

实现粒子布居高效转移的两种激光脉冲时序方案的理论研究

张露 严璐瑶 鲍润含 柴晓茜 马丹丹 吴倩楠 夏凌晨 姚丹 钱静

Theoretical research on an efficient population transfer based on two different laser pulse sequences

Zhang Lu Yan Lu-Yao Bao Hui-Han Chai Xiao-Qian Ma Dan-Dan Wu Qian-Nan Xia Ling-Chen Yao Dan Qian Jing

引用信息 Citation: [Acta Physica Sinica](#), **66**, 213301 (2017) DOI: 10.7498/aps.66.213301

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.213301>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I21>

---

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

[H<sub>2</sub><sup>+</sup> 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<sub>2</sub><sup>+</sup> 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>

[利用多光子跃迁控制基态 HF 分子布居转移](#)

[Population transfer of HF molecules in the ground electronic state through multiphoton transition](#)

物理学报.2013, 62(9): 093301 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.093301>

[少周期激光脉冲与气体作用产生的离化电流和 THz 波辐射](#)

[Ionization currents and terahertz emission from the interaction of few-cycle laser pulses with gas targets](#)

物理学报.2012, 61(17): 174205 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.174205>

[两束重合脉冲控制下的振转态布居转移](#)

[Rovibrational population transfer controlled by two overlapping pulses](#)

物理学报.2012, 61(9): 093302 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.093302>

# 实现粒子布居高效率转移的两种激光脉冲 时序方案的理论研究\*

张露 严璐瑶 鲍润含 柴晓茜 马丹丹 吴倩楠 夏凌晨 姚丹 钱静†

(华东师范大学物理与材料科学学院, 光与原子量子所, 上海 200062)

(2017年5月23日收到; 2017年7月11日收到修改稿)

基于最近实验工作的结果 (2010 *Nat. Phys.* **6** 265) 即 Danzl 等在五能级 M 型级联系统中分别利用连续型和四光子型受激拉曼绝热通道 (stimulated Raman adiabatic passage, STIRAP) 实现了将 Feshbach 态上弱束缚的 Cs<sub>2</sub> 有效转移到其振转基态, 本文理论研究两种 STIRAP 方案实施的基本条件, 解析推导系统的准暗态、绝热参数的具体形式并分析其存在的必要性, 详细讨论布居转移效率对相关参量的依赖关系. 通过比较激光脉冲的时序、中间能级的失谐量和自发辐射率、光场脉冲的幅值等诸多参量的不同影响, 讨论方案各自的优缺点, 找到了参量优化的方法以实现最高效的粒子布居数转移. 与前人的实验结果相比, 本文研究表明, 实验观测值 (约 0.60) 均低于理论预估最佳值 (约 0.97) 的主要原因是受限于激发态能级的自发辐射率过大. 该理论方案还可用于制备量子纠缠态, 在量子逻辑门操控、量子信息传输等领域都有潜在的应用.

**关键词:** 受激拉曼绝热通道, 布居转移, 绝热条件, 纠缠态

**PACS:** 33.80.Be, 42.50.Hz, 32.80.Rm, 42.65.Dr

**DOI:** 10.7498/aps.66.213301

## 1 引言

相干布居转移的目的是在各分离量子态之间通过适当的耦合场有效地转移粒子布居数, 通常由受激拉曼绝热通道 (stimulated Raman adiabatic passage, STIRAP) 实现. STIRAP 的成功一方面在于抑制了转移过程中中间能级的作用, 甚至在转移时间远大于中间能级寿命的情况下也有望获得极高的效率; 另一方面它极大地消除了实验条件如光场幅值、脉冲时序、激光波形等的微小变化带来的影响. 因此, STIRAP 技术凭借其得天独厚的优势, 自 Gaubatz 等<sup>[1]</sup> 提出以来已在原子分子光物理 (AMO)、化学、工程技术学的一些领域广泛应用.

STIRAP 技术的物理本质是通过施加一对逆序列的 (光) 脉冲耦合相应的量子态, 抽运光作用于初始态和中间态, 斯托克斯光作用于中间态和末态, 且斯托克斯光超前抽运光 (逆序列), 从而构造

一个只包含初末量子态的绝热本征态 (也称暗态). 当体系始终跟随暗态发生演化时, 能够消除中间激发态自发辐射的影响, 使初末态之间粒子布居数完全转移. 基于简单的  $\Lambda$  或梯型三能级结构实现 STIRAP 的基本理论已经有了完备的阐述<sup>[1]</sup>, 随着研究深入, 逐渐在复杂的多能级系统里设计出多种 STIRAP 结构来满足不同性质粒子转移的需求. 现有的特殊结构有: Straddle-STIRAP<sup>[2,3]</sup>, Tripod-STIRAP<sup>[4,5]</sup>, Chainwise-STIRAP<sup>[6,7]</sup> 等. 除了这些复杂结构之外, STIRAP 的成功实现对 AMO 领域的发展有特别重要的意义. 它可以用于实现目标原子态的相干囚禁和电子激发<sup>[8-10]</sup>、超冷基态分子的制备<sup>[11,12]</sup>、离子的相干囚禁和测量<sup>[13,14]</sup>、原子光学器件 (原子镜、原子分束器、原子干涉仪) 的研发<sup>[15,16]</sup> 以及腔量子电动力学系统的操控<sup>[17,18]</sup>. 尤为值得一提的是, 利用 STIRAP 技术在实验上将磁 Feshbach 共振 (FR) 下产生的弱束缚分子高效相干地转移到分子基态上, 成功

\* 国家自然科学基金 (批准号: 11474094, 11104076) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: jqian1982@gmail.com

制备了异核极性超冷基态分子 KRB [19,20] (由美国 JILA 实验室的 Jun Ye 和 D. S. Jin 小组于 2008 年完成), 毋庸置疑地推动了之后冷分子物理的飞速发展. 迄今为止, 实验上成功制备的超冷分子包括同核分子 Rb<sub>2</sub> [21], Sr<sub>2</sub> [22], Cs<sub>2</sub> [11], Na<sub>2</sub> [23] 和异核分子 KRB [19,24], RbCs [25,26], NaK [27], RbSr [12], NaRb [28] 等. Amsterdam 大学的 Schtrck 小组 [29] 最新的实验工作将光缔合 (photoassociation, PA) 后的 Sr 原子对经由 STIRAP 相干转移到分子基态, 效率达 80% 以上, 比 2012 年文献 [22] 报道的结果提高了 2.5 倍. 针对某些磁 FR 不适合的原子种类或能级来说, 使用 PA 技术 (光学方法) 产生弱束缚分子无外乎是另一条途径.

