

利用基频与倍频脉冲控制扩展“ladder”式跃迁

牛英煜 王荣 邱明辉 修俊玲

The extended “ladder” transition controlled by two harmonic pulses

Niu Ying-Yu Wang Rong Qiu Ming-Hui Xiu Jun-Ling

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 65, 233301 (2016) DOI: 10.7498/aps.65.233301

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.233301>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2016/V65/I23>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

超冷铯分子 0_g^- 长程态的振转光谱研究

Vib-rotational spectrum of ultracold cesium molecule 0_g^- long range state

物理学报.2013, 62(18): 183301 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.183301>

玉米油光学参数的太赫兹波精确测定研究

Accurate optical parameter determination of corn oil with terahertz wave time-domain spectroscopy

物理学报.2009, 58(8): 5805-5809 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.58.5805>

H_2^+ 在强激光脉冲作用下的电离率和原子核间距的关系

Internuclear-distance-dependent ionization of H_2^+ in strong laser field in a classical perspective

物理学报.2016, 65(20): 204202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.204202>

利用强场多光子电离技术实现对多原子分子离子振动量子态的光学操控

Optical control of the vibrational excitation of the polyatomic ions via strong field multi-photon ionization

物理学报.2014, 63(24): 244208 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.244208>

多周期双色场方案下附加脉冲频率对阿秒脉冲产生的影响

Effects of additional pulse wavelength at different frequencies on attosecond pulse generation in multicycle two-color laser field

物理学报.2012, 61(20): 203202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.203202>

利用基频与倍频脉冲控制扩展“ladder”式跃迁*

牛英煜[†] 王荣 邱明辉 修俊玲

(大连交通大学理学院, 大连 116028)

(2016年8月6日收到; 2016年9月8日收到修改稿)

利用含时量子波包动力学方法研究了两束基频与倍频脉冲控制下的扩展“ladder”式跃迁. 通过基频与2倍频脉冲控制分子布居从 $|0, 0\rangle$ 态跃迁至 $|5, 0\rangle$ 与 $|5, 2\rangle$ 态; 基频与3倍频脉冲控制分子布居从 $|0, 0\rangle$ 态跃迁至 $|5, 3\rangle$ 与 $|6, 2\rangle$ 态. 计算结果表明, 利用两束基频与倍频脉冲, 通过“ladder”式跃迁, 可以得到近100%的布居跃迁概率. 两束脉冲间的相对相位角影响分子的布居分布. 当脉冲频率比为1:2时, 布居以 π 为周期变化; 当脉冲频率比为1:3时, 布居以 2π 为周期变化.

关键词: “ladder”式跃迁, 波包, 相对相位角, 基频脉冲

PACS: 33.20.Vq, 42.50.Hz

DOI: 10.7498/aps.65.233301

1 引言

多年以来, 激光场与分子间相互作用的研究一直得到广泛的关注^[1-5]. 通过调节光场的频率、持续时间、光场强度等参数可以控制分子反应过程, 例如光解离与光电离、光缔合、分子的量子态调控等. 为了更好地利用光场控制分子, 很多光场设计方案被先后提出. 例如受激拉曼绝热通道方法, 利用两束逆序脉冲控制分子布居跃迁^[6-8]; 优化控制方法, 通过优化激光场的形状来提高产物的生成概率^[9-11].

Brumer等^[12]与Shapiro等^[13]提出了利用两束基频与倍频脉冲, 控制分子的布居转移过程. 该方法中, 一束频率为 ω 的基频脉冲激发分子经由多光子跃迁, 从初始态跃迁到目标态, 即 $|i\rangle \rightarrow n\text{-photon}(\omega) \rightarrow |f\rangle$; 另一束频率为 $n\omega$ 的倍频脉冲激发分子经由单光子跃迁, 从初始态跃迁到目标态, 即 $|i\rangle \rightarrow \text{one-photon}(n\omega) \rightarrow |f\rangle$. 由于倍频脉冲的频率是基频脉冲频率的整数倍, 两脉冲间的相对相位角可以改变总光场的场强, 从而控制分子布

居的跃迁过程. 此方法可用于控制束缚态-束缚态的跃迁^[14,15]. 在此过程中, 由于两束脉冲激发跃迁路径的初始态与目标态相同, 如果倍频脉冲激发单光子跃迁, 受跃迁选择定则限制, 其转动量子数变化只能为 $\Delta J = \pm 1$, 因此限制了目标态的选择. 此方法目前主要用于控制束缚态-连续态跃迁的解离与电离过程^[16-18]. 束缚态-束缚态的跃迁可由扩展“ladder”式跃迁来实现^[19-22]. 在此过程中, 频率分别为 ω_1 与 ω_2 的两束脉冲, 通过 $(k+n)$ “ladder”式跃迁, 激发分子布居从初始态 $|i\rangle$, 经由中间态 $|m\rangle$, 跃迁至目标态 $|f\rangle$, 即 $|i\rangle \rightarrow k\text{-photon}(\omega_1) \rightarrow |m\rangle \rightarrow n\text{-photon}(\omega_2) \rightarrow |f\rangle$. 根据跃迁选择定则, 从初始态到目标态的跃迁, 其转动量子数变化可以为 $\Delta J = \pm(k+n), \pm(k+n-2), \dots, \pm(k+n-2p)$, 其中 p 为整数, 且满足 $p < (k+n)/2$. 因此, 采用扩展“ladder”式跃迁可以为目标态提供更多的选择. 但由于此方法中, 两束脉冲的频率 ω_1 与 ω_2 的大小需要由初始态, 中间态与目标态三者间的共振频率决定, 通常不能满足基频与倍频关系, 无法利用两脉冲间的相位角控制布居跃迁过程.

