

外场作用下 BaF 分子发射光子累积量及等待时间分布的研究

古丽姗 彭勇刚

Cumulants and waitingtime distribution of the photon emission from driven BaF molecule

Gu Li-Shan Peng Yong-Gang

引用信息 Citation: [Acta Physica Sinica](#), 65, 094202 (2016) DOI: 10.7498/aps.65.094202

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.094202>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2016/V65/I9>

---

## 您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

激光线宽对单次通过 PPMgO:LN 晶体倍频效率的影响

Influence of laser linewidth on the conversion efficiency of single-pass frequency doubling with a PPMgO: LN crystal

物理学报.2016, 65(7): 074207 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.074207>

双光子失谐对慢光和光存储影响的实验研究

Experimental study of the effects of two-photon detuning on slow light and light memory

物理学报.2016, 65(1): 014205 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.014205>

基于压缩光的量子精密测量

Quantum precision measurement based on squeezed light

物理学报.2015, 64(23): 234210 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.234210>

基于量子相干控制吸收的准 $\Lambda$ 型四能级原子局域化研究

Study on atomic localization of  $\Lambda$ -type quasi-four level atoms based on absorption with quantum coherent control

物理学报.2015, 64(13): 134204 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.134204>

量子相空间分布函数与压缩相干态表示间的变换关系

Transform relations between squeezed coherent state representation and quantum phase space distribution functions

物理学报.2015, 64(2): 024207 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.024207>

# 外场作用下BaF分子发射光子累积量及等待时间分布的研究\*

古丽姗<sup>1)†</sup> 彭勇刚<sup>2)</sup>

1)(昌吉学院物理系, 昌吉 831100)

2)(山东大学物理学院, 济南 250100)

(2015年10月15日收到; 2016年1月24日收到修改稿)

利用产生函数方法对BaF分子在激光场与射频场作用下发射光子的累积量及等待时间分布进行了研究。累积量 $\kappa_1$ 和 $\kappa_2$ 表明在固有偶极和射频场的作用下, 系统表现出外场辅助吸收的现象, 即当 $\Delta_1 = n\omega_{\text{rf}}$ 时, 系统存在吸收峰。二阶、三阶等待时间分布呈现出明显的振荡现象。

**关键词:** 产生函数, 累积量, 等待时间分布

**PACS:** 42.50.Ar, 33.50.-j

**DOI:** 10.7498/aps.65.094202

## 1 引言

经过多年的发展, 单分子光谱已经成为物理、化学及材料科学的一种重要研究手段<sup>[1–13]</sup>。单光子和纠缠双光子源在量子信息和量子计算中具有重要的地位, 单分子体系作为一种可能实现高效单光子和双光子源的体系受到广泛关注与研究<sup>[14–16]</sup>。近年来, Zheng 和 Brown 将产生函数引入到单分子体系, 用于单分子体系在外场作用下的光子计数统计过程的研究<sup>[14–25]</sup>, 产生函数方法对离散事件的计数统计非常方便, 并且能直接得到计数统计的各阶矩, 并且能同时用于研究分子体系发射光子的经典和量子特性(聚束现象和非聚束现象)<sup>[17–25]</sup>。BaF分子通常被用于研究分子的时空对称性的一些奇异效应, 如时空反演对称性破缺, 以及由此导致的超出标准模型的“新物理”<sup>[26–29]</sup>。BaF分子电子对称性破缺导致其具有固有偶极矩, 利用分子的固有偶极矩可以实现外场对分子的调控<sup>[27]</sup>, 关于 BaF 分子的光子统计特性的相关研究

尚未见报道。利用外加射频场与分子固有偶极矩的相互作用, 可以实现可控光子源, 利用外加脉冲射频场的精确调控, 可以得到高质量、高效率的单分子单光子源<sup>[30–34]</sup>。分子发射光子的累计量可以用来反映单分子体系发射光子的质量, 如单分子体系发射光子的一阶累积量反映平均发射光子数, 二阶累积量则反映出发射光子的方差信息, 如果其方差大于所发射光子数则说明系统具有热光源的特性, 如果小于发射光子数则说明系统具有比较好的量子特性, 可以用作量子光源。即 $\kappa_1 = \mu_1$ ,  $\kappa_2 = \mu_2 - \mu_1^2 = \sigma^2$ 等<sup>[32–34]</sup>。分子体系等待时间分布提供了分子体系在发射一个光子后, 再次探测到光子发射需要等待时间的分布情况, 而高阶等待时间分布 $w_n$ 则提供了再次探测到第 $n$ 个光子的等待时间分布的情况。这为我们细致地了解分子体系发射光子的情况提供了更多的信息<sup>[35–37]</sup>。