目前, 制备超冷基态分子常用的方法是 PA+STIRAP 和 FR+STIRAP, 取决于分子的能级结构和自身属性. 与原子相比, 分子能级更加复杂, 实验上倾向于采用多能级级联的构型来转移 PA 或 FR 产生的弱束缚分子, 既增强能级间的耦合强度又减小所需的光功率. 2010 年, Innsbruck 大学的 Danzl 等 [11] 利用五能级 M 型能级结构将磁 FR 产生的 Cs<sub>2</sub> 从高振动态  $|v = 155\rangle$  逐步转移到振转基态  $|v = 0, J = 0\rangle$ . 为此目的, 实验中他们采用了两种不同的 STIRAP 方案, 即所施加四束激光的时序和种类 (连续性、脉冲型) 不同, 分别为四光子型 STIRAP (4p-STIRAP, 简称 4p) 和连续型

STIRAP (s-STIRAP, 简称 s), 获得的转移效率均在 0.60 左右. 文献 [11] 中虽然对光晶格深度、分子能级寿命、能级失谐量等重要参量做了讨论, 但未能详细地解释效率较低的原因, 对两种方案物理本质的异同点也未做比较和论述.

本文系统地研究了两种方案实现粒子布居数相干有效转移的基本原理, 详细探讨了转移效率与能级性质和光场参数的依赖关系. 通过比较激发态和亚稳态能级的自发辐射率、激发态能级的失谐、脉冲激光之间的时间间隔和幅值等物理参量对转移效率的影响, 在符合绝热条件的基础上提出优化各参量实现最佳粒子布居转移的可能性. 分析可知, 与理论预测的最佳效率 0.97 相比, 激发态能级的自发辐射率过大是限制实验获得高转移效率的关键因素. 值得注意的是, 虽然本方案始于 Cs<sub>2</sub> 实验, 但在文中我们对该模型作更加普适的研究, 故以“粒子”替代“分子”的说法. 最后, 对方案可行性的分析和在纠缠态制备方面的论述进一步加深了本文的研究意义.

## 2 模型

考虑一个五能级级联系统, 如图 1 (a) 所示, 包含粒子能级  $|i\rangle$  ( $i = 1, 2, \dots, 5$ ), 其中  $|1\rangle, |5\rangle, |3\rangle$  分

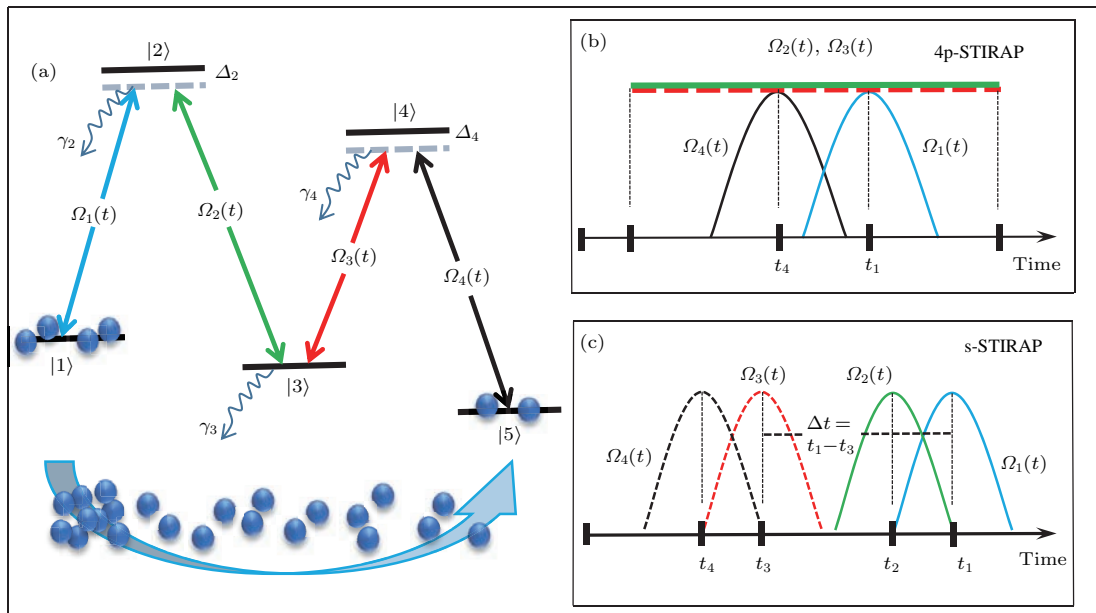


图 1 (网刊彩色) (a) M 型五能级系统的示意图; (b) 4p-STIRAP 型激光脉冲时序图; (c) s-STIRAP 型激光光脉冲时序图; 具体的参数详见正文

Fig. 1. (color online) (a) Schematic representation of a M-type five-level system; time-dependence of the adopted laser Rabi frequencies  $\Omega_i(t)$  ( $i = 1, \dots, 4$ ) are described in (b) 4p-STIRAP-type scheme and (c) s-STIRAP-type scheme. See main texts for relevant parameter descriptions.

别对应初末态和亚稳态,  $|2\rangle$  和  $|4\rangle$  对应激发态. 利用外加激光场  $\Omega_i(t)$  ( $i = 1, \dots, 4$ ) 耦合能级  $|i\rangle$  和  $|i+1\rangle$ ,  $\Delta_i$  表示能级  $|i\rangle$  的失谐量. 假定初始态  $|1\rangle$  和目标态  $|5\rangle$  都是绝对稳定的, 而中间态  $|2\rangle, |3\rangle, |4\rangle$  能级寿命有限, 用自发辐射率  $\gamma_i$  ( $i = 2, 3, 4$ ) 表示. 研究目的是将初始制备在态  $|1\rangle$  上的粒子经过一系列中间能级转移到更加稳定的末态  $|5\rangle$  上. 在整个过程中, 不仅要求极大地抑制中间能级  $|2\rangle, |3\rangle, |4\rangle$  上的布居数, 而且尽可能实现最大的转移效率  $\eta$  ( $\eta \sim P_{5,t \rightarrow \infty} / P_{1,t \rightarrow 0}$ ,  $P_{i,t}$  表示  $t$  时刻  $|i\rangle$  上的布居). 为此目的, 我们采用两种不同的 STIRAP 方案, 通过优化激光场脉冲的时序建立初末两态之间的直接关联, 实现粒子布居的高效转移<sup>[30]</sup>. 值得注意的是, 能级寿命与其自发辐射率成反比例, 这类多能级 STIRAP 若转移过程时间与能级寿命相当可导致大量粒子由激发态能级的自发辐射损失. 另外, 多能级级联的光耦合方式相较于三能级  $\Lambda$  方案实验操作相对复杂, 包含超精细能级, 但有望解决自由-束缚能级之间偶极跃迁矩阵元 (Franck-Condon 系数) 太小的缺点, 在超冷分子产生方面有十分广泛的应用<sup>[31,32]</sup>.

