

多色强激光场与分子耦合制备 长寿命局域模振动^{*}

程继新 史 强 双 丰 朱清时

(中国科学技术大学化学物理系, 合肥 230026)

(1996 年 7 月 8 日收到; 1996 年 10 月 11 日收到修改稿)

讨论用多色激光场与分子耦合来抑制局域模波包的扩散, 从而将能量长时间锁定在单一化学键上以便实现选键化学的可能性. 用全量子理论和半经典理论分别建立了分子振动在弱激光场和强激光场中激发和演化的模型. 结果表明, 多色弱场无法将布居数囚禁在局域模波包上. 在强场作用下, 利用强激光产生的功率加宽和波包之间的干涉, 有可能将布居数囚禁在基态和局域模振动态之间.

PACC: 3380; 3150

1 引 言

从 70 年代起, 化学家们就试图用激光做工具来控制化学反应的通道或选择性地断裂化学键, 但是早期的实验几乎都失败了. 原因是分子内的快速能量转移破坏了激光激发的选择性, 使其能量平衡分布. 因此, 实现选键化学和分子的纳米加工的关键, 是使能量在所加工的键上保留足够长的时间而不转移. 这种长寿命的单键振动态称为长寿命的局域模振动态.

最近, 我们致力于研究如何借助激光来控制分子随时间的演化以便克服分子内能量转移. 本文讨论利用多色激光场来更好地抑制分子内能量转移的可能性.

文献[1]对分子泛频激发动力学的计算表明, 当激发速率远小于分子内能量转移速率时, 单色光场只能共振激发相应的一个本征态. 在此基础上, 他们在缀饰分子图像中探讨了用多色激光场同时激发一组本征态来消除 IVR 过程的可能性^[2]. 他们用 n 束激光共振激发 n 个近简并的上态, 再调节这些激光的参数使这 n 个缀饰态相干叠加增大局域模态的布居数, 减少背景态的布居数. 然而, 他们的模型给出的是由一组缀饰本征态组成的波包的演化, 而不是我们所关心的分子本身的演化. 虽然在缀饰分子图像中, 光和分子应看作一个整体, 但对选键控制真正有意义的只是分子本身的变化. 此外, 他们采用 Fock 态来表示量子化后的光场, 相位是完全随机的. 然而激光器在远高于阈值工作时, 激光腔中的

^{*} 国家自然科学基金资助的课题.

光子处于相干态^[3],最接近于经典电磁波形式.

本文首先用全量子理论讨论分子在多色弱激光场中的激发和演化,指出 Holme 和 Hutchinson 的理论^[2]中存在的问题,然后用半经典方法计算分子在多色场中的激发和演化,并探讨利用强多色激光场与分子相互作用来制备长寿命局域模振动的可能性.这里对强场和弱场的定义为:弱激光只能共振激发一个本征态,强激光产生的功率加宽可以使之同时激发一组本征态.

2 全量子论方法

根据 Holme 和 Hutchinson 等^[2]和我们的计算结果可知,当激光与分子相互作用的拉比频率远小于分子内态-态耦合时,单色光只激发一个本征态.这与高分辨光谱的观测事实是一致的.

假设分子可以看作一个由基态 $|g\rangle = |\phi_0\rangle$ 和本征激发态 $|\phi_i\rangle$ ($i = 1, 2, \dots, N-1$) 组成的 N 能级系统,分子与 $(N-1)$ 色光场的耦合可以用全量子理论来描述.在缀饰态表象中,量子化的光场与分子看作一个整体,其波函数用

$$|g, \{n_1, n_2, \dots, n_{N-1}\}\rangle, \quad |\phi_i, \{n_1, n_2, \dots, n_{N-1}\}\rangle \quad (i = 1, 2, \dots, N-1)$$