本文利用产生函数方法讨论具有固有偶极矩的BaF分子在脉冲激光场和脉冲射频场作用下的发射光子的累积量及等待时间分布。累积量 $\kappa_1$ 和 $\kappa_2$ 表明在固有偶极和射频场的作用下, BaF

\* 新疆维吾尔自治区高校科研计划科学研究重点项目(批准号: XJEDU2011I53)、国家自然科学基金(批准号: 11404189)、山东省自然科学基金(批准号: ZR2013AQ020)和教育部博士点基金(批准号: 20130131120006)资助的课题。

† 通信作者。E-mail: shanshan7900@163.com

分子系统表现出射频场辅助光子吸收现象, 即当  $\Delta_1 = n\omega_{\text{rf}}$  时, 系统存在吸收峰, 说明分子会被一个激光光子和吸收  $n$  个射频场光子共同激发, 使其由低能态跃迁到高能态。二阶、三阶等待时间分布呈现出明显的振荡现象, 即探测到第二个和第三个光子的概率分布随时间发生振荡, 该现象反映了分子在射频场作用下的振荡行为。

## 2 基本理论

考虑 BaF 分子在激光场和射频场作用下的行为。BaF 分子的三个电子态电子态  $X^2\Sigma^+(0, 0)$ ,  $A^2\Pi_{1/2}$  和  $A^2\Pi_{3/2}$  构成一个 V 形三能级体系。其基态  $|1\rangle = X^2\Sigma^+(0, 0)$ , 两个近简并基态  $|2\rangle = A^2\Pi_{1/2}$  和  $|3\rangle = A^2\Pi_{3/2}$ <sup>[17–20]</sup>, 基态  $|1\rangle$  与激发态  $|2\rangle$  和  $|3\rangle$  之间存在偶极跃迁, 其相应的跃迁偶极矩为  $\mu_{12}$ ,  $\mu_{13}$ 。两激发态  $|2\rangle$  和  $|3\rangle$  之间不存在偶极跃迁, 即  $\mu_{23} = 0$ 。实验表明, 基态  $|1\rangle$  与激发态  $|2\rangle$  和  $|3\rangle$  都存在固有偶极矩, 设其对应的固有偶极矩分别为  $\mu_{11}$ ,  $\mu_{22}$  和  $\mu_{33}$ 。

BaF 分子与外场相互作用系统的哈密顿量可以表示为

$$H = H_0 + H_1,$$

其中  $H_0$  表示自由 BaF 分子的哈密顿量,  $H_1$  表示 BaF 分子与外场的相互作用。 $H_0$  可以表示为

$$H_0 = \sum_n \hbar\omega_n |n\rangle\langle n|,$$

其中  $\omega_n$  是 BaF 分子的本征角频率,  $|n\rangle$  为基本征态, 这里  $|n\rangle = |1\rangle|2\rangle$  和  $|3\rangle$ 。 $H_1$  可以表示为

$$H_1 = -\mu \cdot E(t).$$

外加激光场可以表示为

$$E_j(t) = \varepsilon_j \cos(\omega_j t) f_j(t - t_j),$$

其中  $\varepsilon_j$  表示外加场的电场振幅;  $\omega_j$  表示外加场的角频率;  $f_j(t)$  是外加场的波包;  $t_j$  表示波包的中心位置,  $j = \text{pump}, \text{probe}$  表示抽运场和探测场。

外加射频场可以表示为

$$E_{\text{rf}} = \varepsilon_{\text{rf}} \cos(\omega_{\text{rf}} t),$$

其中  $\varepsilon_{\text{rf}}$  是其电场振幅,  $\omega_{\text{rf}}$  是其角频率。

最后, BaF 分子与外场的相互作用可以表示为

$$H_1(t) = -\mu_{12} \cdot \varepsilon_{\text{probe}} \cos(\omega_{\text{probe}} t + \Delta\varphi)$$

$$\begin{aligned} &\times f_{\text{probe}}(t - t_{\text{probe}})(|1\rangle\langle 2| + |2\rangle\langle 1|) \\ &- \mu_{13} \cdot \varepsilon_{\text{pump}} \cos(\omega_{\text{pump}} t) \\ &\times f_{\text{pump}}(t - t_{\text{pump}})(|1\rangle\langle 3| + |3\rangle\langle 1|) \\ &- \sum_n \mu_{nn} \cdot \varepsilon_{\text{rf}} \cos(\omega_{\text{rf}} t) |n\rangle\langle n|, \end{aligned}$$