基于以上的分析, 系统的哈密顿量可以写成 ( $\hbar = 1$ )

$$\hat{H} = \sum_{i=2}^5 \Delta_i \hat{\psi}_i^\dagger \hat{\psi}_i + \sum_{i=1}^4 (\Omega_i \hat{\psi}_i^\dagger \hat{\psi}_{i+1} + \text{h.c.}), \quad (1)$$

其中  $\hat{\psi}_i^\dagger$  ( $\hat{\psi}_i$ ) 表示  $|i\rangle$  上的产生 (湮灭) 算符. 由对角化哈密顿矩阵 (1) 可得到系统的能量本征值:

$$\omega_1 = 0, \quad (2a)$$

$$\omega_{2,3} = \frac{1}{4} \left[ 2\Delta \pm 2\sqrt{\Delta^2 + 2a - 2\sqrt{a^2 - 4b}} \right], \quad (2b)$$

$$\omega_{4,5} = \frac{1}{4} \left[ 2\Delta \pm \sqrt{4\Delta^2 + 8 + \sqrt{a^2 - 4b}} \right], \quad (2c)$$

(2b) 和 (2c) 式中,  $a = \Omega_1^2 + \Omega_2^2 + \Omega_3^2 + \Omega_4^2$ ,  $b = \Omega_1^2 \Omega_4^2 + \Omega_1^2 \Omega_3^2 + \Omega_2^2 \Omega_4^2$ . 在推导过程中, 运用了双 (四) 光子共振条件:  $\Delta_3 = \Delta_5 = 0$ , 并设定单 (三) 光子失谐量为  $\Delta_2 = \Delta_4 = \Delta$ . 显然, 本征能量  $\omega_1 = 0$  对应的本征态  $|\omega_1\rangle$  即 STIRAP 过程依赖的“准暗态”, 而  $|\omega_j\rangle$  ( $j = 2, \dots, 5$ ) 称为亮态<sup>[33,34]</sup>. 这里, 定义“准暗态”的原因是区别传统三能级  $\Lambda$  或梯型系统中构建的直接联系初末两态, 完全不受中间态影响的相干布居囚禁态 (即暗态)<sup>[6]</sup>. 各能量本征态的具体表达式如下 (为简化解析表示, 暂令

$\Delta = 0$ ):

$$|\omega_1\rangle = \sin \beta \cos \alpha |1\rangle - \sin \alpha |3\rangle + \cos \beta \cos \alpha |5\rangle, \quad (3a)$$

$$|\omega_j\rangle = \frac{1}{N} \left[ \Omega_1 \Omega_2 \Omega_3 |1\rangle + \omega_j \Omega_2 \Omega_3 |2\rangle + (\omega_j^2 - \Omega_1^2) \Omega_3 |3\rangle + \omega_j (\omega_j^2 - \Omega_1^2 - \Omega_2^2) |4\rangle + \Omega_4 (\omega_j^2 - \Omega_1^2 - \Omega_2^2) |5\rangle \right]. \quad (3b)$$

(3b) 式中,  $N$  是归一化常数; (3a) 式中,  $\alpha$  和  $\beta$  为包含光场拉比频率的混合角, 具体形式是

$$\alpha = \arctan \frac{\Omega_1 \Omega_4}{\sqrt{\Omega_1^2 \Omega_3^2 + \Omega_2^2 \Omega_4^2}}, \quad (4a)$$

$$\beta = \arctan \frac{\Omega_2 \Omega_4}{\Omega_1 \Omega_3}. \quad (4b)$$

与亮态  $|\omega_j\rangle$  不同, 准暗态  $|\omega_1\rangle$  只包含裸态  $|1\rangle, |3\rangle, |5\rangle$ , 故不受中间激发态  $|2\rangle, |4\rangle$  的影响, 但亚稳态  $|3\rangle$  在绝热演化中起着至关重要的作用. 因为布居在态  $|3\rangle$  上粒子数概率  $\sim |\sin \alpha|^2$  持续以  $\gamma_3$  的速率损失, 这也是  $|\omega_1\rangle$  被称之为“准暗态”的原因. 为了抑制这种损耗必须保持  $\sin \alpha \approx 0$  ( $\alpha \approx 0$ ), 根据  $\alpha$  的定义需要满足条件:  $\Omega_3 \gg \Omega_4$  或  $\Omega_2 \gg \Omega_1$ . 在此基础上,  $|\omega_1\rangle$  可简化为

$$|\omega_1\rangle \approx \sin \beta |1\rangle + \cos \beta |5\rangle, \quad (5)$$

结合  $\beta$  的定义式 (4b) 与 (5) 式可知, 若适当优化并操控激光脉冲的时序便可以实现粒子布居数在态  $|1\rangle$  和  $|5\rangle$  之间的高效转移, 同时若  $\beta$  可于  $[0, \pi/2]$  之间任意调控, 将有望实现可控量子纠缠态的制备.

由上述分析并结合实验结果<sup>[11]</sup>, 采用两种激光脉冲时序方案: 1) 4p 方案和 2) s 方案, 脉冲时序分别如图 1 (b) 和图 1 (c). 在 4p 方案中,  $\Omega_1(t)$  和  $\Omega_4(t)$  构成一对逆序的 STIRAP 光脉冲 ( $\Omega_4(t)$  部分超前于  $\Omega_1(t)$ ),  $\Omega_2(t)$  和  $\Omega_3(t)$  是两束等幅连续光且它们的幅值远大于  $\Omega_1(t)$  和  $\Omega_4(t)$ . 这样的设计能够有效确保粒子布居沿着单一的绝热本征态  $|\omega_1\rangle$  转移, 而辅助的较强的中间连续光也抑制了亚稳态能级  $|3\rangle$  的布居. 在 s 方案中, 施加两对连续的 STIRAP 脉冲分两步完成  $|1\rangle \rightarrow |5\rangle$  的跃迁, 它们分别是:  $\Omega_1(t)$  和  $\Omega_2(t)$  完成  $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$  的跃迁,  $\Omega_3(t)$  和  $\Omega_4(t)$  完成  $|3\rangle \rightarrow |5\rangle$  的跃迁. 两对脉冲对之间相对时间间隔定义为  $\Delta t = t_1 - t_3$ , 通过改变并优化  $\Delta t$  实现对亚稳态上布居数的抑制, 从而提高转移

效率. 因此, s 方案的关键在于控制光脉冲对之间的相对时差, 而 4p 方案只需严格控制脉冲光的开关时间即可, 实验操作上相对容易.

在数值计算中, 采用高斯型脉冲光场, 光场拉比频率可表示为

$$\Omega_i(t) = \Omega_i^{(0)} \exp[-(t - t_i)^2/T^2], \quad (6)$$

这里,  $\Omega_i^{(0)}$ ,  $T$  和  $t_i$  分别是光场的幅值、束腰半径和中心位置. 连续光不随时间变化, 所以  $\Omega_i(t) = \Omega_i^{(0)}$ .

### 3 数值模型

#### 3.1 绝热参数

4p(s) 方案光脉冲时序的设计本质上都是基于准暗态  $|\omega_1\rangle$  的存在. 理想情况下, 若系统的真实动力学演化能够完美地跟随  $|\omega_1\rangle$ , 粒子布居数从  $|1\rangle \rightarrow |5\rangle$  的转移应是绝对的. 考虑真实情况, 由于外界扰动、体系退相干等诸多因素的影响, 即便再微小的扰动也有可能破坏绝热性, 导致体系的演化无法绝对地跟随  $|\omega_1\rangle$ , 存在一定概率被激发到临近本征态上, 如  $|\omega_2\rangle$ ,  $|\omega_3\rangle$ . 而亮态  $|\omega_j\rangle$  受到激发态能级寿命的牵制, 极大地影响了转移效率. 注意到实验 [11] 中基态  $\text{Cs}_2$  的产生效率均只有 0.6 左右. 为了定量衡量体系绝热演化偏离准暗态的程度, 引入绝热参数  $r(t)$  表示亮态  $|\omega_j\rangle$  上的总布居数 [35].

