

三态 K_2 分子飞秒含时光电子能谱的理论研究

冯小静 郭玮 路兴强 姚洪斌 李月华

Theoretical investigation of femtosecond-resolved photoelectron spectra of three-level ladder K_2 molecules

Feng Xiao-Jing Guo Wei Lu Xing-Qiang Yao Hong-Bin Li Yue-Hua

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 64, 143303 (2015) DOI: 10.7498/aps.64.143303

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.143303>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2015/V64/I14>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

不同波长下氩原子高阶阈上电离的类共振增强结构

Resonance-like enhancement in high-order above-threshold ionization of argon at different wavelengths

物理学报.2015, 64(14): 143201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.143201>

高频激光脉冲作用下原子的光子和光电子发射

Photon and photoelectron emission of the atom under the action of high-frequency laser pulse

物理学报.2015, 64(4): 043201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.043201>

两束同色激光场和中红外场驱动氦原子在等离激元中产生的单个阿秒脉冲

Single isolated attosecond pulse generated by helium atom exposed to the two laser pulses with the same color and midinfrared intense laser pulse in the plasmon

物理学报.2014, 63(20): 203201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.203201>

μ 介子氢原子在双色激光场驱动下产生单个阿秒脉冲

Single zeptosecond pulse generation from muonic atoms under two-color XUV fields

物理学报.2014, 63(7): 073201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.073201>

NaLi 分子飞秒含时光电子能谱的理论研究

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

物理学报.2014, 63(2): 023302 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.023302>

三态 K_2 分子飞秒含时光电子能谱的理论研究*冯小静¹⁾ 郭玮^{1)†} 路兴强²⁾ 姚洪斌³⁾ 李月华¹⁾

1) (南华大学电气工程学院, 衡阳 421001)

2) (南华大学核科学技术学院, 衡阳 421001)

3) (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)

(2014年12月29日收到; 2015年3月20日收到修改稿)

利用三态模型和含时波包法, 研究了 K_2 分子在强飞秒抽运-探测激光场中延时、脉宽以及抽运波长对光电子能谱和波包动力学过程的影响. 研究表明, 激光场强较弱或者脉宽较短都可能不发生 Autler-Townes 分裂, 光电子能谱呈现出单峰结构; 延时和抽运波长的改变影响能峰结构、位置和相对峰高; 对于不同的抽运波长, 波包的振动周期是相同的, 波包振荡幅度随脉宽增大而减小; 光电子能谱反映了波包动力学信息. 研究结果可以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, 并为进一步研究 K_2 分子的动力学性质提供有用的信息.

关键词: 三态 K_2 分子, 含时波包法, 光电子能谱, 波包动力学过程

PACS: 33.60.+q, 32.80.Rm, 82.53.Eb

DOI: 10.7498/aps.64.143303

1 引言

超短超强激光技术的发展使得人们能够在飞秒时间尺度内实时地观测和控制分子的运动^[1,2]. 激光参数, 如场强^[3-18]、波长^[8-16]、脉宽^[3-7,10,11,19]、抽运和探测激光之间的延时等^[12-20]可用于控制分子的激发、电离和解离过程. 实验上和理论上都已有对多态原子/分子体系的研究.

碱金属二聚物由于其结构简单而成为人们广泛研究的对象, 在理论和实验上已经对其进行了一系列的研究. 文献^[3], 文献^[4, 5]和文献^[6, 7]研究了激光场强、脉宽等因素对四态 Na_2/Li_2 分子的光电子能谱的影响, 结果表明激光场强较弱或者脉宽较短可能观察不到 Autler-Townes (AT) 三分裂, 长脉宽可能导致不对称 AT 三分裂. Yao 等^[8]和 Guo 等^[9]对四态 K_2 分子的研究表明, 抽运波长影响 AT 的不对称分布. Sun 和 Lou^[10]以

