

# 红外场对双原子分子振动布居影响的李代数方法研究\*

刘芳 王军 赵娟 许燕 孟庆田†

(山东大学物理与电子科学学院, 济南 250014)

(2010年5月4日收到; 2010年5月24日收到修改稿)

采用李代数方法研究双原子分子在红外场中的振动跃迁, 给出了体系跃迁概率的解析表达, 并讨论了红外场的频率、光强和脉冲持续时间分别对 NaCl 和 LiH 分子振动基态和第一振动激发态上粒子数布居的影响.

**关键词:** 李代数方法, 红外场, 振动布居, 双原子分子

**PACS:** 02.20.Sv, 33.20.Ea, 33.20.Tp, 42.50.Hz

## 1. 引言

近些年来, 激光与物质相互作用的研究是一个非常活跃的领域<sup>[1-4]</sup>. 随着计算手段的提高, 出现了多种理论研究方法, 诸如 Coulter 酉变换理论<sup>[5]</sup>、Floquet 理论<sup>[6]</sup>、含时密度泛函理论<sup>[7]</sup>、含时波包动力学方法<sup>[8,9]</sup>等, 但是具有解析解的理论研究却很少, 而挪威科学家 Marius Sophus 提出来的李代数理论则实现了这种可能.

上世纪 80 年代, Iachello 和 Levine 等将李代数方法从原子核物理成功移植到分子物理领域<sup>[10]</sup>. 在上述工作的基础上, Zheng 等利用动力学对称群方法构造了三原子分子的势能面<sup>[11]</sup>, 所得力常数和解离能与实验值符合, 并且利用该方法对三原子分子高激发振动态进行了理论研究<sup>[12]</sup>. 之后利用李代数方法, 王晓艳等又构造了结构较为复杂的四原子分子的势能面<sup>[13]</sup>, Meng 等对三原子分子的转动光谱进行了分析研究<sup>[14,15]</sup>, 得到了光谱分析中的项方程. 而 Zheng 等利用李代数理论对分子振动纠缠动力学性质的讨论, 则有助于基于分子振动本征态所开展的量子信息计算研究<sup>[16,17]</sup>. 有关李代数方法的应用还包括, Lü 等对带电粒子在球形静电分析器中的轨迹及其非线性解的代数分析<sup>[18]</sup>, Liu 等对非保

守力学系统的线性李群代数的对称性<sup>[19]</sup>研究等. 在分子红外多光子过程的李代数研究方面, 袁峰等曾利用“模拟势-李代数”方法研究了双原子分子在强激光场中的多光子振动激发<sup>[20]</sup>, 该方法可以采用递推方案, 根据需提高计算精确度, 但只适用于讨论基态向低于第三激发态的跃迁; 冯海冉等利用二次型非谐振子模型, 结合李代数方法研究了线性三原子分子的振动激发控制的李代数方法<sup>[21]</sup>. 该模型与 Morse 势符合得很好, 理论上可以求解由基态到任意态的跃迁, 并且对出现在指数上的算符  $\hat{I}_0$  作了近似处理, 使得推导群参方程的过程化繁为简. 以上研究表明, 在分子物理特别是外场与分子的相互作用研究领域, 作为传统理论的李代数方法仍然具有很强的生命力.

目前, 有关分子在激光场中振动跃迁的研究大多选取气态分子作为研究对象. 红外激光能否探测固态分子的特性, 这一问题很早就引起理论工作者的极大兴趣<sup>[22]</sup>. 黄多辉等曾利用密度泛函理论的 B3LYP 方法研究了 MgO 分子的外场效应<sup>[23]</sup>, 其结果显示对分子在外场作用下特征的研究是成功的, 而且具有一定的理论和实用价值. 然而对 NaCl 和 LiH 分子的外场效应的研究还少见报道. 本文将利用李代数理论对红外激光作用下的 NaCl 和 LiH 分子振动能级粒子数布居的变化情况进行研究. 尽管

\* 山东省自然科学基金 (批准号: Y2006A23), 国家重点基础发展计划 (批准号: 2006CB806000), 强场激光物理国家重点实验室开放课题 (中国科学院上海光学精密机械研究所) 资助的课题.

† 通讯联系人. E-mail: qtmeng@sdu.edu.cn

分子在激光场中振动的实际代数需要考虑三维情况,但是这里仍从更简单的一维问题出发,利用  $SU(2)$  李代数构造的升降算符给出孤立双原子分子哈密顿的代数形式,用半经典偶极近似给出激光与分子的相互作用项. 在对哈密顿量二次量子化以后,利用李代数理论将时间演化算子表示成相应李代数元素的指数乘积形式,通过数值求解非线性微分方程组给出时间演化算符的参数,从而得到体系的跃迁概率,并采用控制变量法,分别研究激光频率、光强以及脉冲持续时间对体系粒子数布居的影响.