* 国家自然科学基金(批准号: 11347012)资助的课题.

[†] 通信作者. E-mail: niuyy@djtu.edu.cn

本文主要采用两束基频与倍频脉冲, 控制完成扩展“ladder”式跃迁, 如图 1 所示. 我们选 HF 分子的基电子态内部的振转态作为研究对象. 由于单电子态内部振转态能级间隔较密, 能够找到合适的中间态, 使其与初始态、目标态之间的共振频率分别满足 $|i\rangle \rightarrow k\text{-photon}(\omega) \rightarrow |m_1\rangle$ 跃迁与 $|m_1\rangle \rightarrow \text{one-photon}(n\omega) \rightarrow |f\rangle$ 跃迁, 或满足 $|i\rangle \rightarrow \text{one-photon}(n\omega) \rightarrow |m_2\rangle$ 跃迁与 $|m_2\rangle \rightarrow k\text{-photon}(\omega) \rightarrow |f\rangle$ 跃迁. 从图 1 可以看出, 两束基频与倍频脉冲的频率不能与跃迁的共振频率完全相等, 而是存在失谐. 如图 1 所示, k 光子跃迁的频率 $k\omega$ 比 $|i\rangle \rightarrow |m_1\rangle$ 跃迁的共振频率小, 其失谐为 $-\Delta_1$; 单光子跃迁的频率 $n\omega$ 比 $|m_1\rangle \rightarrow |f\rangle$ 跃迁的共振频率大, 其失谐为 Δ_1 . 在“ladder”式跃迁中, 当两跃迁的失谐大小相等时, 仍然可以得到较高的跃迁概率^[23,24]. 因此, 基频与倍频脉冲即使在有一定失谐的条件下也可以实现“ladder”式跃迁. 我们利用含时波包动力学方法, 分别研究了 $(\omega + 2\omega)$ 脉冲体系与 $(\omega + 3\omega)$ 脉冲体系作用下的扩展“ladder”式跃迁过程.

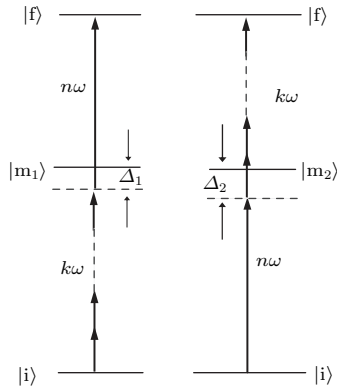


图 1 扩展“ladder”式跃迁过程

Fig. 1. The processes of the extended “ladder” transition.

2 理论方法

在计算中, HF 分子初始态布居处于基电子态振转量子数均为 0 的能级, 即 $|0, 0\rangle$ 态. 由于所采用的基频与倍频脉冲都为红外光, 其频率不能激发 HF 分子从初始的基电子态跃迁至临近的激发电子态, 因此我们的模型只考虑基电子态, 其势能由 Morse 方程来描述

$$\hat{V}(r) = D_e[e^{-2\beta_e(r-r_e)} - 2e^{-\beta_e(r-r_e)}], \quad (1)$$

上式中, r 为分子核间距, 解离能 $D_e = 0.225009$ Hartree, 分子平衡核间距 $r_e = 1.732516$ Bohr, Morse 参数 $\beta_e = 1.174014$ Bohr⁻¹^[25]. 基电子态的永久偶极矩方程为

$$\mu(r) = \mu_0 r e^{-qr^4}, \quad (2)$$

上式中, 参数 $\mu_0 = 0.454141e$ (e 为单位电荷电量), $q = 0.0064$ Bohr⁻⁴^[25]. 光场与分子的相互作用可表示为

$$\hat{H}_{\text{int}} = -\mu(r) \cos(\theta) \varepsilon(t), \quad (3)$$

其中, θ 为电场轴与分子轴间夹角. 总光场 $\varepsilon(t)$ 由两束脉冲构成, 其表达式为

$$\varepsilon(t) = E_1 f_1(t) \cos[\omega(t - t_1)] + E_2 f_2(t) \cos[n\omega(t - t_2) + \phi], \quad (4)$$

上式中, E_1 与 E_2 为两束脉冲的振幅, t_1 与 t_2 为脉冲的开始时间, ϕ 为脉冲间的相对相位角, ω 与 $n\omega$ 分别为基频与倍频脉冲的频率, 其中 n 为整数. 脉冲的形状由包络 $f_i(t)$ 描述

$$f_i(t) = \sin^2[\pi(t - t_i)/\tau_i], \quad i = 1, 2, \quad (5)$$

上式中, τ_i 为脉冲的持续时间. 本文中所采用的脉冲为两束完全重合的脉冲, 因此两束脉冲的开始时间相同, 持续时间也相同, 即 $t_1 = t_2 = 0$, $\tau_1 = \tau_2$. 由于扩展“ladder”式跃迁由 k 光子的基频跃迁与单光子的倍频跃迁构成, 基频率 ω 的大小可由初始态与目标态间的共振频率来获得

$$\omega = \frac{Q_f - Q_i}{k + n}, \quad (6)$$

上式中, Q_i 与 Q_f 分别为初始态与目标态的本征能.