及 Yuan 等^[11]研究了激光场强、脉宽、转动和取向对三态 Na_2 分子的光电子能谱的影响, 结果表明激光场强较弱时可能观察不到 AT 双分裂, 长脉宽可能导致不对称 AT 双分裂. Liu 等^[12,13]研究了探测场强、探测波长、延时时对三态 Li_2 分子的光电子能谱的影响, 得到的光电子能谱均呈现不对称双峰结构, 并且延时时不改变双峰位置, 只改变双峰的峰高. Wollenhaupt 和 Baumert^[14]以及文献^[15-18]对三态 K_2 分子的量子调控研究表明, 场强、抽运波长、延时时可以控制缀饰态的选择性布居. Yuan 等^[19]研究了脉宽和延时时对三能态 Na_2 分子波包运动和布居转移的控制作用, 研究表明短脉冲利于波包在激发态上进行周期性运动, 并且用绝热表象下的光致势能面 (light induced potential surface, LIPs) 对此进行了解释, 短脉冲、正延时 (抽运脉冲超前于探测脉冲) 可更高效地控制波包运动和布居转移. Yao 等^[20,21]研究了延时时对 NaI 分子的非绝热控制. Zhang 等^[22]对 NaLi 分子飞秒动力学行为的研究发现激光波长影响波包振动周期, 延时时影响

* 国家自然科学基金 (批准号: 11447020) 和湖南省自然科学基金 (批准号: 2015JJ3104) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: vella99@163.com

光电子能谱峰位置和相对峰高。

光电子能谱反映激发态的动力学信息。脉宽和延时时对三态 K_2 分子激发态波包动力学行为影响的研究未见报道。本文采用含时波包方法结合抽运-探测技术研究了延时时为 0 fs 和 1800 fs 时, 抽运波长在正失谐、共振以及负失谐这三种情况下脉宽对三态 K_2 分子的光电子能谱和激发态波包运动的影响。

2 基本理论

如图 1 所示, 本文采用 K_2 分子的三态模型: 基态 $|X\rangle(|X)^1\Sigma_g^+$ 、激发态 $|B\rangle(|B)^1\Sigma_g^+$ 和电离态 $|X^+\rangle(|X^+)^2\Sigma_g^+$ [16,17,23]。 K_2 分子初始时刻处在基态 $|X\rangle$ 势能面上, 一束抽运激光将 K_2 分子激发到激发态 $|B\rangle$ 势能面上形成一个局域性好的初始振动波包。经过一段时间的延时时, 另一束探测激光将处在激发态上的波包电离到电离态, 并释放出光电子。光电子能谱反映分子在激发态 $|B\rangle$ 上的动力学信息。

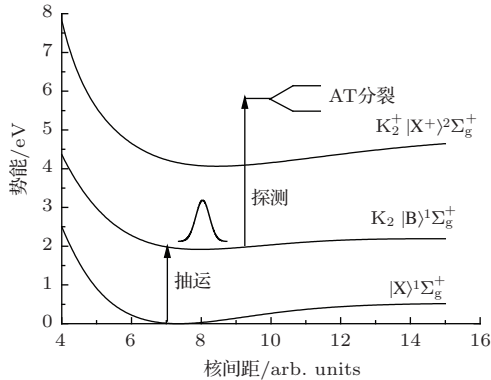


图 1 K_2 分子的势能曲线

Fig. 1. Potential curves of K_2 molecule used in the work.

在飞秒时间尺度下, 质量较大的分子的转动运动可以忽略不计 [10]。采用波恩-奥本海默近似, 并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。对于此三态模型, 波函数 Ψ 可以写成如下的向量形式:

$$\Psi = (\psi_X, \psi_B, \psi_{ion})^T, \quad (3)$$

其中, $\psi_X, \psi_B, \psi_{ion}$ 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_{ion} 可以转化成一一系列的准连续态, 其表示形式为

$$\psi_{ion} = (\psi^{(1)}, \psi^{(2)}, \dots, \psi^{(N)})^T, \quad (4)$$

其中, N 表示 K_2 分子电离态的数目。

动能算符 T 可以表示为

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

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

势能算符 V 可以表示为

$$V = \begin{pmatrix} V_X & 0 & \boldsymbol{\theta} \\ 0 & V_B & \boldsymbol{\theta} \\ \tilde{\boldsymbol{\theta}} & \tilde{\boldsymbol{\theta}} & (V_{ion} + \xi^{(i)}) \boldsymbol{\Pi} \end{pmatrix}, \quad (6)$$

其中, V_X, V_B, V_{ion} 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; $\xi^{(i)} = (i-1)\Delta\xi$ ($i = 1, 2, \dots, N$) 是出射光电子的能量, $\Delta\xi$ 是 K_2 分子电离态间隔。