其中  $\Delta\varphi$  为抽运场与探测场之间的相位差。

我们采用密度矩阵描述体系的状态, 其满足量子力学方程:

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho(t) = -\frac{i}{\hbar} [H, \rho(t)] + D\rho(t),$$

其中  $D\rho(t)$  表示系统的衰减。系统的衰减项分为自发辐射与非自发辐射两部分。然后将密度矩阵的解按照辐射部分的幂指数展开有  $\rho(t) = \sum_n \rho^{(n)}$ , 其中  $\rho^{(n)}$  表示含有辐射部分  $n$  次幂对应的密度矩阵部分, 对应于系统发射  $n$  个光子后的密度矩阵。定义产生函数<sup>[17–19]</sup>:  $G(s, t) = \sum \rho^{(n)}(t)s^n$ , 则产生函数满足如下演化方程:

$$\begin{aligned} \dot{G}_{11} &= -\frac{i}{2}\Omega_{12}(G_{12} - G_{21}) - \frac{i}{z}\Omega_{13}(G_{13} - G_{31}) \\ &+ 2r_2 s G_{22} + 2r_{23}(G_{23} + G_{32}) + 2r_3 G_{33}, \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \dot{G}_{22} &= -\frac{i}{2}\Omega_{12}(G_{12} - G_{21}) - 2r_2 G_{22} \\ &- r_{23}(G_{23} + G_{32}), \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \dot{G}_{33} &= -\frac{i}{2}\Omega_{13}(G_{13} - G_{31}) - 2r_3 G_{33} \\ &- r_{23}(G_{23} + G_{32}), \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \dot{G}_{12} &= -i\Delta_1 G_{12} - i\delta_{12}\omega_{\text{rf}} \cos(\omega_{\text{rf}} t) G_{12} \\ &- \frac{i}{z}\Omega_{12}(G_{22} - G_{11}) - \frac{i}{2}\Omega_{13} G_{32} \\ &- r_2 G_{12} - r_{23} G_{13}, \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \dot{G}_{13} &= -i\Delta_2 G_{13} - i\delta_{13}\omega_{\text{rf}} \cos(\omega_{\text{rf}} t) G_{13} \\ &- \frac{i}{z}\Omega_{13}(G_{33} - G_{11}) - \frac{i}{2}\Omega_{12} G_{23} \\ &- r_{23} G_{12} - r_3 G_{13}, \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \dot{G}_{23} &= -i(\Delta_1 - \Delta_2) G_{23} - i\delta_{23}\omega_{\text{rf}} \cos(\omega_{\text{rf}} t) G_{23} \\ &- \frac{i}{2}\Omega_{12} G_{13} + \frac{i}{z}\Omega_{13} G_{21} - (r_2 + r_3) G_{23} \\ &- r_{23}(G_{33} + G_{22}), \end{aligned}$$

其中  $\Omega_{nm}(t)$  是拉比频率,  $\delta_{nm}$  是射频调节参数, 其表达式为

$$\begin{aligned} \Omega_{nm}(t) &= -\frac{\mu_{nm} \cdot \varepsilon_f}{t} f_j(t) \cos(\omega_j(t - t_j)), \\ \delta_{nm} &= \frac{(\mu_{nn} - \mu_{mm}) \cdot \varepsilon_f}{\hbar\omega_r f}. \end{aligned}$$

$\Delta_1, \Delta_2$  是失谐频率:

$$\Delta_1 = \omega_{\text{probe}} - \omega_{21}; \quad \Delta_2 = \omega_{\text{pump}} - \omega_{31}.$$

有效产生函数为

$$y(s, t) = \sum_{n=1}^3 G_{nn}(s, t),$$

发射光子概率为

$$P_n = \frac{1}{n!} \frac{\partial^n}{\partial s^n} y(s, t)|_{s=0},$$

等待时间分布为<sup>[32,34]</sup>

$$w_n = \frac{d}{dt} \left( 1 - \sum_{i=1}^{n-1} P_i \right),$$

发射光子的累积量为<sup>[32,33]</sup>

$$\begin{aligned} \kappa_1 &= \frac{\partial}{\partial s} y(s, t)|_{s=1}, \\ \kappa_2 &= \frac{\partial^2}{\partial s^2} y(s, t)|_{s=1} + \frac{\partial}{\partial s} y(s, t)|_{s=1} \\ &\quad - \left[ \frac{\partial}{\partial s} y(s, t)|_{s=1} \right]^2. \end{aligned}$$

### 3 结果与讨论

我们考虑一种简单的情形:  $\mu_{12} \perp \mu_{13}$ , 并且有  $\mu_{11} \perp \mu_{22} \perp \mu_{33}$ .