由方程 (3a) 重新定义准暗态的本征矢量:  $\Psi_0 = [\psi_1^0, \psi_2^0, \psi_3^0, \psi_4^0, \psi_5^0]^T$ , 其中各分量分别为  $\psi_1^0 = \sin\beta \cos\alpha$ ,  $\psi_2^0 = 0$ ,  $\psi_3^0 = -\sin\alpha$ ,  $\psi_4^0 = 0$ ,  $\psi_5^0 = \cos\beta \cos\alpha$ . 真实演化过程中受到外界扰动, 本征矢量会发生微小偏移, 故实际动力学过程的态矢可表征为  $\psi_i = \psi_i^0 + \delta\psi_i$ ,  $\delta\psi_i$  为偏移量,  $\psi_i^0$  为准暗态波函数. 将  $\psi_i$  代入海森伯运动方程可求得  $\delta\psi_i$  随时间的变化满足

$$i\partial_t \delta\psi_i = (\mathbf{M} - i\gamma)\delta\psi_i + \dot{\Phi}, \quad (7)$$

式中,

$$\mathbf{M} = \begin{pmatrix} 0 & \Omega_1 & 0 & 0 & 0 \\ \Omega_1 & 0 & \Omega_2 & 0 & 0 \\ 0 & \Omega_2 & 0 & \Omega_3 & 0 \\ 0 & 0 & \Omega_3 & 0 & \Omega_4 \\ 0 & 0 & 0 & \Omega_4 & 0 \end{pmatrix},$$

$$\gamma = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \gamma_2 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \gamma_3 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \gamma_4 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad \dot{\Phi} = \begin{pmatrix} -i\dot{\psi}_1^0 \\ 0 \\ -i\gamma_3\dot{\psi}_3^0 - i\dot{\psi}_3^0 \\ 0 \\ -i\dot{\psi}_5^0 \end{pmatrix},$$

$\dot{\Phi}$  项是由于光场拉比频率随时间变化带来的驱动项 (或称“源”项) [35], 促使  $\delta\psi_i$  随时间发生变化.

将任意  $\delta\psi_i$  展开为  $\delta\psi_i = \sum_{j=1}^5 c_j |\omega_j\rangle$  ( $i = 1, \dots, 5$ ) 且满足本征方程  $\mathbf{M}|\omega_j\rangle = \omega_j|\omega_j\rangle$ . 将该展开式代入 (7) 式可以导出本征态  $|\omega_j\rangle$  上的投影  $c_j$  随时间变化的方程

$$i\dot{c}_j = \omega_j c_j - i \sum_{i=1}^5 \langle \omega_j | \gamma | \omega_i \rangle c_i + \langle \omega_j | \dot{\Phi} \rangle. \quad (8)$$

由 (2b) 和 (2c) 式可知  $\left| \frac{\omega_{4(5)}}{\omega_{2(3)}} \right| = \sqrt{1 + 2\left(\frac{\Omega_2}{\Omega_4}\right)^2} > 1$ , 所以  $|\omega_4\rangle$  和  $|\omega_5\rangle$  相较于  $|\omega_2\rangle$  和  $|\omega_3\rangle$  不易被布居, 在计算绝热参数时只需考虑  $|\omega_j\rangle$  ( $j = 2, 3$ ) 上的布居. 此外, 由 (8) 式可估算准暗态  $|\omega_1\rangle$  与其他本征态之间的耦合强度  $\langle \omega_1 | \gamma | \omega_j \rangle \propto \gamma_j$  ( $j = 2, 3$ ). 通常情况下, 亚稳态的自发辐射率较小, 满足  $\gamma_3 \ll 1$ , 所以  $|\omega_1\rangle$  对亮态  $|\omega_2\rangle$  和  $|\omega_3\rangle$  的布居变化的影响可以忽略, 将 (8) 式整理为

$$\omega_2 c_2 - i c_2 \langle \omega_2 | \gamma | \omega_2 \rangle - i c_3 \langle \omega_2 | \gamma | \omega_3 \rangle + \langle \omega_2 | \dot{\Phi} \rangle = 0, \quad (9a)$$

$$\omega_3 c_3 - i c_3 \langle \omega_3 | \gamma | \omega_3 \rangle - i c_2 \langle \omega_3 | \gamma | \omega_2 \rangle + \langle \omega_3 | \dot{\Phi} \rangle = 0. \quad (9b)$$

因此, 绝热参数  $r(t)$  可定义为 [35]

$$r(t) = \frac{1}{2} \sqrt{|c_2|^2 + |c_3|^2}. \quad (10)$$

直接求解 (9a) 和 (9b) 式, 并将结果代入 (10) 式可导出绝热参数  $r(t)$  的解析表达式. 由于该形式较复杂, 需要在数值上进行研究.  $r(t) \ll 1$  表示系统的绝热性非常好, 大多数粒子都可以保持在准暗态  $|\omega_1\rangle$  演化而不会被激发到临近的亮态上.

#### 3.2 转移效率

系统的粒子布居转移效率可定义为

$$\eta = \frac{P_{5,t \rightarrow \infty}}{P_{1,t \rightarrow 0}}, \quad (11)$$

$P_{i,t} \equiv |\psi_i(t)|^2$  表示  $t$  时刻  $|i\rangle$  上的布居数. 考虑总粒子数概率归一且守恒,  $\eta$  实则表示末时刻  $|5\rangle$  上的布居. 取  $\gamma_2 = \gamma_4 \equiv \Gamma$ , 令  $\Gamma(\Gamma^{-1})$  作为系统无量纲的频率(时间)单位. 相关参量的定义如下:  $\gamma_3 = \gamma = 0.01, \Delta = 0, \Omega_i^{(0)} = \Omega_0 = 1.6 \times 2\pi$ . 其余参数分别为(上标 4p 或 s 对应方案名):

1) 4p 方案中,

$$\Omega_i(t) = \Omega_0 \exp[-(t - t_i^{4p})^2 / (T^{4p})^2] \quad (i = 1, 4),$$

$$\Omega_i(t) = \Omega_0 \quad (i = 2, 3), \quad T^{4p} = 20,$$

$$t_1^{4p} = 80, \quad t_4^{4p} = 60;$$

2) s 方案中,

$$\Omega_i(t) = \Omega_0 \exp[-(t - t_i^s)^2 / (T^s)^2] \quad (i = 1, \dots, 4),$$

$$T^s = 10, \quad t_1^s = 80, \quad t_2^s = 70, \quad t_3^s = t_1^s - \Delta t,$$

$$t_4^s = t_3^s - T^s;$$

改变  $\Delta t$  可移动光脉冲  $\Omega_3(t)$  和  $\Omega_4(t)$  的中心位置, 而它们的部分重合区始终不变; 同理,  $\Omega_1(t)$  和  $\Omega_2(t)$  的相对位置也固定.