## 2. 理 论

### 2.1. 体系哈密顿算符

对双原子分子与激光场相互作用的研究,一般采用半经典偶极近似,即分子体系是量子化的,而激光场是经典的. 本文的研究对象是处于红外激光场中(不考虑转动)的双原子分子. 根据代数理论知, $U(2)$ 代数可以处理双原子分子的一维伸缩振动问题,且  $SU(2)$ 代数是  $U(2)$ 代数的一个子代数,它与角动量代数  $SO(3)$ 是同构的,它们之间的对易关系为

$$[\hat{J}_0, \hat{J}_{\pm}] = \pm \hat{J}_{\pm}, [\hat{J}_+, \hat{J}_-] = 2\hat{J}_0, \quad (1)$$

引入升降算符<sup>[24]</sup>

$$\hat{b}_+ = \frac{\hat{J}_-}{\sqrt{N}}, \hat{b}_- = \frac{\hat{J}_+}{\sqrt{N}}, \hat{b}_0 = \frac{2}{N}\hat{J}_0, \quad (2)$$

它们之间的对易关系为

$$\begin{aligned} [\hat{b}_-, \hat{b}_+] &= \hat{b}_0, \\ [\hat{b}_0, \hat{b}_+] &= -2x_0\hat{b}_+, \\ [\hat{b}_0, \hat{b}_-] &= 2x_0\hat{b}_-. \end{aligned} \quad (3)$$

仔细观察以上对易关系,发现当  $x_0 = \frac{1}{N} \rightarrow 0$  时( $x_0$  是引入的非谐性参数),双原子分子体系可以看成是谐振子体系,故引入二次型非谐振子模型<sup>[25]</sup>

$$\hat{H}_1 = \hbar\omega_0\left(\frac{\hat{P}^2}{2} + \frac{\hat{Q}^2}{2}\right). \quad (4)$$

非谐性参数  $x_0$  是对谐振子哈密顿量进行修正. 当  $x_0 \neq 0$  时该模型为可替代 Morse 振子的非谐振子,在  $x_0 \rightarrow 0$  的极限情况下为谐振子. 算符  $\hat{P}$ ,  $\hat{Q}$  可用升降算符表示为

$$\hat{P} = \frac{i}{\sqrt{2}}(\hat{b}_+ - \hat{b}_-), \hat{Q} = \frac{1}{\sqrt{2}}(\hat{b}_+ + \hat{b}_-), \quad (5)$$

因此,一维无转动双原子分子的自由哈密顿量的代数形式可以用  $SU(2)$ 群表示为如下形式:

$$\hat{H}_1 = \hbar\omega_0\left(\hat{b}_+ \hat{b}_- + \frac{1}{2}\hat{b}_0\right). \quad (6)$$

加入红外场以后,设激光场的方向与分子的轴方向一致时,激光与分子相互作用能可以表示为

$$\hat{H}' = -\mu(\hat{x})E(t) = -q\hat{x}E(t), \quad (7)$$

则体系总的哈密顿量的代数形式可以表示为

$$\begin{aligned} \hat{H} &= \hat{H}_1 - \mu(x)E_0\cos(\omega_l t) \\ &= \hat{H}_1 - qx_0E_0\cos(\omega_l t), \end{aligned} \quad (8)$$

$q$  是分子有效电荷,  $\hat{x}$  是距核间平衡位置的位移. 由 Morse 展开式

$$\begin{aligned} D[1 - \exp(-\alpha x)]^2 \\ = D[1 - (1 - \alpha x + \frac{1}{2}(\alpha x)^2 + \dots)] \\ \approx D(\alpha x)^2, \end{aligned} \quad (9)$$

及(4)式和(5)式得

$$\hat{x} = \frac{1}{\alpha} \sqrt{\frac{\hbar\omega_0}{2D}} \frac{1}{\sqrt{2}}(\hat{b}_+ + \hat{b}_-). \quad (10)$$

将(6)和(10)式代入(8)式可以得到加入外场以后双原子分子体系,哈密顿的代数形式为

$$\begin{aligned} \hat{H} &= \hbar\omega_0(\hat{b}_+ \hat{b}_- + \frac{1}{2}\hat{b}_0) \\ &\quad - qE(t) \frac{1}{\alpha} \sqrt{\frac{\hbar\omega_0}{2D}} \frac{1}{\sqrt{2}}(\hat{b}_+ + \hat{b}_-). \end{aligned} \quad (11)$$

### 2.2. 动力学李代数

体系哈密顿算符的代数形式(11)式可以分为两部分

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + V, \quad (12)$$

其中

$$\begin{aligned} \hat{H}_0 &= \hbar\omega_0\hat{b}_+ \hat{b}_-, \\ V &= \frac{\hbar\omega_0}{2}\hat{b}_0 - \frac{d}{\sqrt{2}}(\hat{b}_+ + \hat{b}_-), \\ d &= qE(t) \frac{1}{\alpha} \sqrt{\frac{\hbar\omega_0}{2D}}, \end{aligned}$$