抽运场的偏振方向沿着  $\mu_{12}$ , 经过  $\tau_d = 2\tau_p$ , 探测场的偏振方向沿着  $\mu_{13}$  加入. 射频场的波数方向沿着  $\mu_{33}$ , 并且有射频场的偏振方向与  $\mu_{11}$  的夹角为  $\theta$ . 则有 ( $|\mu_{11}| = |\mu_{22}| = \mu_p$ )<sup>[20]</sup>,

$$\begin{aligned} \delta_{12} &= \frac{(\mu_{11} - \mu_{22}) \cdot \varepsilon_{\text{rf}}}{\hbar\omega_{\text{rf}}} \\ &= \frac{\varepsilon_{\text{rf}}}{\hbar\omega_{\text{rf}}} (\mu_{11} \cos \theta - \mu_{22} \sin \theta) \\ &= \delta (\cos \theta - \sin \theta), \\ \delta_{13} &= \frac{(\mu_{11} - \mu_{33}) \cdot \varepsilon_{\text{rf}}}{\hbar\omega_{\text{rf}}} = \frac{\varepsilon_{\text{rf}}}{\hbar\omega_{\text{rf}}} \mu_{11} \cos \theta = \delta \cos \theta, \\ \delta_{23} &= \frac{(\mu_{22} - \mu_{33}) \cdot \varepsilon_{\text{rf}}}{\hbar\omega_{\text{rf}}} = \frac{\varepsilon_{\text{rf}}}{\hbar\omega_{\text{rf}}} \mu_{22} \sin \theta = \delta \sin \theta, \end{aligned}$$

其中  $\delta = \varepsilon_{\text{rf}} \mu_p / \hbar\omega_{\text{rf}}$  是有效调节参数<sup>[26]</sup>.

在计算过程中我们采用的参数为:  $\Delta_2 = 0$ ,  $r_2 = 2.2 \times 10^7$  Hz,  $r_3 = 1.8 \times 10^7$  Hz,  $r_{23} = 0$ ,  $\Omega_{12} = \Omega_{13} = 2 \times 10^7$  Hz,  $\tau_p = 5 \times 10^{-8}$  s,  $t_0 = 1 \times 10^{-6}$  s,  $\omega_{\text{rf}} = 5 \times 10^8$  Hz,  $\omega_{32} = 5 \times 10^{10}$  Hz,  $\delta = 3.0$ .

图1给出了阶累积量和二阶累积量在  $\Delta\varphi = \pi/6$  随失谐频率的变化情况, 其中红色线条表示  $\theta = 0$ , 蓝色的线条表示  $\theta = \pi/8$ , 黑色的线条表

示  $\theta = \pi/4$ , 天蓝色的线表示  $\theta = 3\pi/8$ . 一阶累积量和二阶累积量表现出相似的行为, 在  $\Delta_1 = n\omega_{\text{rf}}$  时, 都出现了明显的吸收峰, 即分子体系的固有偶极矩和射频场的相互作用能帮助系统在失谐频率为整数个射频光子频率时吸收抽运场的光子, 即使在射频场的帮助下, BaF 分子能吸收一个激光光子和  $n$  个射频场“光子”而从其低能态跃迁到其高能态. 这里我们称为射频场辅助吸收现象. 当  $\theta$  值不同时, 这种辅助吸收现象表现出不同的行为, 如  $\theta = \pi/4$  时, 表现出一个主吸收峰现象, 而其他的吸收峰则非常不明显, 而当  $\theta = 0$  时, 则中间主峰相对比较弱, 而边峰相对比较强. 也就是说, 我们可以通过调节外加射频场的偏振方向与固有偶极矩  $\mu_{11}$  之间的夹角  $\theta$  来调控射频辅助吸收行为.