分子与激光场之间的相互作用项 H' 可以表示为

$$H' = \begin{pmatrix} 0 & W_{XB} & 0 \\ W_{XB} & 0 & \mathbf{W}_{Bi} \\ 0 & \tilde{W}_{Bi} & \mathbf{A} \end{pmatrix}, \quad (7)$$

其中, $\mathbf{W}_{Bi} = (W_{Bi}^{(1)}, W_{Bi}^{(2)}, \dots, W_{Bi}^{(N)})$ 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; \mathbf{A} 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

$$W_{XB} = \hbar R_1(R) \cos(\omega_1 t), \quad (8)$$

$$\mathbf{W}_{Bi} = \hbar R_2(R) \cos[\omega_2(t - \Delta t)], \quad (9)$$

其中, $R_1 = \frac{1}{\hbar} \mu_{XB}(R) e_1 f_1(t)$ 和 $R_2 = \frac{1}{\hbar} \mu_{Bi}(R) e_2 f_2(t)$ 分别表示基态 $|X\rangle$ 和激发态 $|B\rangle$ 、激发态 $|B\rangle$ 和电离态 $|X^+\rangle$ 之间的拉比频率; $\mu_{XB}(R)$

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; e_1 和 e_2 分别表示抽运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 $f_1(t) = \exp[-4 \ln 2 (t/\tau)^2]$, $f_2(t) = \exp[-4 \ln 2 ((t - \Delta t)/\tau)^2]$ τ 是它们的半高全宽(简称脉宽), Δt 是抽运和探测激光之间的延时.

利用分裂算符-傅里叶变换数值求解含时薛定谔方程^[24-27], 一旦求得任意时刻的波函数, 便可得到能量分辨光电子能谱^[8,10-12,16,17]

$$P(\xi^{(i)}) = \lim_{t \rightarrow \infty} \int dR |\psi^{(i)}(R, t, \xi^{(i)})|^2. \quad (10)$$

在本文的计算中, 相关参量的取值如下: 电离态数目 $N = 140$; 光电子的能量 $\xi^{(i)}$ 的取值范围为 $0-1.4$ eV; 激发态和电离态之间的跃迁偶极矩 $\mu_{Bi}(R)$ 取为 $\mu_{XB}(R)$ 的十分之一^[3,28]. 本文计算过程中使用了旋转波近似, 但是当场强很强, 导致分子势能面的畸变而使电子态之间存在非绝热耦合作用(势能面有交叉)时, 不能采用旋转波近似, 现有理论可能不再适用.

3 结果与讨论

我们讨论抽运-探测延时为 0 fs 时脉宽和抽运波长对光电子能谱的影响. 图 2 为抽运-探测延时为 0 fs 时抽运激光在正失谐、共振以及负失谐三种情况下不同脉宽对应的光电子能谱图. 抽运场失谐量定义为 $\delta_p = \omega_{XB} - \omega_1$, 其中 ω_{XB} 是两态 $|X\rangle \rightarrow |B\rangle$ 间的固有频率; $\delta_p > 0$ 为正失谐, $\delta_p = 0$ 为共振, $\delta_p < 0$ 为负失谐. 从图 2(a)—图 2(c) 中可以看出: 1) 当脉宽为 10 fs 时, 光电子能谱为单峰结构, 当脉宽为 $30, 60, 80$ fs 时, 光电子能谱为双峰结构, 这个双峰结构就是所谓的 AT 分裂, 它是由足够强的 Rabi 振荡产生的^[8,10,11,16,17]; 抽运场强等于 5×10^{11} W/cm², 相应的脉冲面积为 $\Theta = 4\pi$ (脉冲面积定义为 $\Theta = 4 \frac{1}{\hbar} \mu_{XB} e_1 \int_0^\infty f_1(t) dt$), 在 Yao 等^[16,17] 研究的产生 AT 分裂的条件内; 短脉宽 10 fs 未出现分裂, 这与对四态 Li₂ 分子^[6,7] 的研究结论一致, 这是因为场强不够强, 也就是脉宽越短, 出现分裂的临界场强越大; 进一步研究表明本文计算条件下, 10 fs 脉冲出现 AT 分裂的临界场强为 20×10^{11} W/cm²; 图 2(a) 和图 2(c) 中的双峰均呈现不对称性, 这是非共振激发导致的^[16-18]; 对于图 2(b), 当脉宽为 30 fs 时, 双峰对称, 这是共振