表示.频率为 ω_{Lj} 的光场将 $|g, \{n_i\}_0\rangle$ 和 $|\phi_j, \{n_i\}_j\rangle$ 耦合起来(其中 $|\{n_i\}_j\rangle$ 比 $|\{n_i\}_0\rangle$ 少一个频率 ω_{Lj} 的光子),于是场-分子哈密顿量由分子哈密顿量 H_M , 辐射场哈密顿量 H_R 和光-分子相互作用项 H_{int} 三部分组成,

$$H = H_R + H_M + H_{\text{int}}, \quad (1)$$

其中

$$\begin{aligned} H_R &= \sum_{i=1}^{N-1} \hbar \omega_{Li} \left(a_i^\dagger a_i + \frac{1}{2} \right), \\ H_M &= \hbar \omega_0 |g\rangle \langle g| + \sum_{i=1}^{N-1} \hbar \omega_i |\phi_i\rangle \langle \phi_i|, \\ H_{\text{int}} &= \sum_{i=1}^{N-1} \frac{1}{2} \hbar \omega_{Ri} a_i^\dagger |g\rangle \langle \phi_i| + \text{h.c.}, \end{aligned}$$

这里 ω_{Ri} 为耦合系数(即拉比频率),假设 $\omega_{Li} = \omega_i - \omega_0$, H 在缀饰分子表象中有矩阵形式

$$\begin{aligned} &|g, \{n_i\}_0\rangle \quad |\phi_1, \{n_i\}_1\rangle \quad |\phi_2, \{n_i\}_2\rangle \quad \dots \\ \mathbf{H} &= \begin{bmatrix} E & \frac{\hbar}{2} \omega_{R1} & \frac{\hbar}{2} \omega_{R2} & \dots \\ \frac{\hbar}{2} \omega_{R1} & E & 0 & \dots \\ \frac{\hbar}{2} \omega_{R2} & 0 & E & \dots \\ \vdots & \vdots & \vdots & \ddots \end{bmatrix}, \quad (2) \end{aligned}$$

$\mathbf{H}$ 矩阵可以通过幺正矩阵 Λ 对角化, 给出缀饰本征态 $|\chi_i\rangle$ ($i=0, 1, \dots, N-1$). 若分子在初始时刻处于基态, t 时刻的缀饰分子波函数 $\Psi(t)$ 可以用 $|\chi_i\rangle$ ($i=0, 1, \dots, N-1$) 展开

$$\Psi(t) = \sum_{i=0}^{N-1} \Lambda_{0i} |\chi_i\rangle e^{-iE_i t/\hbar}. \quad (3)$$

通过幺正变换矩阵 Λ , $|\chi_i\rangle$ 可以用 $|g, \{n_i\}_0\rangle$ 和 $|\phi_j, \{n_i\}_j\rangle$ 表示, 这样

$$\Psi(t) = \sum_{j=0}^{N-1} \sum_{k=0}^{N-1} \Lambda_{0j} \Lambda_{kj} |\phi_k, \{n_i\}_k\rangle e^{-iE_j t/\hbar}. \quad (4)$$

求得分子部分的约化密度算符

$$\begin{aligned} \rho_M(t) &= \sum_{\{n_i\}} \langle \{n_i\} | \Psi(t) \rangle \langle \Psi(t) | \{n_i\} \rangle \\ &= \sum_{k=0}^{N-1} \left| \sum_{j=0}^{N-1} \Lambda_{0j} \Lambda_{kj} e^{-iE_j t/\hbar} \right|^2 |\phi_k\rangle \langle \phi_k|, \end{aligned} \quad (5)$$

则波包 $|u_r\rangle = \sum_{i=0}^{N-1} T_{ri} |\phi_i\rangle$ 的布居数随时间的演化可以用下式计算:

$$P_{rr}(t) = \langle u_r | \rho_M | u_r \rangle = \sum_{k=0}^{N-1} T_{rk}^2 \left| \sum_{i=0}^{N-1} \Lambda_{0i} \Lambda_{ki} e^{-iE_i t/\hbar} \right|^2. \quad (6)$$

按照 Holme 和 Hutchison 的模型, 两束激光分别将缀饰基态 $|0\rangle = |g\rangle |n_1\rangle |n_2\rangle$ 和缀饰激发态 $|1\rangle = |\phi_1\rangle |n_1-1\rangle |n_2\rangle$ 与 $|2\rangle = |\phi_2\rangle |n_1\rangle |n_2-1\rangle$ 耦合起来, 场-分子哈密顿矩阵写作

$$\mathbf{H} = \begin{bmatrix} E & \gamma & \gamma \\ \gamma & E & 0 \\ \gamma & 0 & E \end{bmatrix}. \quad (7)$$