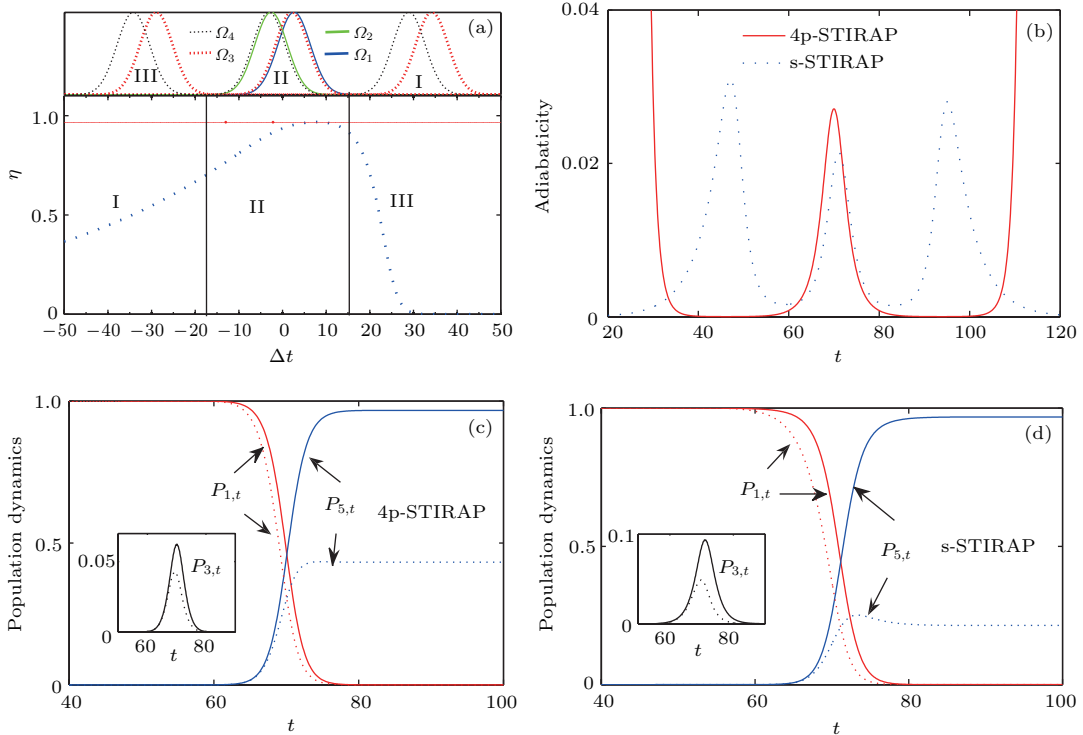


图2 (网刊彩色) (a) 转移效率  $\eta$  与脉冲时间间隔  $\Delta t$  的依赖关系, 内插图表示在区域 I, II, III 中激光脉冲的时间顺序, 其中  $\Omega_1$  和  $\Omega_2$  位置固定; (b) 4p 和 s 方案下绝热参数  $r(t)$  的比较, 取 s 方案下  $\Delta t = 7.8$  (最佳值, 区域 II 中); (c), (d) 各能级布居数  $P_{1,t}$  (红色实线和虚线),  $P_{3,t}$  (插图, 黑色实线和虚线),  $P_{5,t}$  (蓝色实线和虚线) 随时间的演化; 为便于比较, 实线和虚线分别表示  $\gamma = 0.01$  和  $\gamma = 1$  两种情况

Fig. 2. (color online) (a) Transfer efficiency  $\eta$  as a function of the pulse delay  $\Delta t = t_1 - t_3$  for 4p (red solid) and s (blue dashed) schemes. The inset shows the time order of the laser pulses in regions I, II, III, where  $\Omega_1$  and  $\Omega_2$  are fixed. (b) Adiabaticity versus time for 4p (red solid) and s (blue dashed) schemes. In s-STIRAP scheme, we choose  $\Delta t = 7.8$  (optimal). (c) In 4p scheme, time-dependent population dynamics of initial state  $P_{1,t}$  (red lines), metastable state  $P_{3,t}$  (black lines) and final state  $P_{5,t}$  (blue lines). Two cases of  $\gamma = 0.01$  (solid lines) and  $\gamma = 1$  (dashed lines) are compared. Same results are shown in (d) except for the s scheme. All frequencies are scaled by  $\Gamma$ .

基于以上的参数设定, 对两种方案下的系统动力学演化进行定量研究. 首先重点关注光脉冲对的相对时差  $\Delta t$  在 s 方案中的作用. 为了方便比较, 同时呈现了相同参数下 4p 方案下的结果. 图 2(a) 描绘了  $\eta$ - $\Delta t$  关系曲线, 红色实线(蓝色虚线)表示 4p (s) 方案的结果. 根据定义, 4p 方案的  $\eta$  与  $\Delta t$  无

关, 只要优化其余激光参数值就能获得极高的效率, 在这组参数下, 效率可高达  $\eta \approx 0.97$ . 但 s 方案中, 区域 II 内的最大效率可达  $\eta \approx 0.97$  ( $\Delta t \approx 7.8$ ), 增加或者减小  $\Delta t$  都使  $\eta$  明显降低. 尤其是在区域 III ( $\Delta t > 15$ ) 中,  $\eta$  迅速降为 0. 分析其原因, 在区域 II 中, 光脉冲的时序满足  $\Omega_4$ - $\Omega_2$ - $\Omega_3$ - $\Omega_1$  这样的逆

序列关系 ( $\Omega_4$  超前  $\Omega_3$ ,  $\Omega_2$  超前  $\Omega_1$ ), 且它们之间的重叠面积非常大. 但是在区域 I 和 III 中, 脉冲序列  $\Omega_1$  和  $\Omega_2$ ,  $\Omega_3$  和  $\Omega_4$  虽各自都满足逆序关系, 两对脉冲对之间重叠面积却大大缩小. 尤其是区域 III, 先施加的  $\Omega_3$  和  $\Omega_4$  在亚稳态  $|3\rangle$  和末态  $|5\rangle$  之间构建起关联, 但是当  $\Omega_1$  和  $\Omega_2$  到来时,  $\Omega_3$  和  $\Omega_4$  已经降为零, 几乎没有作用. 所以, 绝大多数粒子最终停留在态  $|3\rangle$  而不会被转移到目标态  $|5\rangle$ , 导致转移效率  $\eta$  大大降低. 为了说明体系的演化保持着很好的绝热性, 图 2(b) 比较了两种方案下绝热参数  $r(t)$  的大小, 发现不论 4p (红色实线) 或是 s (蓝色虚线) 方案, 在光-粒子相互作用区 ( $60 < t < 80$ ) 都表现出非常好的绝热性, 满足  $r(t) \approx 0.02 \ll 1$ , 与图 2(a) 的结果非常符合. 这说明在优化的光场参数下, 它们都沿着准暗态做绝热演化, 实现高保真度的粒子布居数转移.