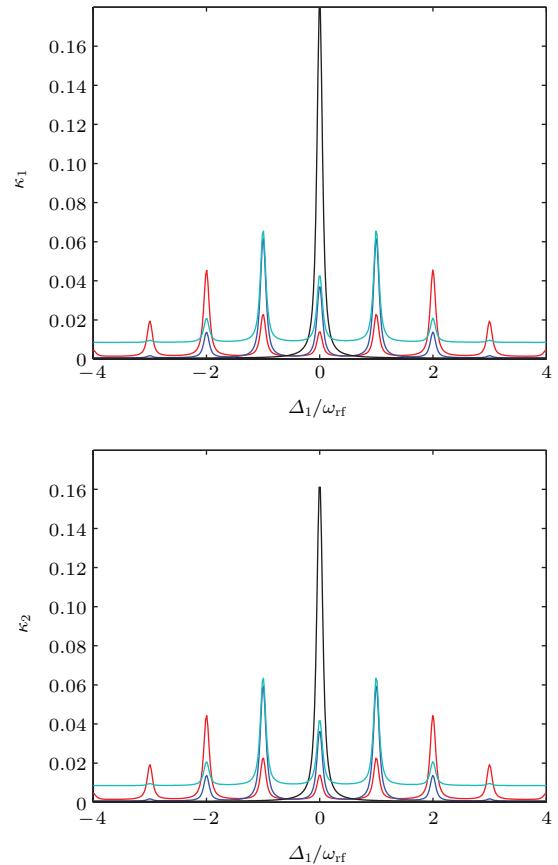


图1 (网刊彩色)一阶累积量与二阶累积量随失谐频率的变化关系 其中红色线条表示  $\theta = 0$ , 蓝色的线条表示  $\theta = \pi/8$ , 黑色的线表示  $\theta = \pi/4$ , 天蓝色的线表示  $\theta = 3\pi/8$ ; 其他参数  $\Delta\varphi = \pi/6$

Fig. 1. (color online) The first order and second order cumulants versus the detuning frequency  $\Delta_1(\omega_{\text{rf}})$  are plotted, the red lines correspond to  $\theta = 0$ , the blue lines correspond to  $\theta = \pi/8$ , the black lines correspond to  $\theta = \pi/4$ , and the cyan lines correspond to  $\theta = 3\pi/8$ . The parameter  $\Delta\varphi = \pi/6$ .

图2给出了一阶累积量与二阶累积量在 $\theta = \pi/8$ 时随失谐频率的变化情况。其中红色线条表示 $\Delta\varphi = 0$ , 蓝色线条表示 $\Delta\varphi = \pi/6$ , 黑色线条表示 $\Delta\varphi = \pi/3$ , 天蓝色的线条表示 $\Delta\varphi = \pi/2$ 。从图中可以看出, 一阶累积量和二阶累积量表现出相似的行为, 都表现出射频场辅助吸收现象。在 $\theta = \pi/8$ 时, 激光场与射频场之间的相对相位差 $\Delta\varphi$ 对辅助吸收行为影响不明显, 均为第一级边峰最强。也就是说, 这种射频场辅助吸收现象对射频场的偏振方向更为敏感, 而对激光场与射频场之间的相位差不敏感。

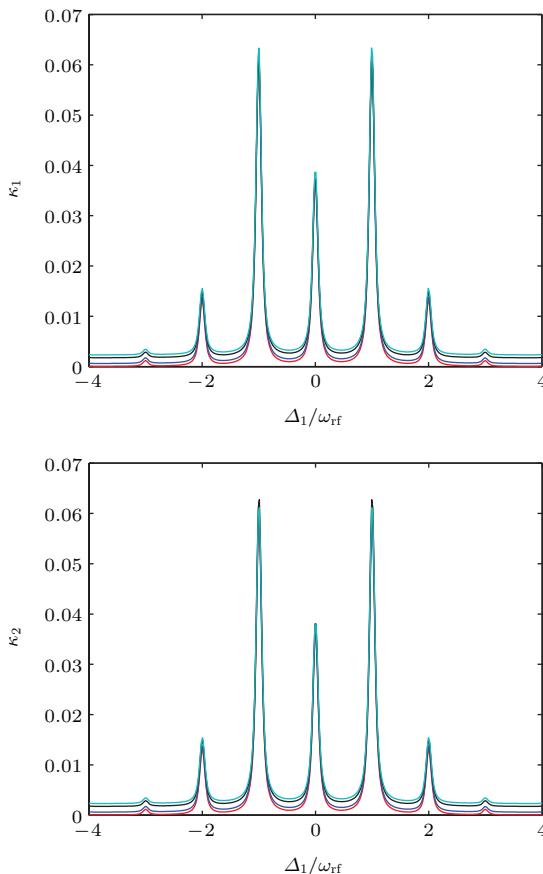


图2 (网刊彩色) 一阶累积量与二阶累积量随失谐频率的变化关系 其中 $\theta = \pi/8$ ; 红色线条表示 $\Delta\varphi = 0$ , 蓝色线条表示 $\Delta\varphi = \pi/6$ , 黑色线条表示 $\Delta\varphi = \pi/3$ , 天蓝色的线条表示 $\Delta\varphi = \pi/2$

Fig. 2. (color online) The first order and second order cumulants versus the detuning frequency  $\Delta_1(\omega_{\text{rf}})$  are plotted with  $\theta = \pi/8$ , the red lines correspond to  $\Delta\varphi = 0$ , the blue lines correspond to  $\Delta\varphi = \pi/6$ , black lines correspond to  $\Delta\varphi = \pi/3$ , and the cyan lines correspond to  $\Delta\varphi = \pi/2$ .