$\mathbf{H}$ 可以被对角化给出下列本征态和本征向量:

$$\begin{aligned} E_1 &= E - \sqrt{2} \gamma & |\chi_1\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}} |0\rangle + \frac{1}{2} |1\rangle + \frac{1}{2} |2\rangle, \\ E_2 &= E & |\chi_2\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}} |1\rangle - \frac{1}{\sqrt{2}} |2\rangle, \\ E_3 &= E + \sqrt{2} \gamma & |\chi_3\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}} |0\rangle - \frac{1}{2} |1\rangle - \frac{1}{2} |2\rangle. \end{aligned} \quad (8)$$

设初态为基态, 波函数 $\Psi(t)$ 为

$$|\Psi(t)\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|\chi_1\rangle e^{-iE_1 t/\hbar} + |\chi_3\rangle e^{-iE_3 t/\hbar}). \quad (9)$$

由分子部分的约化密度算符 $\rho_M = \sum_{\{n_i\}} \langle \{n_i\} | \Psi(t) \rangle \langle \Psi(t) | \{n_i\} \rangle$, 可得到相互正交归一的波包 $\phi_{f_1, f_2} = \frac{1}{\sqrt{2}} (|\phi_1\rangle \pm |\phi_2\rangle)$ 的布居数随时间的演化

$$P_{f_1}(t) = P_{f_2}(t) = \frac{1}{4} [1 - \cos(E_1 - E_3) t/\hbar], \quad (10)$$

即无论波包 ϕ_{f_1} 还是 ϕ_{f_2} 都不能在双色弱场中被选择激发. 这个结果不同于文献[2]的结果, 因为我们在这里得到的是分子本身的演化, 而文献[2]则是由一组缀饰本征态组成的波包的演化.

在多色强场作用下, 每束激光激发一组本征态. 分析表明, 在缀饰分子图像中强光场与分子的耦合必须用无穷维矩阵描述, 且为了讨论激光相位的影响, 光场必须用相干态来处理, 这大大增加了问题的复杂性. 为此, 下面我们将采用半经典方法.

3 半经典方法

首先用半经典方法重新讨论弱场情形, 然后用来处理强多色场与分子作用的情形.

3.1 弱场情形

考虑由 N 个分子本征态 $|\phi_i\rangle$ ($i=0, 1, \dots, N-1$) 组成的能级系统, 其中 $|\phi_0\rangle$ 表示基态 $|g\rangle$, 在多色光场作用下的总哈密顿量写作

$$H = H_0 + H_{\text{int}}, \quad (11)$$

其中分子自身的哈密顿量是

$$H_0 = \sum_{i=0}^{N-1} \hbar \omega_i |\phi_i\rangle \langle \phi_i|, \quad (12)$$

场-分子相互作用是

$$H_{\text{int}} = - \sum_{j=1}^{N-1} \mathbf{u}_{0j} \cdot \mathbf{E}_j |g\rangle \langle \phi_j| + \text{h.c.} \quad (13)$$

这里我们只考虑电偶极跃迁, 激光场为 $\mathbf{E}_j$ ($j=1, 2, \dots, N-1$).

$$\mathbf{E}_j = \frac{1}{2} \mathbf{E}_{0j} (e^{-i(\omega_{Lj}t + \delta_j)} + e^{i(\omega_{Lj}t + \delta_j)}), \quad (14)$$

其中频率为 ω_{Lj} 的激光近共振激发分子从基态到振动激发态 $|\phi_i\rangle$ 的跃迁. 引入共振拉比频率

$$\alpha_{0j} = \alpha_{j0} = \mu_{0j} \cdot \mathbf{E}_{0j} / \hbar.$$

于是相互作用哈密顿量为

$$H_{\text{int}} = - \sum_{j=1}^{N-1} \frac{1}{2} \hbar \alpha_{0j} |g\rangle \langle \phi_j| (e^{-i(\omega_{Lj}t + \delta_j)} + e^{i(\omega_{Lj}t + \delta_j)}) + \text{h.c.} \quad (15)$$

描述分子运动的含时波函数为

$$\Psi(t) = \sum_{i=0}^{N-1} u_i(t) e^{-i\omega_i t} |\phi_i\rangle, \quad (16)$$