激发的结果, 这种对称双峰结构已经在三态 Li₂ 分子^[12], Na₂ 分子^[10,11], K₂ 分子^[16,17] 中观察到; 而当脉宽较大、为 $60, 80$ fs 时, 双峰呈现出不对称性, 这种长脉宽出现不对称 AT 分裂的现象也出现在对三态 Na₂ 分子^[10,11] 和四态 Li₂ 分子^[6,7]、四态 Na₂ 分子^[3] 的研究中; 2) 在相同的脉宽条件下, 随着抽运波长的增大, 双峰中的低能峰的高度逐渐变大,

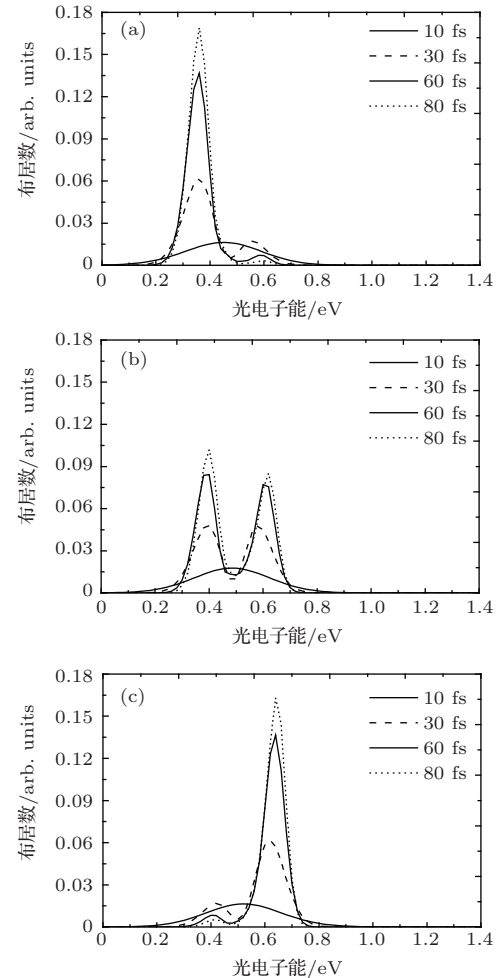


图 2 不同的抽运波长下脉宽取不同值对应的 K₂ 分子的光电子能谱 (a)—(c) 分别表示抽运波长 $\lambda_1 = 660$ nm (正失谐), 640 nm (共振), 620 nm (负失谐), 粗实线、虚线、实线、短虚线分别表示脉宽 $\tau = 10, 30, 60, 80$ fs; 激光场的其他参数为: 延迟时间 $\Delta t = 0$ fs, 探测波长 $\lambda_2 = 460$ nm, 抽运和探测激光强度为 $I_1 = I_2 = 5.0 \times 10^{11}$ W/cm²

Fig. 2. The photoelectron spectra for different pump wavelengths and pulse widths. Panels (a), (b) and (c) correspond to pump wavelength $\lambda_1 = 660$ nm (positive detuning), 640 nm (resonant condition), and 620 nm (negative detuning), respectively; the thick solid line, dashed line, solid line, and short dashed line denote pulse width $\tau = 10$ fs, 30 fs, 60 fs, and 80 fs respectively; other laser parameters are delay time $\Delta t = 0$ fs, probe wavelength $\lambda_2 = 460$ nm, pump and probe intensity $I_1 = I_2 = 5.0 \times 10^{11}$ W/cm².

高能峰的高度逐渐变小, 这种不对称 AT 分裂受抽运波长的影响在三态 K_2 分子 [16–18] 及四态 K_2 分子 [8,9] 都已观察到; 这可以用缀饰态理论来解释, 激发态 $|B\rangle$ 在激光场的作用下, 分裂为两个亚稳态 $|\alpha\rangle$ 和 $|\beta\rangle$ (所谓的缀饰态, 假定 $|\beta\rangle$ 态能量比 $|\alpha\rangle$ 态能量高), 则它们分别对应于光电子能谱双峰结构中的低能峰和高能峰, 抽运波长越长, 单光子能量越小, 基态上的波包就越容易布居到能级较低的缀饰