图3给出了一阶累积量与二阶累积量随 $\theta$ 角度的变化关系。从图中可以看出, 在 $\theta \in (0.3, 0.7)$ 和 $\theta \in (1.3, 1.7)$ 时, 系统发射光子的一阶累计量和二

阶累积量随着相对相位差 $\Delta\varphi$ 的不同而出现差异, 即可以在这个范围内通过调节激光场与射频场的相对相位差 $\Delta\varphi$ 来控制分子体系发射光子的一阶、二阶累积量。通过选取合适的相对相位差 $\Delta\varphi$ 可以实现 $\kappa_1 > \kappa_2$ ,  $\kappa_1 = \kappa_2$ 以及 $\kappa_1 < \kappa_2$ , 由累积量与Mandel Q参数的关系 $Q = (\kappa_2 - \kappa_1)/\kappa_1$ 知, 当 $\kappa_1 > \kappa_2$ 有 $Q < 0$ , 表示BaF分子发射光子呈现反聚束效应, 具有量子特性, 当 $\kappa_1 < \kappa_2$ 有 $Q > 0$ , 表示BaF分子发射光子呈现聚束效应, 具有热光源的特性。因此, 可以通过选取合适的 $\Delta\varphi$ 实现光子源由量子源到热光源的转化。

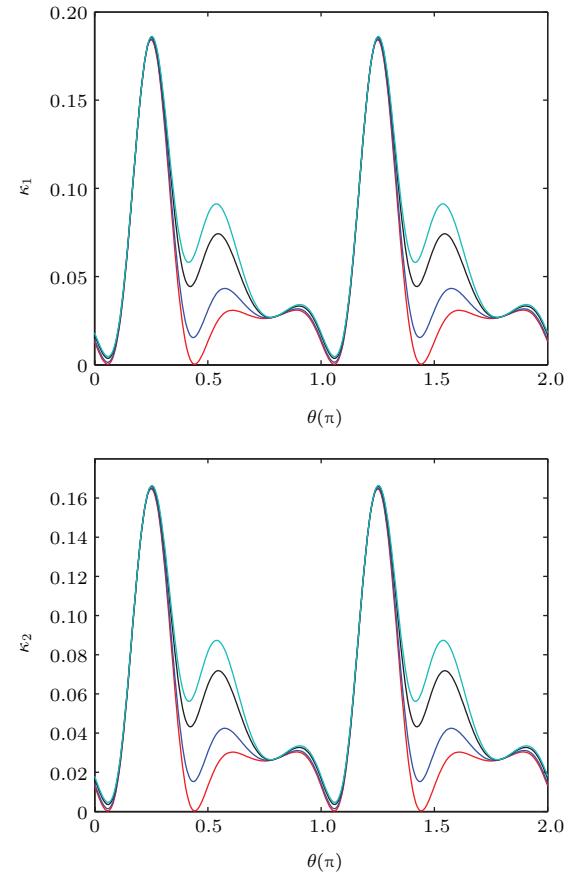


图3 (网刊彩色) 一阶累计量与二阶累计量随 $\theta$ 角度的变化关系 其中红色线条表示 $\Delta\varphi = 0$ , 蓝色线条表示行为 $\Delta\varphi = \pi/6$ , 黑色线条表示 $\Delta\varphi = \pi/3$ , 天蓝色线条表示 $\Delta\varphi = \pi/2$

Fig. 3. (color online) The first order and second order cumulants versus the anger  $\theta$ are plotted. The red Lines correspond to  $\Delta\varphi = 0$ , the blue lines correspond to  $\Delta\varphi = \pi/6$ , black lines correspond to  $\Delta\varphi = \pi/3$ , and the cyan lines correspond to  $\Delta\varphi = \pi/2$ .