在相互作用绘景中,体系哈密顿的代数形式为

$$\begin{aligned} \hat{H}_I &= \exp\left(\frac{iH_0 t}{\hbar}\right) V \exp\left(-\frac{iH_0 t}{\hbar}\right) \\ &= \frac{\hbar\omega_0}{2}\hat{b}_0 - \frac{d}{\sqrt{2}}\exp(i2\omega_0 x_0 t)\exp(i\omega_0 t\hat{b}_0)\hat{b}_+ \\ &\quad - \frac{d}{\sqrt{2}}\exp(-i\omega_0 t\hat{b}_0)\hat{b}_-, \end{aligned} \quad (13)$$

令

$$\hat{I}_0 = \hat{b}_0, \hat{a}_+ = \exp(i\omega_0 t \hat{b}_0) \hat{b}_+,$$

$$\hat{a}_- = \exp(-i\omega_0 t \hat{b}_0) \hat{b}_-,$$

通过计算,以上  $\hat{I}_0, \hat{a}_+, \hat{a}_-$  三个算符满足如下的对易关系:

$$\begin{aligned} [\hat{a}_+, \hat{a}_-] &= -k^* \hat{I}_0, \\ [\hat{I}_0, \hat{a}_+] &= -2x_0 \hat{a}_+, \\ [\hat{I}_0, \hat{a}_-] &= 2x_0 \hat{a}_-. \end{aligned} \quad (14)$$

因此,  $\hat{I}, \hat{a}_+, \hat{a}_-$  组成一个可以描述该体系的封闭三维李代数.

### 2.3. 时间演化算子

根据李代数理论<sup>[26]</sup>,时间演化算子可以表示为

$$U_I(t) = \exp(\mu_1 \hat{I}_0) \exp(\mu_2 \hat{a}_+) \exp(\mu_3 \hat{a}_-), \quad (15)$$

$\mu_i (i=1,2,3)$  为复的与时间有关群参数. 时间演化算子要满足么正条件

$$U_I^\dagger U_I = U_I U_I^\dagger = 1$$

即

$$U_I^\dagger(t) = U_I^{-1}(t). \quad (16)$$

利用(15)式将  $U_I^\dagger(t)$  及  $U_I^{-1}(t)$  写成代数组的指数形式,通过比较系数得

$$\operatorname{Re} \mu_1 = -\frac{|\mu_3|^2}{2 + \frac{1}{3} |\mu_3|^2 x_0}, \quad (17)$$

$$\mu_2 = \frac{1 + \operatorname{Re}(\mu_1)x_0 - i\operatorname{Im}(\mu_1)x_0 + \frac{1}{3} |\mu_3|^2 x_0 [1 + \operatorname{Re}(\mu_1)x_0 + i\operatorname{Im}(\mu_1)x_0]}{[\operatorname{Re}(\mu_1)x_0 + i\operatorname{Im}(\mu_1)x_0 - 1] \left(1 - \frac{1}{9} |\mu_3|^4 x_0^2\right)} \mu_3^* k. \quad (18)$$

同时  $U_I$  还应满足动力学方程

$$i\hbar \frac{\partial U_I(t, t_0)}{\partial t} = H_I U_I(t, t_0), U_I(t_0, t_0) = 1, \quad (19)$$

即

$$i\hbar \frac{\partial U_I(t, t_0)}{\partial t} U_I^{-1}(t, t_0) = H_I(t). \quad (20)$$

将方程(13)和(15)中  $\hat{H}_I$  和  $\hat{U}_I$  的表达式分别代入(20)式,比较系数可以得到一组与群参量有关的方程组. 由(17)和(18)式知,只需得出关于群参量  $\mu_1$  和  $\mu_3$  的微分方程组

$$i\hbar \dot{\mu}_1 = -\frac{d}{\sqrt{2}} \mu_2 k^* \exp(-2x_0 \mu_1) - 2\hbar\omega_0 x_0 \mu_2 \mu_3 k^* \left\{ \frac{[1 - x_0(\nu - 1)]\nu}{1 - 2x_0\nu} + 1 \right\}, \quad (21)$$

$$i\hbar \dot{\mu}_3 = -\frac{d}{\sqrt{2}} \exp(-2x_0 \mu_1) - \hbar\omega_0 [1 - 2x_0(\nu - 1)] \mu_3. \quad (22)$$

将(17)和(18)式代入(21)和(22)式得到如下两个独立的方程:

$$i\hbar \dot{\mu}_1 = \frac{\hbar\omega_0}{2} - \left\{ \frac{d}{\sqrt{2}} \mu_3^* \exp\left(\frac{2x_0 |\mu_3|^2}{2 + \frac{1}{3} |\mu_3|^2 x_0} - i2x_0 \operatorname{Im} \mu_1\right) + 2\hbar\omega_0 x_0 |\mu_3|^2 \left[\frac{1 - x_0(\nu - 1)}{1 - 2x_0\nu} \nu + 1\right] \right\} \frac{\beta_2}{\gamma_2},$$

$$i\hbar \dot{\mu}_3 = -\frac{d}{\sqrt{2}} \exp\left[\frac{6x_0 |\mu_3|^2}{6 + |\mu_3|^2 x_0} - i2x_0 \operatorname{Im} \mu_1\right] - \hbar\omega_0 [1 - 2x_0(\nu - 1)] \mu_3,$$