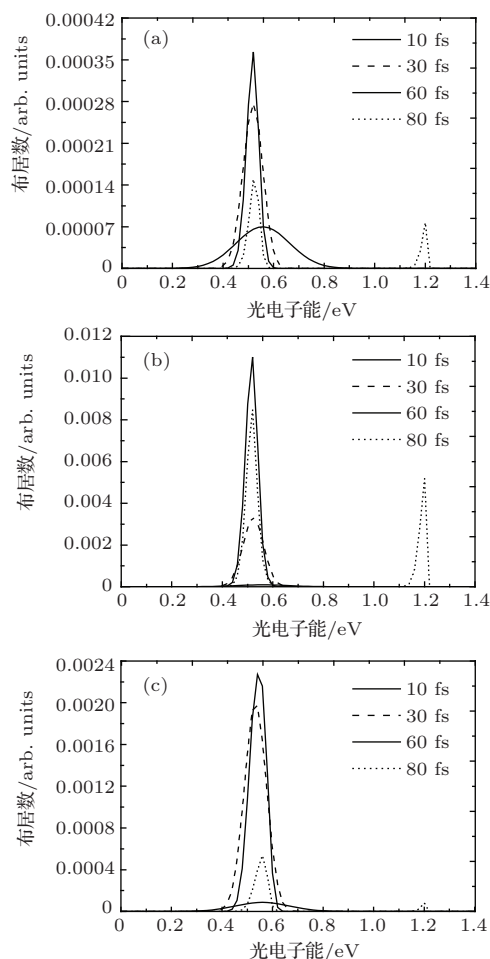


图3 不同抽运波长下脉宽取不同值对应的 K_2 分子的光电子能谱 (a)—(c) 分别表示抽运波长 $\lambda_1 = 660$ nm (正失谐), 640 nm (共振), 620 nm (负失谐), 粗实线、虚线、实线、短虚线分别表示脉宽 $\tau = 10, 30, 60, 80$ fs; 激光场的其他参数为: 延迟时间 $\lambda_2 = 1800$ fs, 探测波长 $\lambda_2 = 460$ nm, 抽运和探测脉冲强度为 $I_1 = I_2 = 5.0 \times 10^{11}$ W/cm²

Fig. 3. The photoelectron spectra for different pump wavelengths and pulse widths. Panels (a), (b) and (c) correspond to pump wavelength $\lambda_1 = 660$ nm (positive detuning), 640 nm (resonant condition), and 620 nm (negative detuning), respectively; the thick solid line, dashed line, solid line, and short dashed line denote pulse width $\tau = 10, 30, 60,$ and 80 fs respectively; other laser parameters are delay time $\Delta t = 1800$ fs, probe wavelength $\lambda_2 = 460$ nm, pump and probe intensity $I_1 = I_2 = 5.0 \times 10^{11}$ W/cm².

态 $|\alpha\rangle$ 上, 这就导致了双峰中低能峰的高度逐渐变大, 高能峰的高度逐渐变小.

我们讨论延时为 1800 fs 时脉宽和抽运波长对光电子能谱的影响. 图 3 为抽运-探测延时为 1800 fs 时, 抽运激光在正失谐、共振以及负失谐三种情况下不同脉宽对应的光电子能谱图. 从图 3(a)—图 3(c) 中可以看出: 1) 当脉宽为 10, 30, 60 fs 时, 光电子能谱中只有一个单峰, 而当脉宽为 80 fs 时, 光电子能谱出现不对称双峰; Liu 等 [12,13] 观察到态 Li_2 分子在长脉宽、较大延时 (1000—2000 fs) 的光电子能谱也为不对称双峰; 2) 当脉宽逐渐增大时, 单峰的能量范围逐渐变窄, 这是因为带宽与脉宽相对应, 由于带宽的存在, 分子可以从基态激发到激发态的一定范围内的许多连续态; 因此, 当激光场的场强一定时, 随着脉宽的增加, 带宽减小, 导致在激发过程中所能达到的连续态的范围减小, 从而造成光电子能谱变窄 [29]; 3) 在相同的脉宽条件下, 图 3(b) 中的光电子能谱的峰高最大, 这表明抽运波长满足共振条件时激发概率最大; 图 3(a) 中的光电子能谱的峰高比图 3(c) 中小, 这表明在非共振条件下, 抽运波长越长, 激发概率越小.