在 Born-Oppenheimer 近似下, 光场与分子相互作用的含时薛定谔方程可写为

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi(t) = [\hat{T}_r + \hat{T}_\theta + \hat{V}(r) + \hat{H}_{\text{int}}] \Psi(t), \quad (7)$$

其中

$$\hat{T}_r = -\frac{\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2}{\partial r^2}, \quad (8)$$

$$\hat{T}_\theta = -\frac{\hbar^2}{2mr^2} \frac{1}{\sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left(\sin \theta \frac{\partial}{\partial \theta} \right), \quad (9)$$

上式中, m 为分子的约化质量.

利用分裂算符法^[26,27] 求解 (7) 式, 可得到随时间演化的波函数 $\Psi(t)$. 将该波函数向基电子态各能级的振转本征函数 $|i, j\rangle$ 做投影:

$$P_{\nu, j} = |\langle \nu, j | \Psi(t) \rangle|^2, \quad (10)$$

即可得到各振转态的含时布居分布. 振转本征函数 $|i, j\rangle$ 为勒让德多项式 $P_j(\cos \theta)$ 与振动态本征函数 $\phi_{\nu, j}(R)$ 的直积, 其中 $\phi_{\nu, j}(R)$ 可由FGH方法^[28]求解一维定态薛定谔方程来获得.

3 结果与讨论

我们首先采用频率为 ω 与 2ω 的两束脉冲, 控制分子布居由初始态 $|0, 0\rangle$ 跃迁至目标态 $|5, 2\rangle$, 其跃迁路径如下:

$$|0, 0\rangle \xrightarrow{\omega} |1, 1\rangle \xrightarrow{\omega} \left\{ \begin{array}{l} |2, 0\rangle \xrightarrow{\omega} |3, 1\rangle \\ |2, 2\rangle \xrightarrow{\omega} \left\{ \begin{array}{l} |3, 1\rangle \\ |3, 3\rangle \end{array} \right\} \end{array} \right\} \xrightarrow{2\omega} |5, 2\rangle, \quad (11)$$

$$|0, 0\rangle \xrightarrow{2\omega} |2, 1\rangle \xrightarrow{\omega} \left\{ \begin{array}{l} |3, 0\rangle \xrightarrow{\omega} |4, 1\rangle \\ |3, 2\rangle \xrightarrow{\omega} \left\{ \begin{array}{l} |4, 1\rangle \\ |4, 3\rangle \end{array} \right\} \end{array} \right\} \xrightarrow{\omega} |5, 2\rangle. \quad (12)$$

从(11)式与(12)式可以看出, 布居转移过程是通过基频脉冲激发的三光子跃迁与倍频脉冲激发的单光子泛频跃迁来完成的, 即(3+1)“ladder”式跃迁.

图2为两束频率为 ω 与 2ω 脉冲构成的总电场. 其中, 两束脉冲的持续时间为 5.32 ps, 脉冲的振幅分别为 197.44 与 125.52 MV/cm. 由(6)式可以得到基频 $\omega = 3637.51 \text{ cm}^{-1}$. 从图2中可以看出, 总电场的对称性以及振幅随两束脉冲间的相位角变化而变化. 当相位角为 $\phi = 0$ 时, 总电场为不对称场, 其正方向振幅为 323 MV/cm, 负方向振幅为 -164 MV/cm, 两方向振幅的平均值为 243.5 MV/cm; 当 $\phi = \pi/2$ 时, 总电场为对称场, 其振幅为 280 MV/cm, 大于 $\phi = 0$ 时振幅的平均值; 当 $\phi = \pi$ 时, 总电场为不对称场, 其正方向与负方向的振幅与 $\phi = 0$ 时的振幅大小刚好相反; 当 $\phi = 3\pi/2$ 时, 总电场又变为对称场, 其振幅与 $\phi = \pi/2$ 时的振幅大小相同. 从图2可以看出, 如不考虑总电场的方向性, 总电场振幅随相对相位角变化呈现出以 π 为周期的变化规律.

图3(a)与图3(b)为初始态与目标态布居的含时变化过程. 如图所示, 初始态布居随时间增加而减小, 目标态布居随时间增加而增加. 当两脉冲间相位角为0时, 跃迁至目标态的最终布居达

到0.989; 当相位角为 $\pi/2$ 时, 目标态的最终布居为0.910, 初始态的布居为0.046. 从(11)式与(12)式可以看出, 布居从初始态跃迁至目标态的过程中, 经历了多个中间态. 同时, 由于基电子态内部振转态能级间隔较密, 两束脉冲还能激发其他跃迁, 使少量布居转移至其他背景态. 受中间态与背景态的影响, 使得初始态与目标态布居变化曲线出现大幅的振荡. 图3(c)为布居分布与相位角 ϕ 的变化关系. 当相位角为 0.88π 和 1.88π 时, 目标态布居达到最大值; 当相位角为 0.43π 和 1.43π 时, 目标态布居为最小值. 分子的布居分布随相位角变化呈现出以 π 为周期的变化规律, 这一规律与总电场的振幅变化规律相同. 图3(c)中, 除了初始态与目标态外, 还有少量布居跃迁到背景态 $|0, 1\rangle$.