其中含时系数向量 $u_i(t)$ 表示为向量形式

$$\bar{u}(t) = (u_0(t), u_1(t), \dots, u_{N-1}(t))^T. \quad (17)$$

将 $\Psi(t)$ 代入薛定谔方程, 得到

$$i \frac{d}{dt} \bar{u}(t) = H_u \bar{u}(t). \quad (18)$$

对于近共振激发而言,

$$|\alpha_{1j}| \ll |\omega_{j0}|, \quad |\omega_{Lj} - \omega_{j0}| \ll |\omega_{j0}| \quad (j = 1, 2, \dots, N-1),$$

因此可以作旋转波近似,

令

$$\Delta_j = \omega_{j0} - \omega_{Lj} \quad (j = 1, 2, \dots, N-1), \quad \Delta_0 = 0,$$

那么(18)式中 H_u 简化为

$$H_u = \begin{pmatrix} 0 & -\alpha_{01}e^{-i(\Delta_1 t - \delta_1)} & -\alpha_{02}e^{-i(\Delta_2 t - \delta_2)} & \dots \\ -\alpha_{10}e^{i(\Delta_1 t - \delta_1)} & \Delta_1 & 0 & \dots \\ -\alpha_{20}e^{i(\Delta_2 t - \delta_2)} & 0 & \Delta_2 & \dots \\ \vdots & \vdots & \vdots & \ddots \end{pmatrix}. \quad (19)$$

为了消去 H_u 中的含时因子,作旋转变换

$$\tilde{a}(t) = e^{i(Ft+B)} \tilde{u}(t), \quad (20)$$

从实验室坐标系转化为电磁波坐标系,其中 F 和 B 皆为 N 阶对角方阵,对角元分别为

$$F_{ii} = -\Delta_i, \quad B_{ii} = \delta_i.$$

从(18)和(20)式可知

$$i \frac{d}{dt} \tilde{a}(t) = (e^{i(Ft+B)} H_u e^{-i(Ft+B)} - F) \tilde{a}(t) = W \tilde{a}(t), \quad (21)$$

其中

$$W = \begin{pmatrix} \Delta_0 & -\alpha_{01} & -\alpha_{02} & \dots \\ -\alpha_{10} & \Delta_1 & 0 & \dots \\ -\alpha_{20} & 0 & \Delta_2 & \dots \\ \vdots & \vdots & \vdots & \ddots \end{pmatrix}. \quad (22)$$

W 可以通过么正变换对角化为 W_q , 设特征向量矩阵为 Q , 本征值为 $\{\lambda_i\}$ ($i=0, 1, \dots, N-1$), 那么

$$\tilde{a}(t) = Q e^{-iW_q t} Q^{-1} \tilde{a}(0). \quad (23)$$

代入(20)式,可知

$$\begin{aligned} \tilde{u}(t) &= e^{-i(Ft+B)} Q e^{-iW_q t} Q^{-1} \tilde{a}(0) \\ &= e^{-i(Ft+B)} Q e^{-iW_q t} Q^{-1} e^{iB} \tilde{u}(0). \end{aligned} \quad (24)$$

现在可以计算任一波包 $|u_r\rangle = \sum_{i=0}^{N-1} T_{ri} |\phi_i\rangle$ 随时间的演化, $|u_r\rangle$ 的布居数 $P_{rr}(t)$. 记

$$\omega_{\alpha\beta} = \omega_\alpha - \omega_\beta, \quad \delta_{ij} = \delta_i - \delta_j,$$

$$\begin{aligned} P_{rr}(t) &= |\langle u_r | \Psi(t) \rangle|^2 \\ &= \sum_{\alpha=0}^{N-1} \sum_{\beta=0}^{N-1} T_{r\alpha} T_{r\beta} \sum_{i=0}^{N-1} \sum_{j=0}^{N-1} u_i(0) u_j(0) \sum_{k=0}^{N-1} \sum_{l=0}^{N-1} Q_{\alpha k} Q_{ik} Q_{\beta l} Q_{jl} \\ &\quad \times \cos[(\lambda_k - \lambda_l + \Delta_\beta - \Delta_\alpha + \omega_{\alpha\beta})t + \delta_{\alpha\beta} - \delta_{ij}], \end{aligned} \quad (25)$$

其中 $u_i(0)$ ($i=0, 1, \dots, N-1$), 表示分子的初态分布, 假设分子在初始时刻为基态, 即 $u_0(0)=1$, $u_i(0)=0$ ($i=1, \dots, N-1$), 并且 $N-1$ 束不同频率的激光分别共振激发相应