图 4 为抽运-探测延时为 1800 fs 时, 抽运脉冲在正失谐、共振以及负失谐三种情况下不同脉宽对应的波包随时间和核间距的演化. 从图 4(a)—图 4(c) 中可以看出, 波包在激发态 $|B\rangle$ 势能面的内转折点 (7 a.u.) 和外转折点 (9.5 a.u.) 之间运动. 这种波包在内外转折点之间的周期性运动在四态 Na_2 分子 [4,5]、三态 Na_2 分子 [1,19] 和 $NaLi/NaI$ 分子 [21,22] 的研究中已观察到. 随着脉宽和抽运波长的变化, 波包的运动周期几乎不变, 大约为 500 fs. 这与 Zhang 等 [22] 的研究结果不同, 他们根据对 $NaLi$ 分子的飞秒动力学研究认为: 对于不同的激光波长, 波包的振动周期不同. 图 4(a) 和图 4(b) 中波包的振荡幅度均随着脉宽的增大逐渐减小, 这与文献 [19] 中的结论一致. 这可以用绝热表象下的 LIPs 来解释. 在缀饰态理论中, 分子在无外加激光场作用下的势能面称为裸势, 而裸势在外加激光场作用下会形成一个新的势能面, 也就是所谓的光致势能面. 波包的振荡振幅与光致势能面的变化速度有关, 而光致势能面的改变又与脉宽有关, 脉宽越短、光致势能面变化越快, 因此波包振荡振幅随着脉宽的增大而减小 [19]. 图 4(a) 中波包振荡振幅随脉宽减小的速度比图 4(b) 中快; 而图 4(c) 中波包运动的振荡振幅却随着脉宽的增大而略有增大.