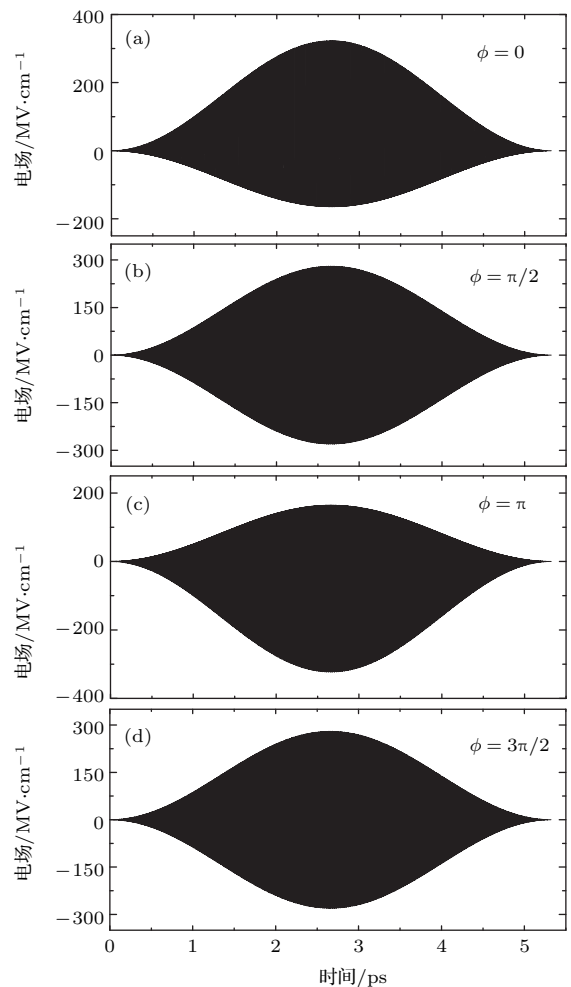


图2 初始态与目标态分别为 $|0, 0\rangle$ 与 $|5, 2\rangle$ 时, 基频脉冲与2倍频脉冲构成的总电场

Fig. 2. The total electric field of the fundamental and second-harmonic pulses for the initial state $|0, 0\rangle$ and the target state $|5, 2\rangle$.

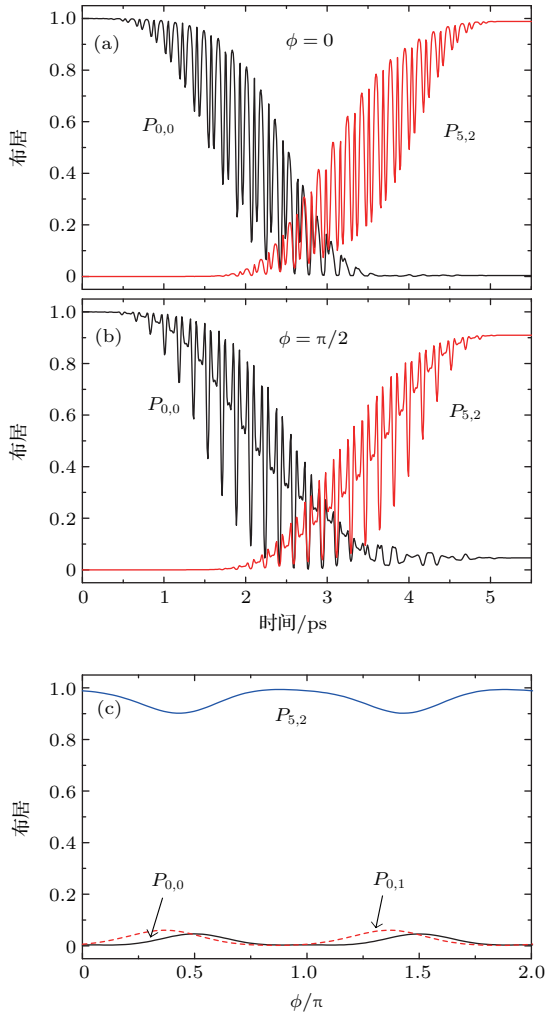


图3 (网刊彩色) 初始态与目标态分别为 $|0,0\rangle$ 与 $|5,2\rangle$ 时, 基频脉冲与 2 倍频脉冲控制下的布居分布 (a) 与 (b) 含时布居分布; (c) 布居分布与相对相位角变化关系

Fig. 3. (color online) The population distributions controlled by the fundamental and second-harmonic pulses for the initial state $|0,0\rangle$ and the target state $|5,2\rangle$: (a) and (b) Time-dependent populations; (c) the population distributions versus the relative phase.