的本征态, 即 $\omega_{Li} = \omega_i - \omega_0$, (25) 式简化为

$$P_{rr}(t) = \sum_{\alpha=0}^{N-1} \sum_{\beta=0}^{N-1} T_{r\alpha} T_{r\beta} \sum_{k=0}^{N-1} \sum_{l=0}^{N-1} Q_{\alpha k} Q_{0k} Q_{\beta l} Q_{0l} \cos[(\lambda_k - \lambda_l + \Delta_\beta - \Delta_\alpha + \omega_{\alpha\beta})t + \delta_{\alpha\beta}], \quad (26)$$

对于弱场情形, 从矩阵 $\mathbf{W}$ 可知 $\{\lambda_i\} (i=0, 1, \dots, N-1)$ 远小于分子能级间距 $\omega_{\alpha\beta}$. 因此波包的演化方式由本征态的频率分布决定, 它在多色光场中的平均布居数为

$$\overline{P}_{rr} = \sum_{\alpha=0}^{N-1} T_{r\alpha}^2 \sum_{k=0}^{N-1} Q_{\alpha k}^2 Q_{0k}^2 = \sum_{\alpha=0}^{N-1} T_{r\alpha}^2 \overline{P}_{\alpha\alpha}. \quad (27)$$

现用半经典理论重新计算 3.1 节中所考虑的三能级系统在双色场中的演化(设相位差为 0), 其结果为

$$P_{f_1, f_2} = \frac{1}{4} [1 \pm \cos(\omega_{L1} - \omega_{L2})t] [1 - \cos(E_1 - E_3)t/\hbar]. \quad (28)$$

上述结果与(10)式相比略有不同, 但同样说明 ϕ_{f_1} 和 ϕ_{f_2} 都不能被选择激发.

事实上, (27) 式表明, 波包的平均布居数只是它所含每一个本征态的平均布居数与相应系数平方乘积的线性加和, 所以一个局域模波包可以被弱场选择激发的条件是该局域模振动近似为一个分子本征态. 下面的数值计算形象地证明了上述结果.

我们随机模拟了一个十能级系统, 其中包括基态, 一个希望选择激发的局域模态 $|s\rangle$ 和一组与 $|s\rangle$ 相耦合的暗能级. 以基态能量为零点, 其他振动能级在 $3000-3500 \text{ cm}^{-1}$ 之间随机取值, $|s\rangle$ 和暗态之间的耦合矩阵元在 $-50-50 \text{ cm}^{-1}$ 范围内随机取值, 从基态到 $|s\rangle$ 的跃迁偶极矩为 0.1 D . 该哈密顿矩阵可以被对角化, 得到一组本征能级. 局域模零级振动态 $|s\rangle$ 可以写成一组本征态的线性组合.

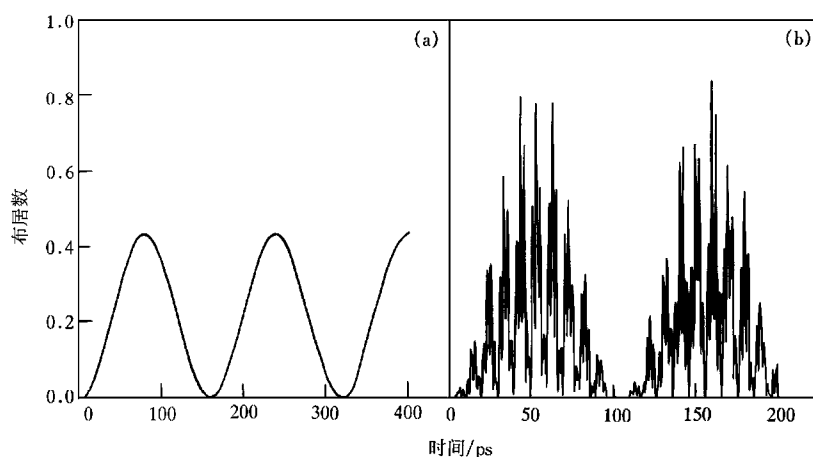


图 1 功率为 14.8 GW/cm^2 的激光共振激发含局域模成分最多的本征态(a), 功率均为 14.8 GW/cm^2 的多色激光分别共振激发一个本征态(b). 波包 $|s\rangle$ 在多色场中的演化由于不同光场的干涉而复杂化, 然而其平均布居数却低于用单色光场激发的结果