结合图 2(a) 和图 2(b) 的计算结果, 两种方案下系统真实的布居数随时间演化规律可参见图 2(c) 和图 2(d). 初始态、中间亚稳态、末态上的布居数  $P_{1,t}$ ,  $P_{3,t}$  (见插图) 和  $P_{5,t}$  分别用红线、黑线、蓝线表示, 实线和虚线对应  $\gamma = 0.01$  和  $\gamma = 1.0$  两种情形. 由准暗态表达式 (3a) 可知, 态  $|3\rangle$  的自发辐射率  $\gamma$  必定影响  $\eta$ , 所以在图 2(c) 和图 2(d) 中考虑了不同  $\gamma$  值下的动力学演化, 通过比较  $P_{5,t \rightarrow \infty}$  对  $\gamma$  变化的敏感程度可以定性上判定态  $|3\rangle$  布居的大小. 由图 2(c) 和图 2(d) 可知, 当  $\gamma = 0.01$  时, 两种方案下  $\eta$  都非常高. 然而,  $\gamma$  增加到 1.0 时, s 方案较 4p 方案  $P_{5,t \rightarrow \infty}$  的降幅更大, 从而可以反推 s 方案下态  $|3\rangle$  上的布居数更大. 这与图 2(c) 和图 2(d) 内插图给出的  $P_{3,t}$  的结果完全一致, 因为  $P_{3,t}^{4p} < P_{3,t}^s$  ( $P_{3,t}^s \approx 2P_{3,t}^{4p}$ ). 此外, 中间激发态的布居数  $P_{2,t}$  和  $P_{4,t}$  始终非常小, 约  $10^{-3}$ , 故在图上没有给出.

综上所述, 可以得到以下初步结论:

1) 在适当参数的选取下, 两种方案均能实现高效的粒子布居转移, 理论上预估的最佳值均达  $\eta \sim 0.97$ ;

2) 转移效率随中间亚稳态自发辐射率  $\gamma$  的增大明显减小, 但相同条件下, s 方案对  $\gamma$  的依赖程度更大一些;

3) 绝热参数  $r(t)$  能够作为表征转移效率高低的定性判据, 在光-粒子相互作用区,  $r(t) \ll 1$  表示系统的动力学跟随准暗态本征态演化, 可实现较高的转移效率.

## 4 结果与讨论

在 4p(s) 方案中, 考虑其他相关参量, 包括能级的失谐量、激发态的自发辐射率、激光脉冲的幅值等都会对两种方案的运作造成不同的影响, 下面逐一分析.

### 4.1 激发态能级失谐量

由 (2a)—(2c) 式可知, 能量本征值均与  $\Delta$  有关.  $\Delta = 0$  时,  $\omega_{2,3}$  的分布与  $\omega_1 (= 0)$  之间上下对称且相距较远, 粒子不易被激发到  $|\omega_2\rangle$  或  $|\omega_3\rangle$  上. 随着  $|\Delta|$  的增加,  $\omega_{2,3}$  随之发生能级平移, 致使  $\omega_2$  或  $\omega_3$  更加接近  $\omega_1 (= 0)$ , 因此布居转移偏离  $|\omega_1\rangle$  的可能性变大, 绝热条件被破坏, 转移效率也将随之降低.

图 3(a) 描绘了  $\eta$ - $\Delta$  的关系曲线, 与上述定性分析一致, 随着  $|\Delta|$  的增加,  $\eta$  确实明显减小, 且 4p 方案 (红色实线) 与 s 方案 (蓝色虚线) 相比,  $\eta$  的降速更快. 这与实验结果 (文献 [11] 中图 3(a) 和图 3(c)) 及理论分析都完全符合, 即最佳的转移效率出现在共振  $\Delta = 0$  处. 此外, 始终满足  $\eta^{4p} < \eta^s$ , 尤其是在  $|\Delta| > 50$  大失谐区域,  $\eta^{4p}$  随  $|\Delta|$  增加而下降的速率远大于  $\eta^s$ . 要理解这一点, 可以比较两种方案在  $\Delta = 0$  和  $\Delta = 50$  两处的绝热参数曲线, 如图 3(b1) 和图 3(b2) 所示.

当  $\Delta = 0$  时, 在光-粒子相互作用区 ( $60 < t < 80$ ), 绝热参数  $r(t)$  的最大值均小于 0.03 (满足  $r(t) \ll 1$  的条件), 故粒子布居的转移效率很高,  $\eta \sim 0.97$ . 但当  $\Delta$  增加到 50 时,  $r(t)$  提高了一个数量级. 尤其在作用区, 我们发现  $r^{4p} > r^s$ , 表明 4p 方案下绝热性被破坏的程度更高 (有部分粒子被激发到亮态本征态), 相应的  $\eta^{4p}$  也更小. 这与图 3(a) 所示的  $\eta^{4p} < \eta^s$  的结果十分符合.

### 4.2 能级自发辐射率

在数值模型中已经对 4p (s) 方案下  $\eta$  对中间亚稳态自发辐射率  $\gamma$  的不同依赖程度做了初步的解释, 下面进一步讨论激发态和亚稳态能级自发辐射率  $\gamma$  和  $\Gamma$  对 STIRAP 过程的不同作用. 理想情况, 若准暗态  $|\omega_1\rangle$  被绝对地跟随, 根据定义转移效率仅仅与  $\gamma$  有关. 真实的动力学演化不可避免地会有部分粒子被激发, 相应地这些激发能级的自发辐射率  $\Gamma$  也会影响转移效率. 直觉上,  $\eta$  与  $\gamma$  和  $\Gamma$  应成反关联, 即增加  $\gamma$  和  $\Gamma$  都导致  $\eta$  的减小. 这一结论也可以从绝热参数的解析解中得到对应.

图 4(a) 和图 4(b) 分别呈现  $\eta$ - $\gamma$  和  $\eta$ - $\Gamma$  的依赖关系. 总体而言, 伴随  $\gamma$  或  $\Gamma$  的增加,  $\eta$  均急剧减小至 0, 与理论预估的结论非常符合. 因为能级自发辐射率的增加必然破坏体系绝热性, 导致大量粒子的损失从而降低了  $\eta$ . 比较图 4(a) 和图 4(b) 还可以发现更多有趣的结果.

1)  $\gamma$  较  $\Gamma$  能更快促使  $\eta \rightarrow 0$ . 原因是准暗态  $|\omega_1\rangle$  只显含态  $|3\rangle$ , 并不包含  $|2\rangle$  和  $|4\rangle$ , 所以理想情况  $\eta$  不依赖  $\Gamma$  的变化, 而必须依赖  $\gamma$ .  $\eta$  对  $\Gamma$  变化敏感主要来自于系统真实演化无法绝对跟随准暗态

的变化所致. 通常, 布居数  $P_{2,t}$  和  $P_{4,t}$  始终非常小, 约  $10^{-3}$ , 而  $P_{3,t}$  与之相比可达 0.1.