其中

$$\beta_2 = \left(1 - \frac{x_0 |\mu_3|^2}{2 + \frac{1}{3} |\mu_3|^2 x_0}\right) \left(1 + \frac{1}{3} |\mu_3|^2 x_0 - ix_0 \operatorname{Im} \mu_1 (1 - \frac{1}{3} |\mu_3|^2 x_0)\right), \quad (23)$$

$$\gamma_2 = \left(-\frac{x_0 |\mu_3|^2}{2 + \frac{1}{3} |\mu_3|^2 x_0} + ix_0 \operatorname{Im} \mu_1 - 1\right) \left(1 - \frac{1}{9} |\mu_3|^4 x_0^2\right), \quad (24)$$

初始条件为  $\mu_i = 0, i = 1, 3$ , 通过数值解法可以求得  $\mu_i$ . 利用群参数  $\mu_1$  和  $\mu_3$ , 演化算符  $U_I(t)$  的解析表达式

可以表示为如下形式:

$$U_I(t) = \exp \left[ \left( -\frac{|\mu_3|^2}{2 + \frac{1}{3}|\mu_3|^2 x_0} + i \text{Im} \mu_1 \right) \hat{a}_0 \right] \exp \left( \frac{\beta_2}{\gamma_2} \mu_3^* k a_+ \right) \exp(\mu_3 \hat{a}_-). \quad (25)$$

## 2.4. 跃迁概率

从态  $|\nu_i\rangle$  到态  $|\nu_f\rangle$  的跃迁概率公式为

$$P_{if} = |\langle \nu_f | U_I(t) | \nu_i \rangle|^2, \quad (26)$$

将(25)式代入(26)式,可以得到从基态到目标态的跃迁概率的明确表达式,即本文要研究的从振动基态到第一振动激发态的跃迁概率的解析表达式可以表示为如下形式:

$$P_{0 \rightarrow 1} = \left| \exp \left[ -\frac{3|\mu_3|^2(1-2x_0)}{6 + |\mu_3|^2 x_0} \right] \frac{\beta_2 \mu_3^*}{\gamma_2} \right|^2. \quad (27)$$

## 3. 结果和讨论

用上述方法分别对 NaCl 和 LiH 分子进行具体计算,所有计算采用原子单位.

### 3.1. 激光频率对双原子分子振动能级粒子数布居的影响

研究分子振动能级粒子数布居随激光频率的变化规律,我们选取在激光强度和脉冲持续时间均为确定值的情况下,通过调节激光的频率,观察振动跃迁概率相应的变化规律,从而进一步来分析振动能级上粒子数布居的变化情况.图1分别给出在 LiH 和 NaCl 分子体系中,从振动基态到第一振动激发态的跃迁概率随激光频率的变化关系.

由图1(a)可以看出,在 LiH 分子体系中,第一振动激发态的跃迁概率曲线出现双共振峰,且该高双共振峰对应的光子能量分别为 0.00606a.u. 和 0.00652a.u.,而该分子体系振动基态和第一振动激发态的能量差为 0.00631a.u.

由图1(b)可以看出,在 NaCl 分子体系中,第一振动激发态的跃迁概率曲线也出现双共振峰,该高双共振峰对应的光子能量分别为 0.00161a.u. 和 0.00181a.u.,但是该分子体系振动基态和第一振动激发态的能量差为 0.00173a.u.