假设初态为基态, 图 1 显示了波包 $|s\rangle$ 在单色和多色场中的演化. 计算结果表明, 多色

弱场无法保证局域模振动的选择激发. 换言之, 分子与外场的弱相互作用不能将布居数“囚禁”在一个波包上. 从(26)式可知, 只有当 λ_i 和 $\omega_{\alpha\beta}$ 大小相当时, 外场才会对波包的激发和演化起到显著的影响.

3.2 强场情形

在多色强场中, 每一束激光同时激发一组本征态. 对双色强激光场的情形, 场-分子哈密顿量表示为

$$H = H_0 + H_{\text{int}}, \quad (29)$$

其中分子本身哈密顿量

$$H_0 = \sum_{i=0}^{N-1} \hbar \omega_i |\phi_i\rangle \langle \phi_i|, \quad (30)$$

场-分子相互作用势

$$H_{\text{int}} = - \sum_{j=1}^{N-1} \mathbf{u}_{0j} \cdot (\mathbf{E}_1 e^{i(\omega_1 t + \delta_1)} + \mathbf{E}_2 e^{i(\omega_2 t + \delta_2)}) |g\rangle \langle \phi_j| + \text{h.c.} \quad (31)$$

波函数 $\Psi(t)$ 由系数向量 $\hat{c}(t) = (c_0(t), c_1(t), \dots, c_{N-1}(t))^T$ 表示

$$\Psi(t) = \sum_{i=0}^{N-1} c_i(t) |\phi_i\rangle. \quad (32)$$

将(32)式代入薛定谔方程, 得到微分方程

$$i\hbar \frac{d}{dt} \hat{c}(t) = H \hat{c}(t). \quad (33)$$

考虑一个波包 $|u_r\rangle = \sum_{i=0}^{N-1} T_{ri} |\phi_i\rangle$, 它在 t 时刻的布居数为

$$P_{rr}(t) = \sum_{i=0}^{N-1} T_{ri}^2 |c_i(t)|^2 + \sum_{i \neq j} T_{ri} T_{rj} c_i(t) c_j^*(t), \quad (34)$$

(34)式等号右端第一项为各本征态在波包 $|u_r\rangle$ 中投影的布居数的线性加和, 第二项表示不同本征态之间的干涉项. 如果干涉项随时间的平均为零, 那么波包 $|u_r\rangle$ 可以被选择激发的条件是其中有一个系数接近于 1, 也就是说 $|u_r\rangle$ 近似为一个本征态; 另一方面, 若干涉项随时间平均不为零, 并且调节光场参数可以改变其正负, 就能主动控制激发的选择性.

考虑一个简单的三能级系统, 两个本征态 $|\phi_1\rangle, |\phi_2\rangle$ 能级分别为 2996 和 3004 cm^{-1} , 并具有相同的跃迁偶极矩. 两束激光与分子耦合的共振拉比频率均为 8.49 cm^{-1} , 在三能级情况下代表干涉项的就是 $\text{Re}(c_1 c_2^*)$. 图 2 显示了当其中一束激光频率改变时, 同时改变另一束激光频率及相位所能得到的干涉项

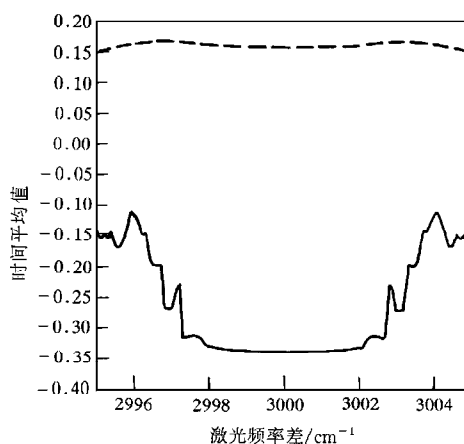


图 2 只改变其中一束激光频率和相位, 干涉项 (时间平均) 在最大值和最小值之间变化 —— 为最小值, --- 为最大值

$\text{Re}(c_1 c_2^*)$ 随时间平均的最大和最小值. 从中可以看出适当调节激光频率和相对相位可以有效地改变干涉项, 实现波包的选择激发.