图4为两束脉冲频率为 ω 与 2ω 时, 布居从 $|0,0\rangle$ 跃迁至 $|5,0\rangle$ 过程中的布居分布. 所选取的脉冲参数分别为: $\tau = 4.11$ ps, $E_1 = 184.58$ MV/cm, $E_2 = 182.81$ MV/cm, $\omega = 3615.91$ cm^{-1} . 其跃迁路径为

$$|0,0\rangle \xrightarrow{\omega} |1,1\rangle \xrightarrow{\omega} \left\{ \begin{array}{l} |2,0\rangle \xrightarrow{\omega} |3,1\rangle \\ |2,2\rangle \xrightarrow{\omega} |3,1\rangle \end{array} \right\} \xrightarrow{2\omega} |5,0\rangle, \quad (13)$$

$$|0,0\rangle \xrightarrow{2\omega} |2,1\rangle \xrightarrow{\omega} \left\{ \begin{array}{l} |3,0\rangle \xrightarrow{\omega} |4,1\rangle \\ |3,2\rangle \xrightarrow{\omega} |4,1\rangle \end{array} \right\} \xrightarrow{\omega} |5,0\rangle. \quad (14)$$

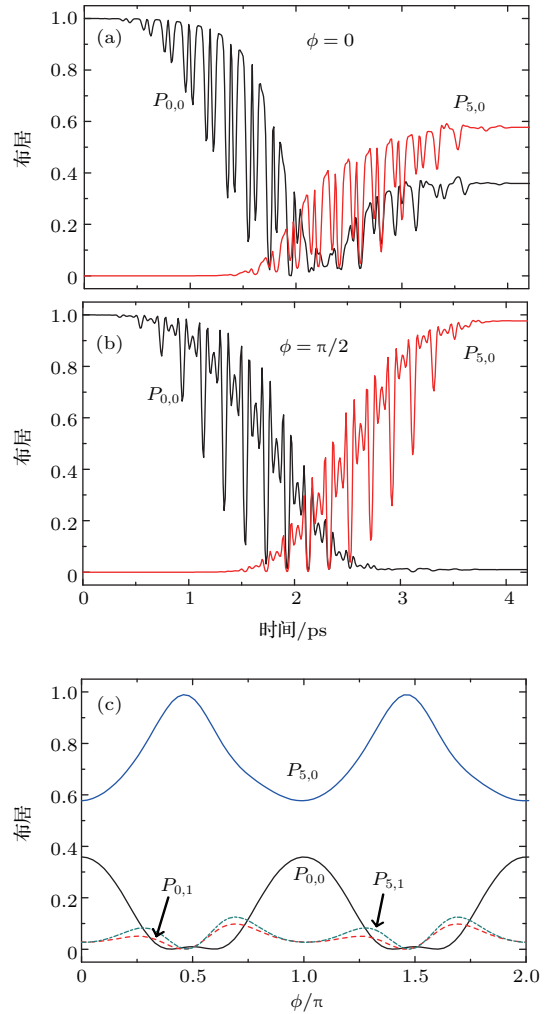


图4 (网刊彩色) 初始态与目标态分别为 $|0,0\rangle$ 与 $|5,0\rangle$ 时, 基频脉冲与 2 倍频脉冲控制下的布居分布 (a) 与 (b) 含时布居分布; (c) 布居分布与相对相位角变化关系

Fig. 4. (color online) The population distributions controlled by the fundamental and second-harmonic pulses for the initial state $|0,0\rangle$ and the target state $|5,0\rangle$: (a) and (b) Time-dependent populations; (c) the population distributions versus the relative phase.

图4(a)与图4(b)中, 当相位角为0与 $\pi/2$ 时, 目标态的最终布居分别为0.577与0.977. 与图3(a)不同, 当相位角为0时, 图4(a)中的初始态布居先减小后增加. 表明部分已经转移的布居又重新跃迁到初始态, 从而使目标态最终布居减小. 因此, 图4(c)中的目标态最大布居并没有出现在 $\phi = 0.88\pi$ 附近, 而是出现在 $\phi = 0.46\pi$. 随着相位角的变化, 布居分布曲线以 π 为周期变化. 与图3相比, 图4所选取的脉冲振幅较大, 持续时间较短. 这会导致布居转移过程中, 其他跃迁概率增加. 从图4(c)中可以看到, 有少量布居跃迁至背景态 $|0,1\rangle$, 其最大值高于图3(c), 而且还有少量布居

转移至背景态 $|5, 1\rangle$. 背景态转移概率的增加, 导致图 4(c) 中目标态布居 $P_{5,0}$ 与初始态布居 $P_{0,0}$ 变化幅度增加.