分析以上数据可以发现,在以上两体系中均出现了振动基态和第一振动激发态的能量差并不恰好等于所吸收光子能量的整数倍.表明,双原子分

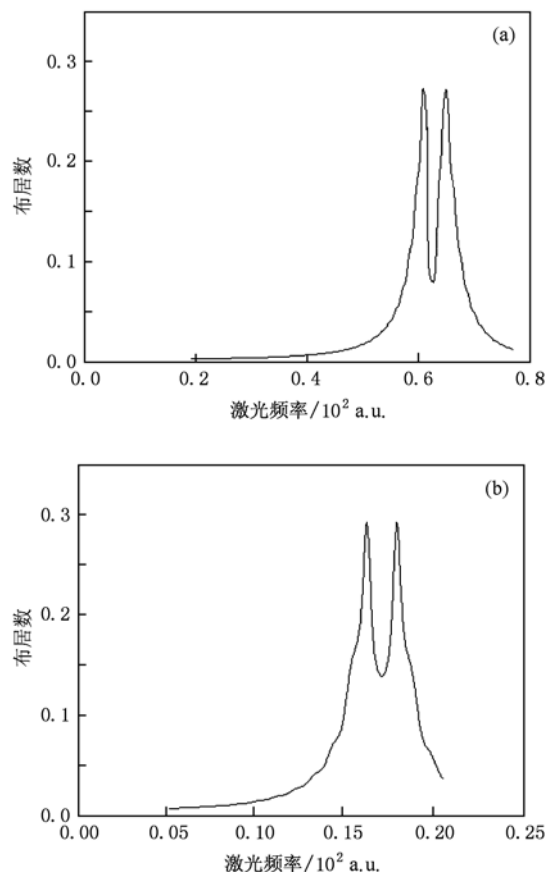


图1 LiH 和 NaCl 分子两体系中,当激光强度、脉冲持续时间一定的情况下,第一振动激发态的跃迁概率随激光频率的变化曲线 (a)为 LiH 分子体系中  $E = 0.001\text{a.u.}$ ,  $t = 5 \times 10^4\text{a.u.}$ ; (b) 为 NaCl 分子体系中  $E = 0.001\text{a.u.}$ ,  $t = 6.5 \times 10^4\text{a.u.}$

子体系在红外场作用下,跃迁峰值对应频率与能级间隔出现了偏差,通常把这种现象称为斯塔克效应.除此之外,比较图1(a)(b)可以看出,两分子体系斯塔克峰之间的间隔距离明显不同. LiH 分子和 NaCl 分子的斯塔克峰的劈裂宽度分别为 0.0429a.u. 和 0.0182a.u.,其比值为 2.36. 由于共振散射光频率与激光的光强和体系的电偶极矩都有关系,而且斯塔克峰的劈裂宽度可以近似地表示为两高共振峰对应激光频率  $\omega_r$  和  $\omega_\beta$  之差的绝对值. 根据文献[27]知 LiH 分子和 NaCl 分子的有效电荷的理论值分别为 1.046a.u. 和 0.985a.u.,以及(10)式最终计算得出 LiH 分子和 NaCl 分子的电偶极矩分别为

0.325 a.u. 和 0.149 a.u., 其比值为 2.18. 即两分子体系的斯塔克峰的劈裂宽度之比近似等于两分子的电偶极矩之比, 所以推测这种现象可能是当外场强度相等时, 分子的电偶极矩不同引起的.

从上面的分析可以看出, 当双原子分子体系加入外场以后, 由于分子的偶极矩与外场相互作用, 使得能级发生分裂, 而且能级的裂距会随着光强增加而增大, 即跃迁峰值对应频率与能级间隔的偏差也会随之增大. 也就是说, 振动基态粒子将会在不同频率的激光作用下发生共振跃迁, 并分布在对应

的分裂能级上.

### 3.2. 激光强度对分子振动能级粒子数布居的影响

为了讨论激光强度对振动能级粒子数布居的影响, 我们在激光频率和脉冲持续时间都一定的情况下, 选取激光强度分别为  $0 \rightarrow 0.015$  a.u. 和  $0.015$  a.u.  $\rightarrow 10$  a.u. 两个不同范围变化时, 研究振动能级上的粒子数布居的变化情况. 图 2 分别给出在 LiH 和 NaCl 分子体系中, 从振动基态到第一振动激发态的跃迁概率随激光强度的变化关系.