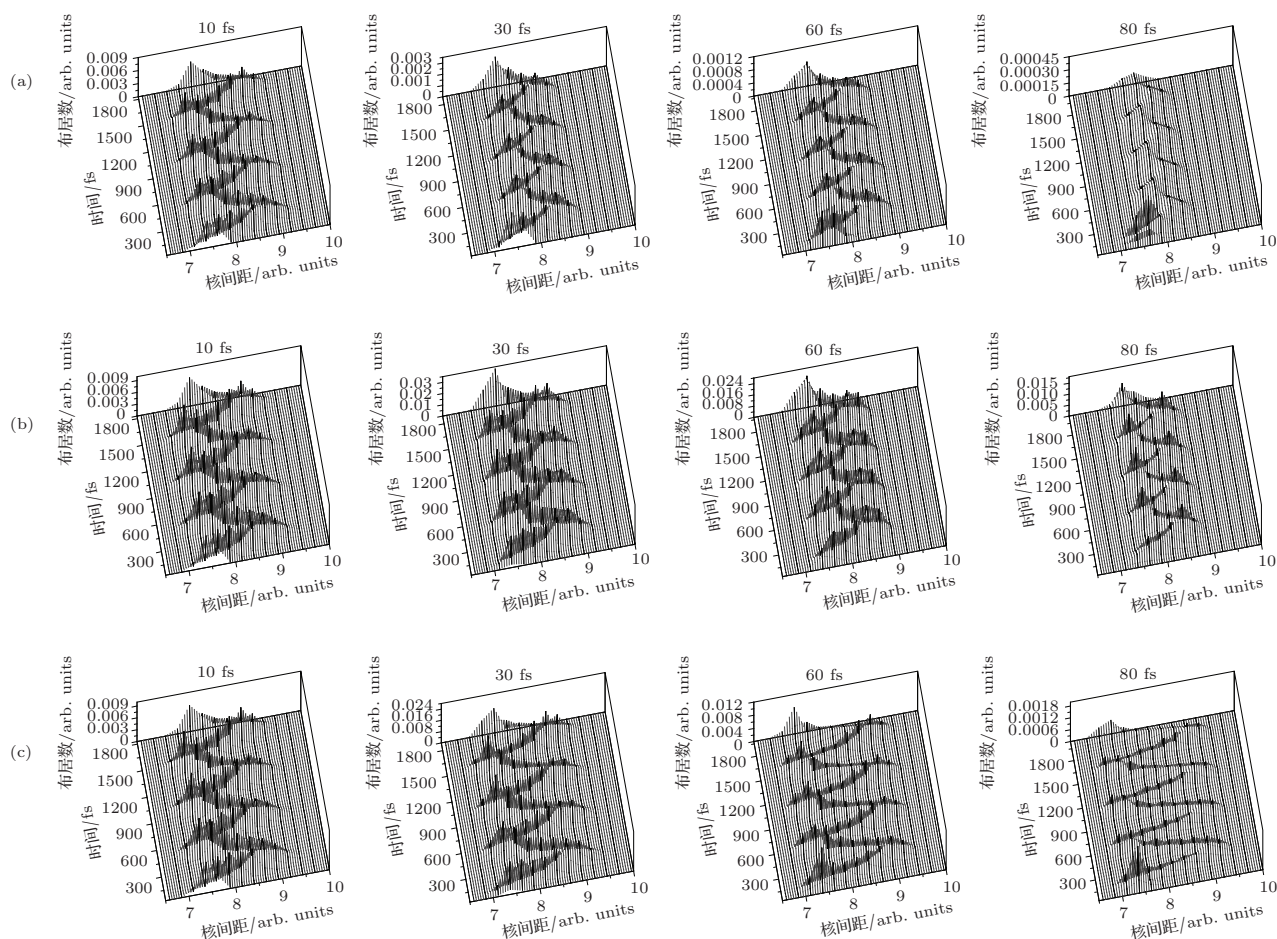


图4 不同的抽运波长下脉宽取不同值对应的激发态波包随时间和核间距的演化 (a)—(c) 分别表示抽运波长 $\lambda_1 = 660$ nm (正失谐), 640 nm (共振), 620 nm (负失谐), 脉宽分别取值为 $\tau = 10, 30, 60, 80$ fs; 激光场的其他参数为: 延迟时间 $\Delta t = 1800$ fs, 探测波长 $\lambda_2 = 460$ nm, 抽运和探测脉冲强度为 $I_1 = I_2 = 5.0 \times 10^{11}$ W/cm²

Fig. 4. The evolutions of wave packet in $|B\rangle^1 \Sigma_g^+$ state with time and internuclear distance for different pump wavelengths and pulse widths. Panels (a), (b) and (c) correspond to pump wavelength $\lambda_1 = 660$ nm (positive detuning), 640 nm (resonant condition), and 620 nm (negative detuning), respectively; other laser parameters are delay time $\Delta t = 1800$ fs, probe wavelength $\lambda_2 = 460$ nm, pump and probe intensity $I_1 = I_2 = 5.0 \times 10^{11}$ W/cm².

4 结 论

本文利用含时波包方法研究了延时、脉宽以及抽运波长对三态 K_2 的光电子能谱和激发态波包运动的影响。研究表明, 当抽运-探测延时为 0 fs, 抽运脉冲在正失谐、共振、以及负失谐这三种情况下, 脉宽较短时 (10 fs) 光电子能谱均为单峰结构, 随着脉宽逐渐增大 (30 fs, 60 fs, 80 fs) 光电子能谱呈现出双峰结构; 只有抽运波长满足共振条件, 脉宽为 30 fs 时, 双峰为对称性双峰, 其他条件下的双峰均为非对称双峰; 当抽运-探测延时为 1800 fs, 抽运脉冲在正失谐、共振以及负失谐这三种情况下, 当脉宽较长时 (80 fs) 光电子能谱均为非对称双峰, 其他脉宽 (10 fs, 30 fs, 60 fs) 条件下光电子能谱均为单

峰结构, 单峰的峰高随着脉宽的增大而增大, 单峰的能量范围随着脉宽的增大而变窄, 激发态上波包的振荡周期不随脉宽的改变而改变, 大约为 500 fs; 抽运脉冲在正失谐、共振时, 激发态上波包的振荡幅度均随着脉宽的增大逐渐减小, 抽运脉冲在负失谐时, 激发态上的波包的振荡幅度均随着脉宽的增大略有增大。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 K_2 分子的动力学性质提供有用的信息。

参考文献

- [1] Henriksen N E, Engel V 2001 *Int. Rev. Phys. Chem.* **20** 93
- [2] Stolow A, Bragg A E, Neumark D M 2004 *Chem. Rev.* **104** 1719