图4给出了分子体系在外场作用下等待时间分布随时间的变化关系。其中蓝色表示 $w_1$ , 红色线条表示 $w_2$ , 黑色线条表示 $w_3$ , 其他参数为 $t_d = 2\tau_p$ ,  $\delta = 3.0$ ,  $\theta = \pi/4$ ,  $\Delta\varphi = 0$ 。从图中可以看出, 二阶、

三阶等待时间分布呈现出了明显的振荡现象, 这种振荡是由于分子固有偶极矩与射频场耦合而导致的分子体系出现了能级振动的结果。

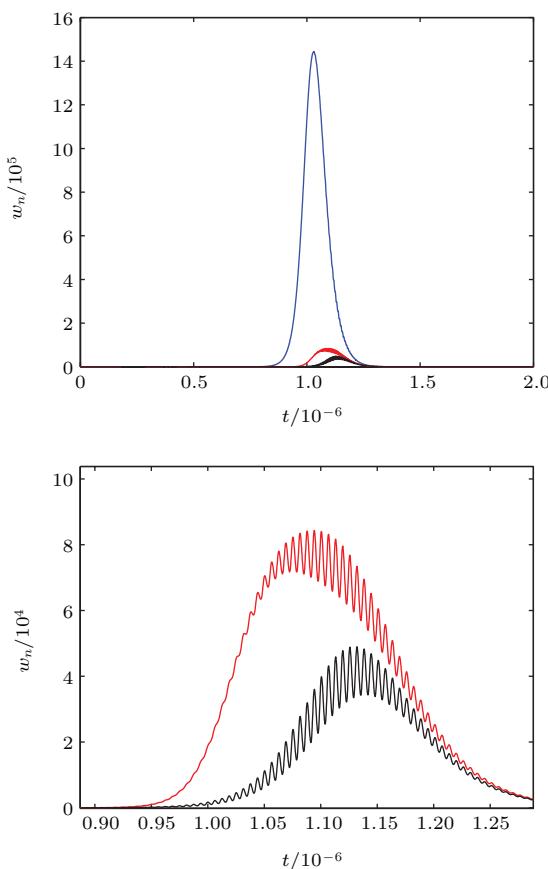


图4 (网刊彩色) 等待时间随时间的分布 其中蓝色表示  $w_1$ , 红色线条表示  $w_2$ , 黑色线条表示  $w_3$ , 其他参数为  $t_d = 2\tau_p$ ,  $\delta = 3.0$ ,  $\theta = \pi/4$ ,  $\Delta\varphi = 0$

Fig. 4. (color online) The waiting time distributions are plotted. The blue line corresponds to  $w_1$ , the red line corresponds to  $w_2$ , the black line corresponds to  $w_3$ . The other parameters are  $t_d = 2\tau_p$ ,  $\delta = 3.0$ ,  $\theta = \pi/4$ , and  $\Delta\varphi = 0$ .

## 4 结 论

本文利用产生函数方法对 BaF 分子在激光场与射频场作用下发射光子的累积量及等待时间分布进行了研究。累积量  $\kappa_1$  和  $\kappa_2$  表明在固有偶极和射频场的作用下, 系统表现出外场辅助吸收的现象, 即当  $\Delta_1 = n\omega_{rf}$  时, 系统存在吸收峰, 这种外场辅助吸收现象可以用于调控分子体系的光子吸收。通过选取合适的相对相位差  $\Delta\varphi$  可以实现  $\kappa_1 > \kappa_2$ ,  $\kappa_1 = \kappa_2$  以及  $\kappa_1 < \kappa_2$ , 进而实现光子源由量子源到热光源的转化。二阶、三阶等待时间分布呈现出明显的振荡现象, 该现象反映了分子在射频场作用下的振荡行为。