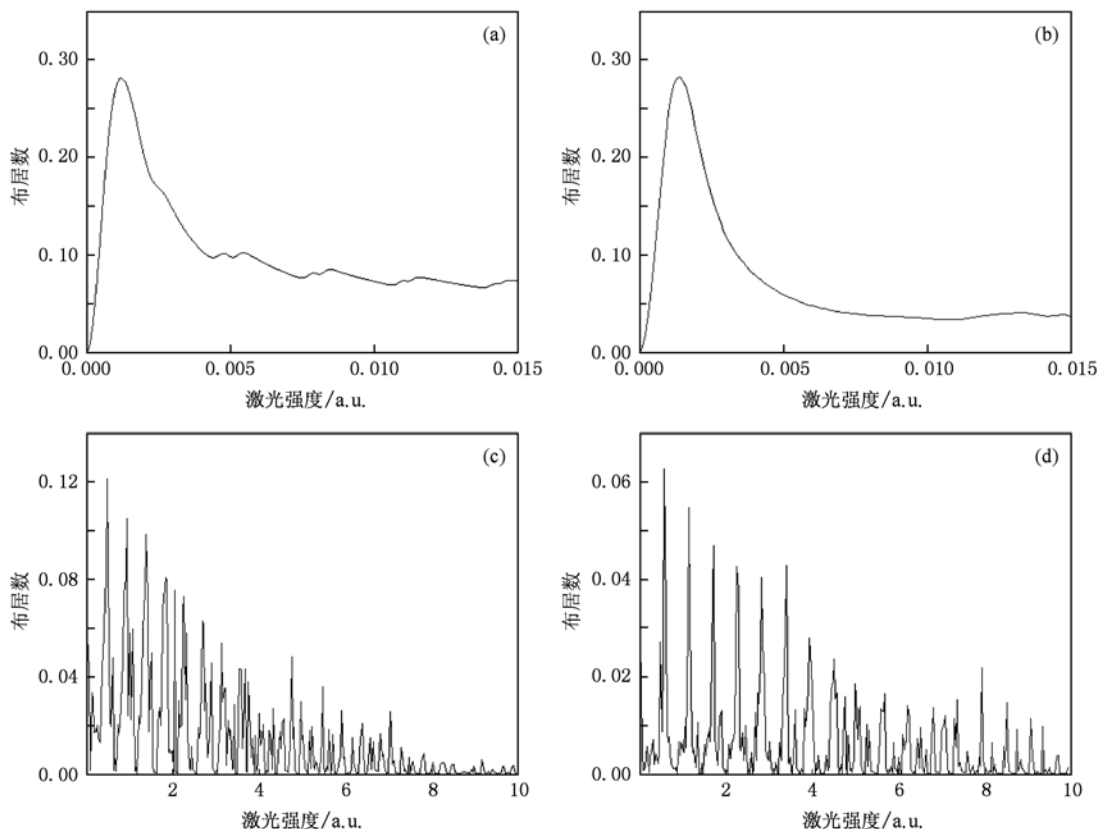


图 2 LiH 和 NaCl 两体系中, 当激光频率和脉冲持续时间为确定值的情况下, 第一振动激发态的跃迁概率在两个不同激光强度范围内的变化曲线 (a)(c) 为 LiH 分子体系中  $\omega_1 = 0.00652$  a.u.,  $t = 5 \times 10^4$  a.u.; (b)(d) 为 NaCl 分子体系中  $\omega_1 = 0.00161$  a.u.,  $t = 6.5 \times 10^4$  a.u.

分析图 2(a) 和图 2(b) 可以得出, 当激光强度在  $0 \rightarrow 0.015$  a.u. 范围变化时, 跃迁概率首先从零增加到 28% 左右, 表明此阶段振动激发态的粒子数随强度增强而逐渐增多, 直至达到饱和. 这个阶段两分子体系受激吸收占优势; 然后随着激光强度的进一步增强, 跃迁概率明显降低, 表明受激辐射占优势, 激发态粒子数减少, 基态粒子数增多, 直到两能级的权重相等; 最后随着光强的再次增强, 跃迁概率将不再改变, 即受激吸收和受激辐射两种趋势几

乎相等. 这个阶段两能级粒子数达稳定状态. 对比两图还可以发现, 两分子体系达稳定状态以后, 随着激光强度的增强, NaCl 分子体系的跃迁概率为 4%, 但是 LiH 分子体系的跃迁概率并不很稳定, 概率值在 7.5% 左右发生波动.

由图 2(c) 和图 2(d) 可以看出, 当激光强度在  $0.015$  a.u.  $\rightarrow 10$  a.u. 的范围内变化时, 即在能级粒子数达稳定状态后, 能级粒子数布居将会随着激光强度的增强, 发生周期性衰减振荡. 仔细对比两图, 还

可以看出,在 LiH 体系中,当激光强度从  $0.015 \text{ a.u.}$  增强时,振动跃迁概率由稳定状态的  $7.5\%$  增加到  $12\%$  左右,然后再逐渐降低,即随着激光强度的逐渐增强会出现大量的基态粒子向激发态跃迁的现象;但是在 NaCl 体系中,尽管也有少量基态粒子数向激发态跃迁,可是从整体范围看,呈现出衰减振荡. 并不像 LiH 体系,再次出现大量粒子由基态向激发态跃迁的情况. 即 LiH 分子体系的稳定状态很容易被打破,而 NaCl 分子较为稳定,其稳定状态不易受激光光强的影响.

从上面的分析可以看出,当激光频率和脉冲持续时间一定时,随着激光的强度从零逐渐增强的过程,体系粒子数布居先后出现三种主要趋势,受激

吸收、受激辐射、以及受激吸收和受激辐射两种趋势相等的情况.

### 3.3. 激光脉冲的持续时间对振动能级粒子数布居的影响

当激光频率和强度为确定值的情况下,我们选取作用时间分别为  $0 \rightarrow 2 \times 10^5 \text{ a.u.}$  和  $0 \rightarrow 10 \times 10^5 \text{ a.u.}$  两种不同情况下,研究从振动基态到第一振动激发态的跃迁概率随激光脉冲持续时间的变化关系,从而进一步分析不同振动能级上粒子数布居的变化情况. 图 3 给出分别在 LiH 和 NaCl 分子体系中,从振动基态到第一振动激发态的跃迁概率随激光脉冲持续时间的变化关系.