2)  $\eta^s(\gamma) < \eta^{4p}(\gamma)$ . 中间亚稳态  $|3\rangle$  在 s 方案中起到了连接两个  $\Lambda$ -STIRAP 的作用, 所以在  $|3\rangle$  上必然存在一定的布居概率 ( $P_{3,t}$  如图 2(d) 内插图所示), 它受  $\gamma$  的影响较 4p 方案要大一些. 类似地, 在 4p 方案中, 中间能级之间以连续强光耦合发生跃迁, 可以有效减小  $P_{3,t}$ , 降低  $\eta$  对  $\gamma$  的敏感程度从而提高效率.

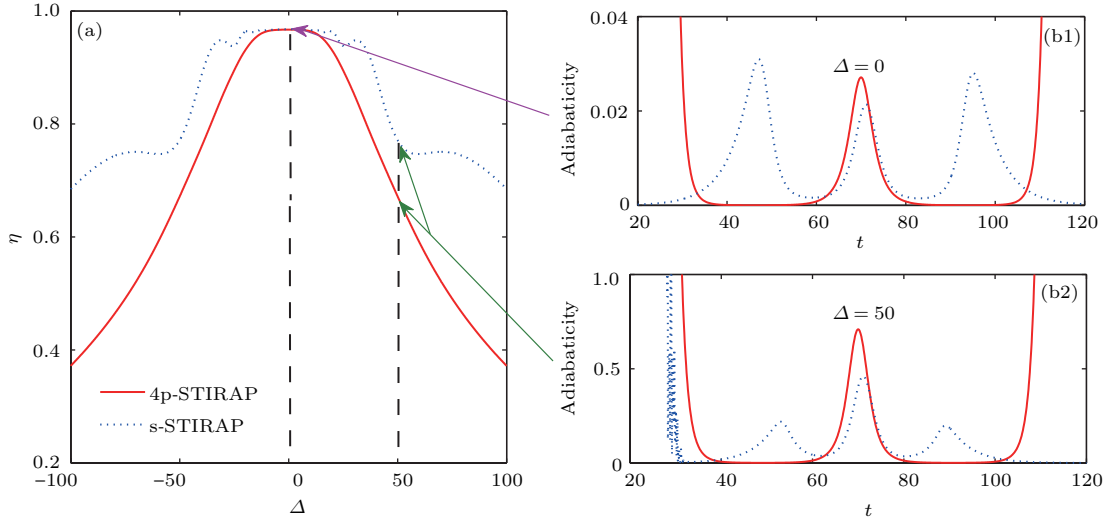


图 3 (网刊彩色) (a) 转移效率  $\eta$  随激发态失谐量  $\Delta$  的变化; (b1) 和 (b2) 分别表征在  $\Delta = 0$  和  $\Delta = 50$  两处的绝热参数  $r(t)$ ; 4p 和 s 方案下的结果分别由红色实线和蓝色虚线表示; 其他相关参数为  $\Delta t = 7.8$  (s 方案),  $\gamma = 0.01$   
 Fig. 3. (color online) (a) The transfer efficiency  $\eta$  as a function of detuning  $\Delta$ ; (b1), (b2) adiabaticity in the cases of  $\Delta = 0$  and  $\Delta = 50$ . Results from 4p-STIRAP and s-STIRAP are presented by red solid and blue dashed lines, respectively. Other relevant parameters are  $\Delta t = 7.8$  (s-STIRAP),  $\gamma = 0.01$ .

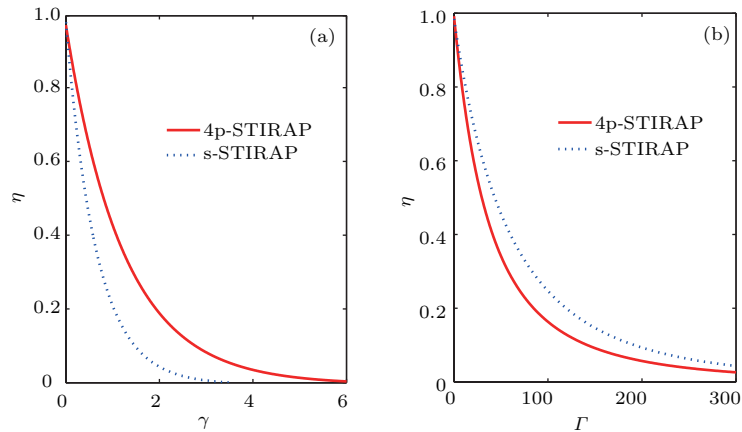


图 4 (a) 转移效率  $\eta$  随亚稳态自发辐射率  $\gamma$  的变化; (b) 转移效率  $\eta$  随激发态自发辐射率  $\Gamma$  的变化; 红色实线和蓝色虚线分别对应 4p 和 s 方案下的结果  
 Fig. 4. The variations of transfer efficiency  $\eta$  with (a) spontaneous decay rate  $\gamma$  of the metastable state and (b) spontaneous decay rate  $\Gamma$  of the excited states. Results from 4p-STIRAP and s-STIRAP are presented by red solid and blue dashed lines, respectively.



3)  $\eta^{4p}(\Gamma) < \eta^s(\Gamma)$ . 在s方案中, 两对连续的逆序列激光脉冲对构成级联型STIRAP, 分别用于实现 $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ ,  $|3\rangle \rightarrow |5\rangle$ 的布居数转移. 脉冲对在各自的 $\Lambda$ -STIRAP中抑制了激发态上的布居, 如 $|2\rangle$ 上的布居被一对逆序列的 $\Omega_1$ 和 $\Omega_2$ 光脉冲作用所抑制. 所以s方案受 $\Gamma$ 的影响较4p方案略小, 转移效率也较高.

### 4.3 激光脉冲幅值

从原理上来说, 提高激光脉冲的幅值可直接促使能级之间耦合强度的增强, 有效改善相干布居数的转移过程, 因此, 研究两种方案下光脉冲幅值的变化对布居转移的影响是非常必要的. 鉴于两种方案下均存在四束激光, 在模拟计算中做如下定义.

4p方案: 令 $\varepsilon^{4p} = \Omega_1^{(0)}/\Omega_4^{(0)}$ ,  $\Omega_2 = \Omega_3 = \Omega_4^{(0)} = \Omega_0$ , 调节 $\Omega_1^{(0)}$ 可改变比值 $\varepsilon^{4p}$ , 见图5(a)内插图所示.

s方案: 令 $\varepsilon^s = \Omega_1^{(0)}/\Omega_2^{(0)} = \Omega_3^{(0)}/\Omega_4^{(0)}$ ,  $\Omega_1^{(0)} = \Omega_3^{(0)}$ ,  $\Omega_2^{(0)} = \Omega_4^{(0)} = \Omega_0$ , 比值 $\varepsilon^s$ 的调谐

可以通过改变 $\Omega_1^{(0)}$ (或 $\Omega_3^{(0)}$ )实现, 见图5(b)插图所示.