- [3] Meier C, Engel V 1994 *Phys. Rev. Lett.* **73** 3207
- [4] Frohnmeyer T, Baumert T 2000 *Appl. Phys. B* **71** 259
- [5] Wollenhaupt M, Assion A, Bazhan O, Liese D, Sarpe-Tudoran C, Baumert T 2002 *Appl. Phys. B* **74** S121
- [6] Hu W H, Yuan K J, Han Y C, Shu C C, Cong S L 2007 *Chin. Phys. Lett.* **24** 1556
- [7] Hu W H, Yuan K J, Han Y C, Shu C C, Cong S L 2010 *Int. J. Quantum Chem.* **110** 1224
- [8] Yao H B, Zheng Y J 2011 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **13** 8900
- [9] Guo W, Lu X Q, Wang X L, Yao H B 2014 *Europhys. Lett.* **108** 53002
- [10] Sun Z G, Lou N Q 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 023002
- [11] Yuan K J, Sun Z G, Cong S L, Lou N Q 2006 *Phys. Rev. A* **74** 043421
- [12] Liu Y F, Liu R Q, Ding J X 2009 *Chin. Phys. Lett.* **26** 073301
- [13] Liu Y F, Liu R Q, Ding J X 2010 *Chin. Phys. B* **19** 033301
- [14] Wollenhaupt M, Baumert T 2006 *J. Photochem. Photobiol. A* **180** 248
- [15] von den Hoff P, Kowalewski M, de Vivie-Riedle R 2011 *Faraday Discuss.* **153** 159
- [16] Yao H B, Zheng Y J 2012 *Chin. Phys. B* **21** 023302
- [17] Yao H B, Li W L, Zhang J, Peng M 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 178201 (in Chinese) [姚洪斌, 李文亮, 张季, 彭敏 2014 物理学报 **63** 178201]
- [18] Peng Y G, Zheng Y J 2009 *Phys. Rev. A* **80** 043831
- [19] Yuan K J, Sun Z G, Cong S L, Wang S M, Yu J, Lou N Q 2005 *Chem. Phys.* **316** 245
- [20] Yao H B, Lin S Y, Zhen Y J 2011 *J. Theor. Comp. Chem.* **10** 509
- [21] Yao H B, Zheng Y J 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 128201 (in Chinese) [姚洪斌, 郑雨军 2011 物理学报 **60** 128201]
- [22] Zhang M, Tang T T, Zhang C M 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 023302 (in Chinese) [张敏, 唐田田, 张朝民 2014 物理学报 **63** 023302]
- [23] Schwörer H, Pausch R, Heid M, Heid M, Engel V, Kiefer W 1997 *J. Chem. Phys.* **107** 9749
- [24] Zhang H, Han K L, Zhao Y, He G Z, Nan L Q 1997 *Chem. Phys. Lett.* **271** 204
- [25] Xie T X, Zhang Y, Zhao M Y, Han K L 2003 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **5** 2034
- [26] Hu J, Han K L, He G Z 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 123001
- [27] Chu T S, Zhang Y, Han K L 2006 *Int. Rev. Phy. Chem.* **25** 201
- [28] Baumert T, Engel V, Meier C, Gerber G 1992 *Chem. Phys. Lett.* **200** 488
- [29] Li Y J, Jiang W Y, Khait Y G, Hoffmann M R 2011 *J. Chem. Phys.* **134** 174108

Theoretical investigation of femtosecond-resolved photoelectron spectra of three-level ladder K_2 molecules*

Feng Xiao-Jing¹⁾ Guo Wei^{1)†} Lu Xing-Qiang²⁾ Yao Hong-Bin³⁾ Li Yue-Hua¹⁾

1) (School of Electric Engineering, University of South China, Hengyang 421001, China)

2) (School of Nuclear Science and Technology, University of South China, Hengyang 421001, China)

3) (State Key Laboratory of Molecular Reaction Dynamics, Dalian Institute of Chemical Physics, Dalian 116023, China)

(Received 29 December 2014; revised manuscript received 20 March 2015)

Abstract

We investigate the effect of delay time, pulse width and pump wavelength on photoelectron spectra and wave packet forming process of the three-level K_2 molecules via time-dependent wave packet approach. There is no Autler-Townes splitting for weaker pump intensity or shorter pulse width. Delay time and pump wavelength can affect peak structure, position, and relative height. The vibration period of wave packet does not vary with pump wavelength, while the oscillating amplitude decreases with increasing pulse width. Results may provide important basis for realizing the optical control of molecules experimentally.

Keywords: three-state ladder K_2 molecules, time-dependent wave packet approach, photoelectron spectra, wave packet dynamic processes

PACS: 33.60.+q, 32.80.Rm, 82.53.Eb

DOI: [10.7498/aps.64.143303](https://doi.org/10.7498/aps.64.143303)

* Projected supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11447020), and the Natural Science Foundation of Hunan province, China (Grant No. 2015JJ3104).

† Corresponding author. E-mail: vella99@163.com