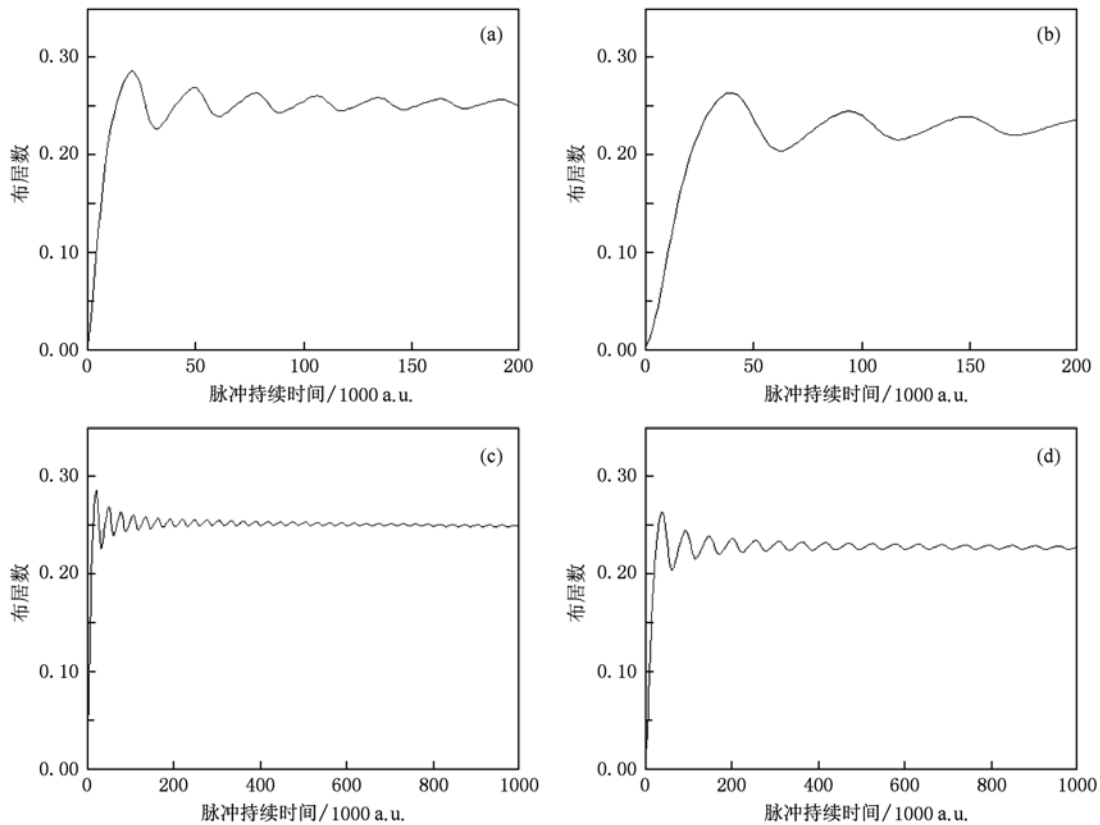


图 3 LiH 和 NaCl 分子两体系中,当激光频率和强度为确定值的情况下,第一振动激发态的跃迁概率在两个不同脉冲持续时间范围内的变化曲线 (a)(c) 为 LiH 分子体系中  $\omega_1 = 0.00652 \text{ a.u.}$ ,  $E = 0.001 \text{ a.u.}$ ; (b)(d) 为 NaCl 分子体系中  $\omega_1 = 0.00161 \text{ a.u.}$ ,  $E = 0.001 \text{ a.u.}$

由图 3(a) 和图 3(b) 可以看出,当激光脉冲持续时间范围为  $0 \rightarrow 2 \times 10^5 \text{ a.u.}$  时,在 NaCl 和 LiH 两体系中,第一振动激发态的粒子数布居达饱和之后,均出现周期性衰减振荡. 还发现 NaCl 分子跃迁概率的振动周期长于 LiH 跃迁概率的振动周期,但振动幅值小于 LiH 分子跃迁概率的振动幅值.

由图 3(c) 和图 3(d) 可以看出,当激光脉冲持续时间范围为  $0 \rightarrow 10 \times 10^5 \text{ a.u.}$  时,随着激光脉冲持续时间的增加,两体系出现周期性衰减振荡之后,粒子数振动收敛将达到稳定状态,并发现 NaCl 分子需要较长时间收敛达稳定状态. 除此之外,从图像还可以看出,NaCl 分子在稳定状态时的振动跃迁概

率低于 LiH 分子体系. 以上现象同样也说明, NaCl 分子不易激发. 这与 NaCl 分子的解离能较大的事实相符合.

从上面的分析可以看出, 当激光频率和强度一定时, 随着激光作用时间从零开始增加, 振动基态的粒子逐渐向第一振动激发态跃迁, 使得激发态的粒子数布居迅速达最大值, 之后两振动能级上的粒子数布居均会发生周期性衰减振荡, 随着脉冲持续时间的持续增加, 振动幅减小, 最终收敛为稳定状态, 而且收敛时间的长度与分子稳定性有关.