图 3 给出了当两束激光频率分别为 2995.8 和 3002.9 cm^{-1} 时, 波包 $\phi_{1,2} = \frac{1}{\sqrt{2}}(|\phi_1\rangle \pm |\phi_2\rangle)$ 的时间平均布居数随激光相对相位差的变化. 图 4 是固定两束激光频率之和为 6000 cm^{-1} , 两束激光相对相位为 0 时, 波包 $\phi_{1,2} = \frac{1}{\sqrt{2}}(|\phi_1\rangle \pm |\phi_2\rangle)$ 的时间平均布居数随两束光频差的变化. 上述计算结果表明, 改变两束激光的相对相位和频率都可以选择激发不同的波包.

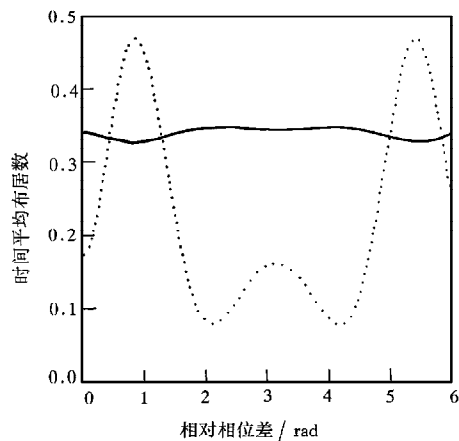


图 3 波包的激发和两束激光相对相位差的关系
——为波包 1;为波包 2

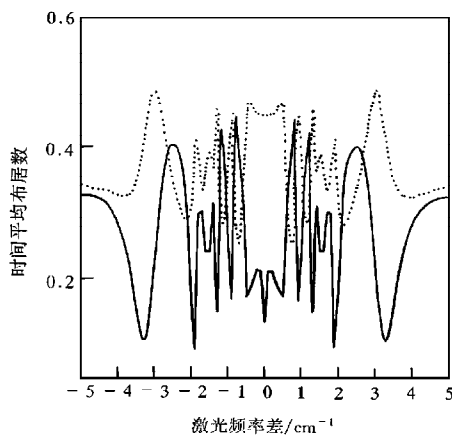


图 4 改变两束激光频率对波包激发的影响为波包 1; ——为波包 2

4 结 论

1) 在弱激光场情形, 单色激光只能激发一个本征态, 多色光场可以同时激发一组本征态但无法保证波包的选择激发. 本文的结果与文献[2]的结果不同, 原因在于我们计算的是分子本身而不是场-分子缀饰态的演化.

2) 强激光场的功率加宽使之能同时激发一组本征态. 半经典理论的计算结果表明, 调节两束激光的相位差和频率可以改变不同本征态之间干涉项的大小, 从而实现波包的选择激发, 将布居数囚禁在局域模振动态波包上.

[1] T.A.Holme and J.S.Hutchinson, *J. Chem. Phys.*, **84**(1986), 5455.

[2] T.A.Holme and J.S.Hutchinson, *Chem. Phys. Lett.*, **124**(1986), 181.

[3] R.Loudon, *The Quantum Theory of Light* (Oxford University Press, New York, 1973), p. 261.

MAKING LOCAL MODE VIBRATION LONG LIVED BY THE INTERACTION BETWEEN A STRONG MULTI- COLOR LASER FIELD AND MOLECULES

CHENG JI-XIN SHI QIANG SHUANG FENG ZHU QING-SHI

(*Department of Chemical Physics, University of Science and Technology of China, Hefei 230026*)

(Received 8 July 1996; revised manuscript received 11 October 1996)

ABSTRACT

Trapping vibrational energy into one single bond is a key problem of bond-selective chemistry. We explored this possibility by means of restricting local mode wavepacket dephasing with multi-color laser field. The vibrational excitation and evolution of molecules in weak and strong multi-color laser fields are discussed by field-quantization method and semi-classical method. The results demonstrate that population can not be trapped in a local mode wave-packet using multi-color weak field, while it is possible to trap vibrational population between the ground state and local mode vibration by making use of power broadening induced by strong laser field and the interference between two wave-packets excited by two strong laser of different frequencies.

PACC: 3380; 3150