我们采用频率比为 1 : 3 的两束脉冲, 控制布居从初始态 $|0, 0\rangle$ 跃迁至目标态 $|5, 3\rangle$. 此布居转移过程主要通过双光子跃迁与单光子泛频跃迁来完成, 即 (2+1) “ladder” 式跃迁, 其跃迁路径为

$$|0, 0\rangle \xrightarrow{\omega} |1, 1\rangle \xrightarrow{\omega} |2, 2\rangle \xrightarrow{3\omega} |5, 3\rangle, \quad (15)$$

$$|0, 0\rangle \xrightarrow{3\omega} |3, 1\rangle \xrightarrow{\omega} |4, 2\rangle \xrightarrow{\omega} |5, 3\rangle. \quad (16)$$

光场的各参数为: $\tau = 5.81$ ps, $E_1 = 202.58$ MV/cm, $E_2 = 216.23$ MV/cm, $\omega = 3658.44$ cm⁻¹. 两束脉冲构成的总电场如图 5 所示. 从图 5 可以看出, 基频与 3 倍频脉冲形成的电场, 其正方向与负方向振幅始终保持对称, 与相位角的大小无关. 当相位角为 0, $\pi/2$, π , $3\pi/2$ 时, 总电场的振幅分别为 418.83, 402.43, 329.10, 402.43 MV/cm. 表明总电场振幅

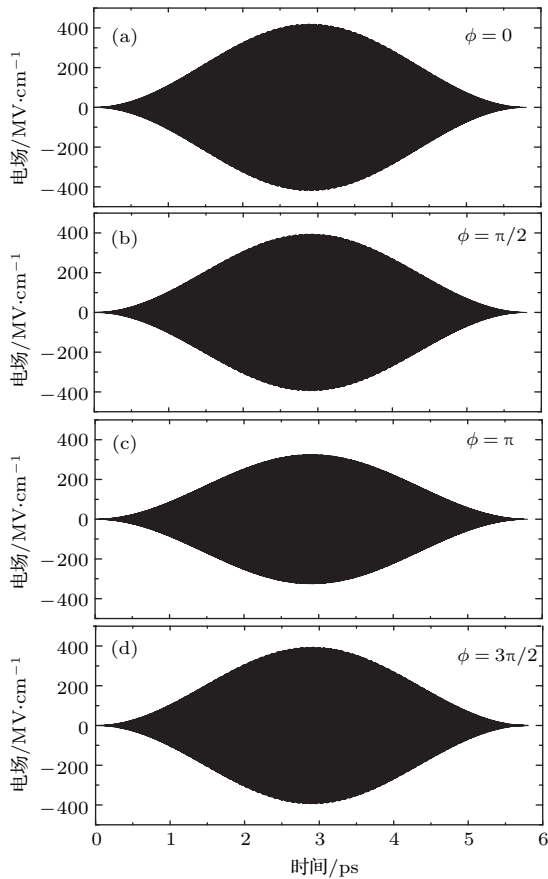


图 5 初始态与目标态分别为 $|0, 0\rangle$ 与 $|5, 3\rangle$ 时, 基频脉冲与 3 倍频脉冲构成的总电场

Fig. 5. The total electric field of the fundamental and third-harmonic pulses for the initial state $|0, 0\rangle$ and the target state $|5, 3\rangle$.

随相位角变化呈现出以 2π 为周期的变化规律.

图 6(a) 为布居从 $|0, 0\rangle$ 态跃迁至 $|5, 3\rangle$ 态的变化过程. 与频率比为 1 : 2 的脉冲相比, 基频与 3 倍频脉冲激发的布居跃迁, 其初始态与目标态布居曲线振荡幅度较小. 表明布居转移过程中, 脉冲激发其他跃迁的概率较小. 当脉冲结束时, 目标态的布居为 0.996. 图 6(b) 中, 初始态与目标态布居以 2π 为周期随相位角变化, 其规律与总电场振幅变化规律相同. 除初始态与目标态外, 布居并没有跃迁到其他背景态. 图 3(c) 中, 当相位角为 0 与 $\pi/2$ 时, 目标态布居分别接近最大值与最小值, 其对应的总电场振幅分别为 243.5 与 280 MV/cm; 图 6(b) 中, $\phi = 0$ 与 $\phi = \pi$ 分别对应目标态布居的最大值与最小值, 其对应的总电场振幅分别为 418.83 与 329.10 MV/cm. 比较两图可以看出, 由于总电场振幅变化较大, 导致图 6(b) 中目标态布居变化范围也较大.

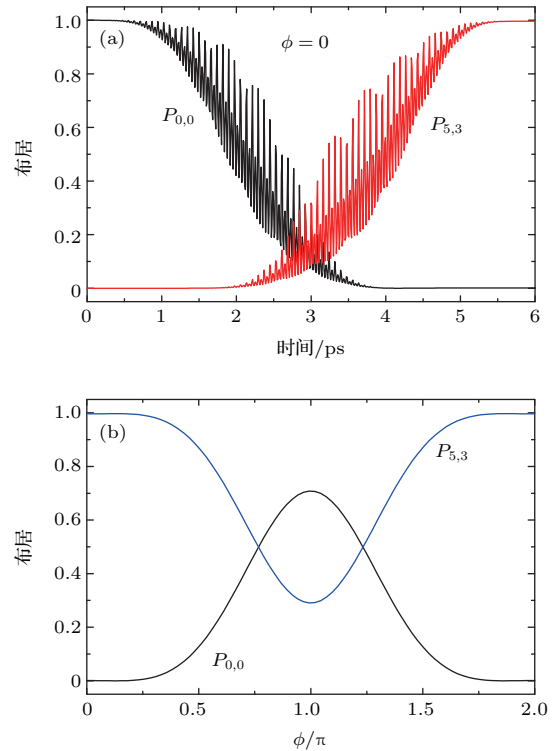


图 6 初始态与目标态分别为 $|0, 0\rangle$ 与 $|5, 3\rangle$ 时, 基频脉冲与 3 倍频脉冲控制下的布居分布 (a) 含时布居分布; (b) 布居分布与相对相位角变化关系

Fig. 6. The population distributions controlled by the fundamental and third-harmonic pulses for the initial state $|0, 0\rangle$ and the target state $|5, 3\rangle$: (a) Time-dependent populations; (b) the population distributions versus the relative phase.