## 参考文献

- [1] Moerner W E, Kador L 1989 *Phys. Rev. Lett.* **62** 2535
- [2] Orrit M, Bernard J 1990 *Phys. Rev. Lett.* **65** 2716
- [3] Moerner W E, Orrit M 1999 *Science* **283** 1670
- [4] Plakhotnik T, Donley E A, Wild U P 1997 *Annu. Rev. Phys. Chem.* **48** 181
- [5] Barkai E, Jung Y, Silbey R 2004 *Annu. Rev. Phys. Chem.* **55** 457
- [6] Basche T, Moerner W E, Orrit M, Wild U P 1996 *Single Molecule Optical Detection, Imaging and Spectroscopy* (New York: VCH)
- [7] Lu H P, Xun L, Xie X S 1998 *Science* **282** 1887
- [8] Xie X S 2002 *J. Chem. Phys.* **117** 11024
- [9] Weiss S 1999 *Science* **283** 1676
- [10] Jung Y, Barkai E, Silbey R J 2002 *J. Chem. Phys.* **117** 10980
- [11] Bohmer M, Enderlein J 2003 *Chem. Phys. Chem.* **4** 792
- [12] Lippitz M, Kulzer F, Orrit M 2005 *Chem. Phys. Chem.* **6** 770
- [13] Barkai E, Brown F L H, Orrit M, Yang H 2008 *Theory and Evaluation of Single Molecule Signals* (Singapore: World Scientific Press)
- [14] Wang K, Cui L, Zhang X T, Li X Y 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 164205 (in Chinese) [王堃, 崔亮, 张秀婷, 李小英 2013 物理学报 **62** 164205]
- [15] Han W, Zhou L D, Li F Q, Wang F, Feng B, Zheng K X, Gong M L 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 074204 (in Chinese) [韩伟, 周丽丹, 李富全, 王芳, 冯斌, 郑奎兴, 巩马理 2014 物理学报 **63** 074204]
- [16] Li W F, Du J J, Wen R J, Yang P F, Li G, Zhang T C 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 244205 (in Chinese) [李文芳, 杜金锦, 文瑞娟, 杨鹏飞, 李刚, 张天才 2014 物理学报 **63** 244205]
- [17] Brown F L H 2003 *Phys. Rev. Lett.* **90** 028302
- [18] Zheng Y J, Brown F L H 2003 *Phys. Rev. Lett.* **90** 238305
- [19] Zheng Y J, Brown F L H 2003 *J. Chem. Phys.* **119** 11814
- [20] Peng Y G, Xie S J, Zheng Y J, Brown F L H 2009 *J. Chem. Phys.* **131** 214107
- [21] Peng Y G, Zheng Y J, Brown F L H 2007 *J. Chem. Phys.* **126** 104303
- [22] Zheng Y J 2008 *J. Chem. Phys.* **129** 246102
- [23] Han B P, Zheng Y J 2008 *Phys. Rev. A* **78** 015402
- [24] Zheng Y J, Brown F L H 2013 *J. Chem. Phys.* **139** 164120
- [25] Peng Y G, Zheng Y J 2013 *Phys. Rev. A* **88** 013425
- [26] Peng Y G, Zheng Y J 2014 *Eur. Phys. J. D* **68** 290
- [27] Steimle T C, Frey S, Le A 2011 *Phys. Rev. A* **84** 012508
- [28] Titov A T, Mosyagin N S, Petrov A N, Isaev T A, Demile D 2006 *Prog. Theor. Chem. Phys.* **15** 253
- [29] Berg L E, Gador N, Husain D, Ludwigs H, Royen P 1998 *Chem. Phys. Lett.* **287** 89
- [30] Lemeshko M, Krems R V, Doyle J M, Kais S 2013 *Mol. Phys.* **111** 1648
- [31] Han B P, Zheng Y J 2008 *Phys. Rev. A* **78** 015402
- [32] Han B P, Zheng Y J 2009 *J. Chem. Phys.* **130** 244502
- [33] Rozhkov I, Barkai E 2005 *Phys. Rev. A* **71** 033810

- [34] Makarov D E, Metiu H 2001 *J. Chem. Phys.* **115** 5989  
 [35] van Kampen N G 2009 *Stochastic Processes in Physics and Chemistry* (Singapore: Elsevier)  
 [36] Prohorov Y V, Rozanov Y A 1969 *Probability Theory* (Berlin: Springer)  
 [37] Amoldus H F, Nienhuis G 1986 *Opt. Acta* **33** 691

# Cumulants and waitingtime distribution of the photon emission from driven BaF molecule\*

Gu Li-Shan<sup>1)†</sup> Peng Yong-Gang<sup>2)</sup>

1) (Department of Physics, Changji University, Changji 831100, China)

2) (School of Physics, Shandong University, Jinan 250100, China)

(Received 15 October 2015; revised manuscript received 24 January 2016)

## Abstract

In this paper, we consider a single BaF molecule driven by an external field. When the symmetry is broken, the states of the BaF molecule demonstrate the permanent dipole moments. An external laser field to excite BaF molecule transition from its ground state to its excited state, and a radio frequency field couple with the permanent dipole moment of the BaF. The first order and second order cumulants of the emission photons and the waiting time distribution are studied via the recently developed generating function approach, which is very convenient to study the counting statistics and the corresponding probability distributions. The results demonstrate that the radio frequency field could help the BaF molecule to absorb photons from the driving field. The second and third order waiting time distributions oscillate with the evolution time, which reflects the states oscillating with the external radio frequency field.

**Keywords:** generating function, cumulants, waiting-time distributions

**PACS:** 42.50.Ar, 33.50.-j

**DOI:** 10.7498/aps.65.094202

\* Project supported by the Scientific Research Program of the Higher Education Institution of Xinjiang, China (Grant No. XJEDU2011I53), the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 1404189), the Natural Science Foundation of Shandong Province, China (Grant No. ZR2013AQ020), and the Doctoral Program of Higher Education of China (Grant No. 20130131120006).

† Corresponding author. E-mail: shanshan7900@163.com