


图8 $\lambda_1 = 371$ nm ($\lambda_2 = 413$ nm), 不同延迟时间下, 随动能变化的 NaLi 分子光电子能谱

应的区域则没有光电子信号. 我们发现, 当延迟时间为 400 fs (图 6(d)) 和 500 fs (图 7(a)) 时, 外阱区域对应的信号 (0.5 eV) 明显地强于内阱区域对应的信号 (1.35 eV). 然而从 $\Delta t = 600$ fs 开始, 外阱区域相应的信号开始减弱, 并且一直到 $\Delta t = 800$ fs, 电离信号仅仅出现在内阱对应的区域 (如图 7(b)—(d) 和图 9). 经过分析, 我们认为可以用时间分辨波包来解释, 即在不同的延迟时间下, 波包所处的中心位置是不同的, 当延迟时间为

400 fs 和 500 fs 时, 处于外势阱中的波包多于内势阱中的波包, 而当延迟时间为 600 fs 时, 波包则主要处于内势阱里, 如图 3 所示.

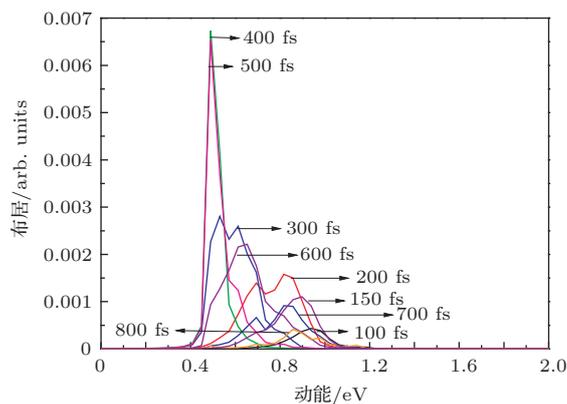


图9 $\lambda_1 = 352$ nm ($\lambda_2 = 440$ nm), 不同延迟时间下, 随动能变化的 NaLi 分子光电子能谱

当 $\lambda_1 = 335$ nm ($\lambda_2 = 440$ nm), $\Delta t = 200$ fs 和 400 fs 时, 如图 6(b) 和 (d), 光电子信号只出现在外阱对应的区域, 而且在 0.55 eV 附近有一个峰值. 这一现象说明此时波包运动到了外转折点或是外转折点附近. 当 $\Delta t = 100$ fs 和 600 fs 时, 如图 5 和图 7(b), 内阱区域出现了相应的光电子信号. 这

归结于此时波包还未发生分裂(即波包还没有到达势垒区域)或者已经分裂结束返回到了内阱中. 从图5—9中可以看出: 随着延迟时间的增加, PES峰值不断变化发生, 光电子的信号反映出了波包在激发态上的运动情况; 出射的电子动能与抽运-探测激光脉冲之间的延迟时间有关. 这对于进一步理解NaLi分子激发态的飞秒动力学有着比较重要的意义.

4 结 论

本文建立三态模型, 采用含时波包方法研究了NaLi分子处于强飞秒抽运-探测激光场中双势阱激发态 $4^1\Sigma^+$ 上波包的演化过程以及时间分辨光电子能谱. 计算结果表明, 不同的抽运脉冲波长对激发态 $4^1\Sigma^+$ 上波包随时间和核间距的演化影响是不同的, 导致波包在内阱和外阱中的振动周期发生变化. 抽运-探测脉冲延迟时间的不同, 导致NaLi分子PES峰值的高度和位置发生改变, 其峰值发生周期变化. 当 $\lambda_1 = 352 \text{ nm}$, $\Delta t = 400 \text{ fs}$ 时, 外阱区域中对应的光电离信号(在0.5 eV附近)明显强于内阱区域对应的光电离信号(在1.35 eV附近). 结果显示, NaLi分子时间分辨PES能够反映出双势阱激发态 $4^1\Sigma^+$ 上波包演化的动力学信息. 本文的研究结果可以为在实验上实现分子的光控制以及量子操控过程提供一定的参考, 并为在实验和理论上进一步研究NaLi分子的动力学性质提供有用的信息.