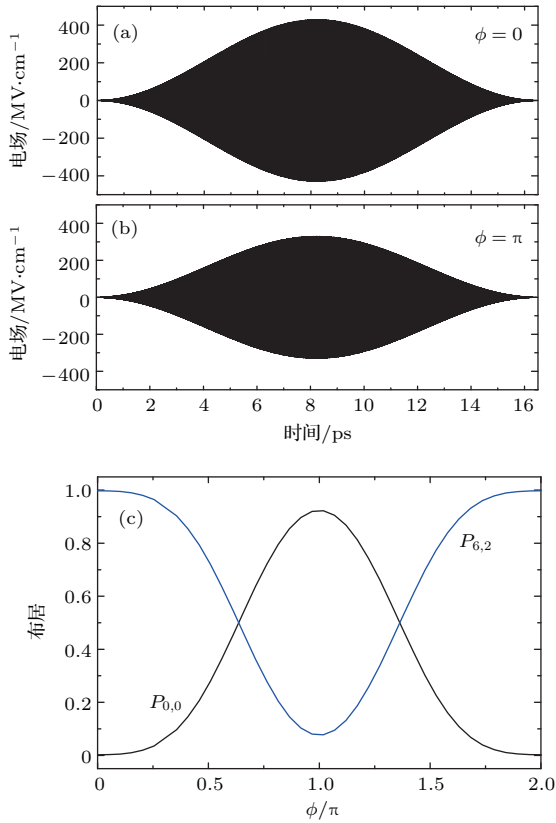


图7 (网刊彩色) 初始态与目标态分别为 $|0,0\rangle$ 与 $|6,2\rangle$ 时, 基频脉冲与3倍频脉冲控制下的布居分布 (a) 与 (b) 总电场; (c) 布居分布与相对相位角变化关系

Fig. 7. (color online) The population distributions controlled by the fundamental and third-harmonic pulses for the initial state $|0,0\rangle$ and the target state $|6,2\rangle$: (a) and (b) The total electric field; (c) the population distributions versus the relative phase.

我们采用频率比为1 : 3的两束脉冲, 通过(3+1) “ladder” 式跃迁, 控制布居从初始态 $|0,0\rangle$ 跃迁至目标态 $|6,2\rangle$, 其跃迁路径为

$$|0,0\rangle \xrightarrow{\omega} |1,1\rangle \xrightarrow{\omega} \left\{ \begin{array}{l} |2,0\rangle \xrightarrow{\omega} |3,1\rangle \\ |2,2\rangle \xrightarrow{\omega} \left\{ \begin{array}{l} |3,1\rangle \\ |3,3\rangle \end{array} \right\} \end{array} \right\} \xrightarrow{3\omega} |6,2\rangle, \quad (17)$$

$$|0,0\rangle \xrightarrow{3\omega} |3,1\rangle \xrightarrow{\omega} \left\{ \begin{array}{l} |4,0\rangle \xrightarrow{\omega} |5,1\rangle \\ |4,2\rangle \xrightarrow{\omega} \left\{ \begin{array}{l} |5,1\rangle \\ |5,3\rangle \end{array} \right\} \end{array} \right\} \xrightarrow{\omega} |6,2\rangle. \quad (18)$$

所选择的光场参数为: $\tau = 16.45$ ps, $E_1 = 218.00$ MV/cm, $E_2 = 211.09$ MV/cm, $\omega = 3546.12$ cm⁻¹. 从光场参数可以看出, 由于目标态振动能级增加, 所需光场的持续时间也明显增

加. 图7(c)中, 分子布居以 2π 为周期随相位角变化, 没有布居跃迁至背景态. 当 $\phi = 0$ 时, 目标态布居达到最大值 0.998, 其所对应的总电场振幅为 429.11 MV/cm; 当 $\phi = \pi$ 时, 目标态布居为最小值 0.076, 其所对应的总电场振幅为 329.10 MV/cm. 与图6(b)相比, 由于总电场振幅变化较大, 图7(c)中目标态与初始态布居变化也较大.

4 结 论

我们分别采用频率比为1 : 2与1 : 3的两束脉冲, 通过(2+1)与(3+1) “ladder” 式跃迁, 控制HF分子布居从初始态 $|0,0\rangle$ 转移到不同的目标态. 计算结果表明, 利用两束基频与倍频脉冲可以控制近100%的布居跃迁至目标态. 频率比为1 : 2的两束脉冲, 其总电场振幅以 π 为周期随两脉冲间的相位角变化, 从而导致分子的布居也呈现出以 π 为周期的变化规律; 频率比为1 : 3的两束脉冲, 其总电场振幅与布居以 2π 为周期随相位角变化. 总电场振幅变化越大, 其对应的布居随相位角变化也越大. 基频与2倍频脉冲激发的 “ladder” 式跃迁过程中, 有少部分布居跃迁至背景态. 基频与3倍频脉冲激发的跃迁受背景态影响较小. 在我们的计算中, 初始态在光场开始前布居为100%, 这一条件在实验中很难达到. 同时, 在光场作用过程中, 少部分已经激发到高能级的分子, 会通过自发辐射, 跃迁回较低的能级. 因此, 在实验中很难实现100%的布居跃迁. 但我们的方法以及计算得到的光场参数对实验中控制分子布居转移以及提高布居跃迁概率具有参考价值.