#### 4. 结 论

本文利用李代数方法研究了在红外场作用下双原子分子振动能级粒子数布居的变化情况. 研究

发现, 振动能级粒子数布居的变化与红外激光的频率、强度和脉冲持续时间有密切关系. 当激光的强度和脉冲持续时间一定时, 由于斯塔克效应的存在, 导致能级分裂, 从而使得振动基态上的粒子会在不同频率的激光作用下, 发生共振跃迁; 当激光频率和脉冲持续时间一定时, 随着激光的强度从零逐渐增强的过程, 体系粒子数布居先后出现三种主要趋势; 当激光的频率和光强都一定时, 随着激光脉冲的持续, 以受激吸收为主要趋势, 随后两能级粒子数布居出现周期性衰减振荡, 直到停止振荡. 另外, 通过对两体系进行对比研究发现, NaCl 与 LiH 所反映的规律是一致的, 而且 NaCl 的性质较为稳定, 更有利于进行实验探测研究. 文中关于激光频率、光强等对振动布居影响的数据希望能够为实验研究提供有用的信息.

- 
- [1] Winterfeldt C, Spielmann C, Gerber G 2008 *Rev. Mod. Phys.* **80** 117
  - [2] Krausz F 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 163
  - [3] Zou S Y, Ren Q, Balint-Kurti G G, Manby F R 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 243003
  - [4] Balint-Kurti G G, Zou S Y, Brown A 2008 *Adv. Chem. Phys.* **138** 43
  - [5] Coulter C A 1974 *Phys. Rev. A* **10** 1946
  - [6] Chu S I, Telnov D A, 2004 *Phys. Rep.* **390** 1
  - [7] Marques M A L, Gross E K U 2004 *Annu. Rev. Phys. Chem.* **55** 427
  - [8] Meng Q T, Liu X G, Zhang Q G, Han K L 2005 *Chem. Phys.* **316** 93
  - [9] Yue D G, Zheng X Y, Liu H, Wang C X, Meng Q T 2009 *Chin. Phys. B* **18** 1479
  - [10] Masahiro Iwai, Levine R D 1990 *Phys. Rev. A* **42** 3991
  - [11] Zheng Y J, Ding S L 1999 *Chem. Phys.* **247** 225
  - [12] Zheng Y J, Ding S L 1999 *Acta Phys. Sin.* **48** 438 (in Chinese) [郑雨军、丁世良 1999 物理学报 **48** 438]
  - [13] Wang X Y, Ding S L 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 423 (in Chinese) [王晓艳、丁世良 2004 物理学报 **53** 423]
  - [14] Meng Q T, Guan D R, Ding S L 2001 *Chem. Phys.* **265** 113
  - [15] Meng Q T, Guan D R, Ding S L 2002 *J. Mol. Struct.: Theochem.* **582** 61
  - [16] Liu Y, Zheng Y J, Ren W Y, Ding S L 2008 *Phys. Rev. A* **78** 032523
  - [17] Feng H R, Li P, Zheng Y J, Ding S L 2010 *Prog. Thero. Phys.* **123** 215
  - [18] Lü J Q, Zhang Z 2007 *Chin. Phys.* **16** 1280
  - [19] Liu C M, Wu R H, Fu J L 2007 *Chin. Phys.* **16** 2665
  - [20] Yuan F, Ding S L 1996 *Acta Phys. Sin.* **45** 20 (in Chinese) [袁 峰、丁世良 1996 物理学报 **45** 20]
  - [21] Feng H R, Liu Y, Zheng Y J, Ding S L, Reng W Y 2007 *Phys. Rev. A* **75** 063417
  - [22] Hermann J Becher 1972 *Angew. Chem. Int. Edit.* **11** 26
  - [23] Huang D H, Wang F H, Min J, Zhu Z H 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 3052 (in Chinese) [黄多辉、王藩候、闵 军、朱正和 2009 物理学报 **58** 3052]
  - [24] Frank A, Lemus R, Carvajal M, Jung C, Ziemniak E 1999 *Chem. Phys. Lett.* **308** 91
  - [25] Levine R D 1983 *Chem. Phys. Lett.* **95** 87
  - [26] Alhassid Y, Levine R D 1978 *Phys. Rev.* **18** 89
  - [27] Alok Shulka 2000 *Phys. Rev. B* **61** 13277

# Lie algebraic approach to vibrational populations of diatomic molecules in infrared laser fields<sup>\*</sup>

Liu Fang Wang Jun Zhao Juan Xu Yan Meng Qing-Tian<sup>†</sup>

(College of Physics and Electronics, Shandong Normal University, Jinan 250014, China)

(Received 4 May 2010; revised manuscript received 24 May 2010)

## Abstract

In this paper, we study the vibrational populations of diatomic molecules in infrared fields using algebraic approach, and obtain the explicit analytical expression of the transition probability. The influences of frequency, intensity and pulse duration on the vibrational populations, which belong to, respectively, the ground state and the first excited state of vibration in NaCl and LiH molecular systems, are discussed.

**Keywords:** Lie algebraic method, infrared field, vibrational populations, diatomic molecules

**PACS:** 02.20.Sv, 33.20.Ea, 33.20.Tp, 42.50.Hz

---

<sup>\*</sup> Project supported by the Natural Science Foundation of Shandong Province, China (Grant No. Y2006A23), the State Key Development Program for Basic Research of China (Grant No. 2006CB806000), the Open Topics of Strong Field Laser Physics State Key Laboratory.

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: qtmeng@sdu.edu.cn