参考文献

- [1] Liu Y F, Zhai H S, Gao Y L, Liu R Q 2008 *Chin. Phys. Lett.* **25** 2016
- [2] Li X, Song H S, Miao X Y 2008 *Chin. Phys. Lett.* **25** 915
- [3] Xu J P, Yang Y P 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 2139 (in Chinese)[许静平, 羊亚平 2004 物理学报 **53** 2139]
- [4] Sussman B J, Townsend D, Ivanov M Y, Stolow A 2006 *Science* **314** 278
- [5] Jia F, Xie S Y, Yang Y P 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 5835 (in Chinese)[贾飞, 谢双媛, 羊亚平 2006 物理学报 **55** 5835]
- [6] Ma N, Wang M S, Yang C L, Xiong D L, Li X H, Ma X G 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 215 (in Chinese)[马宁, 王美山, 杨传路, 熊德林, 李小虎, 马晓光 2010 物理学报 **59** 215]
- [7] Niu Y Y, Wang R, Xiu J L 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 093302 (in Chinese)[牛英煜, 王荣, 修俊玲 2012 物理学报 **61** 093302]
- [8] Meier C, Engel V 1994 *J. Chem. Phys.* **101** 2673
- [9] Assion A, Baumert T, Geisler M, Seyfried V, Gerbe G 1998 *Eur. Phys. J. D* **4** 145
- [10] Miao X Y, Wang L, Yao L, Song H S 2007 *Chin. Phys. Lett.* **24** 2815
- [11] Yu J, Wang S M, Yuan K J, Cong S L 2006 *Chin. Phys.* **15** 1996
- [12] Petsalakis I D, Tzeli D, Theodorakopoulos G 2008 *J. Chem. Phys.* **129** 054306
- [13] Mabrouk N, Berriche H 2008 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **41** 155101
- [14] Khelifi N, Dardouri R, Al-Dossary O M, Oujia B 2009 *J. Russ. Laser Res.* **30** 172
- [15] Ludowise P, Blackwell M, Chen Y 1996 *Chem. Phys. Lett.* **258** 530
- [16] Baumert T, Engel V, Meier C, Gerber G 1992 *Chem. Phys. Lett.* **200** 488
- [17] Meier C, Engel V 1994 *J. Chem. Phys.* **101** 2673

Theoretical study of the influence of femtosecond pump-probe pulse on the photoionization of NaLi molecule

Zhang Min[†] Tang Tian-Tian Zhang Chao-Min

(Department of Basic Education, Yantai Nanshan University, Yantai 265713, China)

(Received 4 September 2013; revised manuscript received 13 October 2013)

Abstract

In this work, using three-state model and time-dependent wave packet method, the wave packet dynamic process and time-resolved photoelectron spectrum of NaLi molecule in femtosecond pump-probe intense laser field are investigated and the relation between the parameter of the femtosecond laser and time-resolved photoelectron spectrum is obtained. It is found that the vibrational periods of wave packet are different for different laser wavelengths and the photoelectron spectra are different for different pump-probe delay times. The height and position of the peak of the photoelectron spectrum change with pump-probe delay time. When $\lambda_1 = 352$ nm and $\Delta t = 400$ fs, the corresponding signal in the outer well (0.5 eV) is obviously smaller than that in the inner well (1.35 eV). The result reveals that the time-resolved photoelectron spectrum reflects the information about the wave packet dynamic of the excited state $4^1\Sigma^+$. The results may be useful for realizing the optical control of molecule and the process of quantum manipulation of molecule experimentally, and provide some important basis for further theoretical research in this respect.

Keywords: three-state model, the pump and probe pulses, wave packet, photoelectron spectrum

PACS: 33.60.-q, 03.67.Lx, 32.80.Fb, 31.15.-p

DOI: 10.7498/aps.63.023302

[†] Corresponding author. E-mail: zhangmin0817@126.com