参考文献

- [1] Bergmann K, Theuer H, Shore B W 1998 *Rev. Mod. Phys.* **70** 1003
- [2] Shapiro E A, Pe'er A, Ye J, Shapiro M 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 023601
- [3] Hu J, Han K L, He G Z 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 123001
- [4] Luo S, Zhu R, He L, Hu W, Li X, Ma P, Wang C, Liu F, Roeterdink W G, Stolte S, Ding D 2015 *Phys. Rev. A* **91** 053408
- [5] Liu F, Wang J, Zhao J, Xu Y, Meng Q T 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 040202 (in Chinese) [刘芳, 王军, 赵娟, 许燕, 孟庆田 2011 物理学报 **60** 040202]
- [6] Takekoshi T, Reichsöllner L, Schindewolf A, Hutson J M, Sueur C R L, Dulieu O, Ferlaino F, Grimm R, Nägerl H C 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 205301

- [7] Vitanov N V, Shore B W 2006 *Phys. Rev. A* **73** 053402
- [8] Niu Y Y, Wang R, Qiu M H 2010 *Phys. Rev. A* **81** 043406
- [9] Castro A, Werschnik J, Gross E K U 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 153603
- [10] Shi S H, Woody A, Rabitz H 1988 *J. Chem. Phys.* **88** 6870
- [11] Hornung T, Motzkus M, de Vivie-Riedle R 2002 *Phys. Rev. A* **65** 021403(R)
- [12] Brumer P, Shapiro M 1986 *Chem. Phys. Lett.* **126** 541
- [13] Shapiro M, Hepburn J W, Brumer P 1988 *Chem. Phys. Lett.* **149** 451
- [14] 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]
- [15] Wang R, Xiu J L, Niu Y Y 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 093301 (in Chinese) [王荣, 修俊玲, 牛英煜 2013 物理学报 **62** 093301]
- [16] Charron E, Giusti-Suzor A, Mies F H 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 692
- [17] Bandrauk A D, Chelkowski S 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 3562
- [18] Ohmura H, Nakanaga T, Tachiya M 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 113002
- [19] Yatsenko L P, Guérin S, Halfmann T, Böhmer K, Shore B W, Bergmann K 1998 *Phys. Rev. A* **58** 4683
- [20] Marx C A, Jakubetz W 2006 *J. Chem. Phys.* **125** 234103
- [21] Böhmer K, Halfmann T, Yatsenko L P, Shore B W, Bergmann K 2001 *Phys. Rev. A* **64** 023404
- [22] Niu Y Y, Wang R, Qiu M H 2011 *Phys. Rev. A* **84** 023406
- [23] Remacle F, Levine R D 2006 *Phys. Rev. A* **73** 033820
- [24] Shu C C, Yu J, Yuan K J, Hu W H, Yang J, Cong S L 2009 *Phys. Rev. A* **79** 023418
- [25] Andrianov I V, Paramonov G K 1999 *Phys. Rev. A* **59** 2134
- [26] Feit M D, Fleck Jr J A, Steiger A 1982 *J. Comput. Phys.* **47** 412
- [27] Han Y C, Yuan K J, Hu W H, Yan T M, Cong S L 2008 *J. Chem. Phys.* **128** 134303
- [28] Marston C C, Balint-Kurti G G 1989 *J. Chem. Phys.* **91** 3571

The extended “ladder” transition controlled by two harmonic pulses*

Niu Ying-Yu[†] Wang Rong Qiu Ming-Hui Xiu Jun-Ling

(School of Science, Dalian Jiaotong University, Dalian 116028, China)

(Received 6 August 2016; revised manuscript received 8 September 2016)

Abstract

The extended “ladder” transition controlled by two harmonic pulses is investigated by using a time-dependent quantum wave packet method. The molecular population transfers from the state $|0,0\rangle$ to the states $|5,0\rangle$ and $|5,2\rangle$ induced by the fundamental and second-harmonic pulses, and to the states $|5,3\rangle$ and $|6,2\rangle$ induced by the fundamental and third-harmonic pulses. The calculated results show that the two harmonic pulses can induce a nearly 100% of population to transfer to the target state. The relative phase of two pulses can affect the population distribution. The variation of population has a period of π for the fundamental and second-harmonic pulses, and a period of 2π for the fundamental and third-harmonic pulses.

Keywords: “ladder” transition, wave packet, relative phase, fundamental pulse

PACS: 33.20.Vq, 42.50.Hz

DOI: [10.7498/aps.65.233301](https://doi.org/10.7498/aps.65.233301)

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11347012).

[†] Corresponding author. E-mail: niuyy@djtu.edu.cn