图5(a)展示了4p方案下 $\eta^{4p}-\varepsilon^{4p}$ 的关系曲线, 取 $\Omega_0 = 100$ (蓝色实线)、10(红色虚线)、5(绿色点划线), 发现随着 $\varepsilon^{4p}$ 从0.01增加到100,  $\eta^{4p}$ 的变化趋势相同, 即先急速增加到峰值再缓慢减小.  $\varepsilon^{4p}$ 过大( $\varepsilon^{4p} \gg 1$ )或过小( $\varepsilon^{4p} \ll 1$ )都不易于布居数的转移, 这表明实现效率最佳值要求脉冲幅值之比 $\varepsilon^{4p}$ 为1.0附近, 此时 $\Omega_1^{(0)}$ 和 $\Omega_4^{(0)}$ 数值相当, 确保了 $\Omega_1(t)$ 和 $\Omega_4(t)$ 之间的部分重叠面积较合适. 另一方面, 增加幅值 $\Omega_0$ 明显提高效率, 满足 $\eta^{4p}(\Omega_0 = 100) > \eta^{4p}(\Omega_0 = 10) > \eta^{4p}(\Omega_0 = 5)$ . 这是因为亮态本征态的能量正比于光脉冲的拉比频率, 增大幅值能够有效抑制在亮态的布居数促使体系的动力学演化绝对符合准暗态的变化. 这种解释对s方案也适用. 所以, 我们的结论是激光脉冲幅值 $\Omega_0$ 对两种方案下的 $\eta$ 都起到关键作用( $\Omega_0$ 与 $\eta$ 成正关联), 在 $\Omega_0$ 给定的情况下, 适当调谐比值 $\varepsilon^{4p}$ 可以获得 $\eta^{4p}$ 的最佳值.

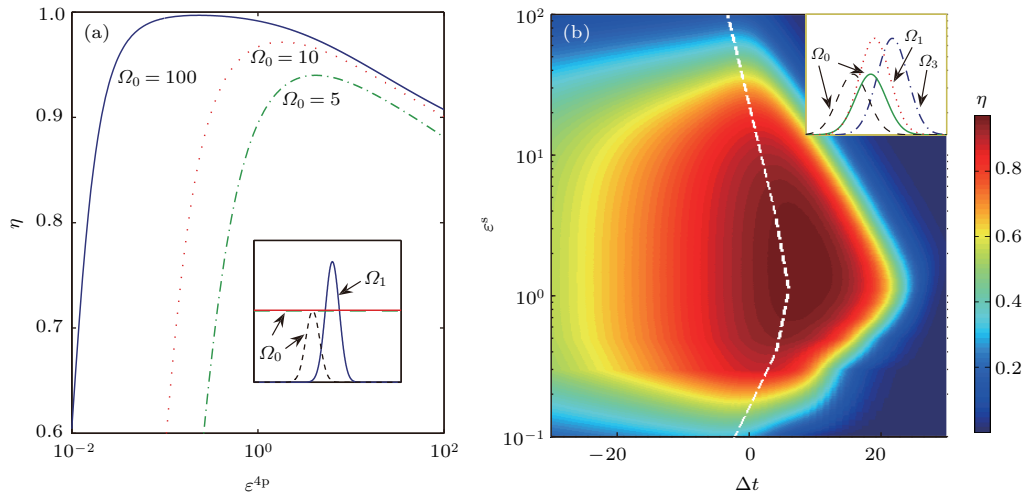


图5 (网刊彩色) (a) 4p方案中,  $\eta$ 随 $\varepsilon^{4p}$ 的变化, 蓝色实线、红色虚线和绿色点划线分别对应 $\Omega_0 = 100, 10, 5$ ; (b) s方案中,  $\eta$ 随 $\varepsilon^s$ 和 $\Delta t$ 的变化,  $\Omega_0 = 10$ ; 图(b)中白色虚线标注出不同幅值下实现最大转移效率所对应 $\Delta t$ 的值; 图(a)和(b)的内插图为激光的幅值示意图

Fig. 5. (color online) The relationship of  $\eta-\varepsilon^{4p}$  is plotted in (a) with  $\Omega_0 = 100$  (blue solid), 10 (red dashed), 5 (green dash-dotted), and  $\eta$  in the space of  $(\Delta t, \varepsilon^s)$  is displayed in panel (b), here  $\Omega_0 = 10$ . The white dashed line in (b) points to exact  $\Delta t$  values when  $\eta$  attains its local maximum under different  $\varepsilon^s$  values. The insets of (a) and (b) show the amplitude of the lasers.

由于s方案下研究激光幅值的影响相对复杂, 除脉冲幅值之比 $\varepsilon^s$ 外脉冲对间的时差 $\Delta t$ 也是重要的考虑参量. 这里, 假定绝对值 $\Omega_0 = 10$ 不变, 研究转移效率 $\eta^s$ 与比值 $\varepsilon^s$ 和时间 $\Delta t$ 的依赖关系, 结果见图5(b). 发现, 当 $\varepsilon^s$ ( $\varepsilon^s \in (0.1, 100)$ )和 $\Delta t$ ( $\Delta t \in (-30, 30)$ )同时变化时 $\eta^s$ 随之变化, 全

局最大值 $\eta^s \approx 0.971$ 出现在 $\varepsilon^s \approx 1.6$ ,  $\Delta t \approx 8.2$ 处, 偏离该处都使得 $\eta^s$ 明显减小. 尤其是当 $\Delta t > 20$ 时 $\eta^s$ 迅速减小为0, 不依赖于 $\varepsilon^s$ 的变化, 原因是两个脉冲对之间重叠面积几乎为零, 布居在经过第一个 $\Lambda$ -STIRAP后无法继续第二个 $\Lambda$ -STIRAP过程, 最终经由态 $|3\rangle$ 的自发辐射损失. 图5(b)中白色虚

线标注了给定  $\varepsilon^s$  值下  $\eta^s$  的局域最大值所对应  $\Delta t$  数值的轨迹, 满足  $-10 < \Delta t < 10$ . 因为该范围内激光脉冲对的重叠面积较合适, 易实现布居的顺利转移. 所以, 与 4p 方案不同, s 方案的关键是控制光脉冲对的时间间隔  $\Delta t$ , 这是实现高效转移的必要条件. 此外, 选择合适的脉冲幅值之比  $\varepsilon^s$  在 1.0 附近有利于搜寻到  $\eta^s$  的全局最大值.

## 5 方案可行性分析与应用

### 5.1 实验可行性

以  $^{87}\text{Rb}_2$  分子为例, 表 1 列举了具体的分子能级跃迁参数和相应的跃迁电偶极矩数值. 初始粒子制备在初态  $|1\rangle = X^1 \sum_g^+(v = 116)$  上, 转移的目标态是  $|5\rangle = X^1 \sum_u^+(v = 0)$ , 历经的中间能级分别为  $|2\rangle = A^1 \sum_u^+(v' = 152)$ ,  $|3\rangle = X^1 \sum_g^+(v = 50)$  和  $|4\rangle = A^1 \sum_u^+(v' = 21)$ .

表 1  $^{87}\text{Rb}_2$  分子跃迁通道以及对应的电偶极矩  
Table 1. Energy levels for the transition and the corresponding dipole moments in  $^{87}\text{Rb}_2$ .

$i$	$v-v'$ transition	$D_{v,v'i} (D)$
1	$X^1 \sum_g^+(v = 116) - A^1 \sum_u^+(v' = 152)$	0.55
2	$A^1 \sum_u^+(v' = 152) - X^1 \sum_g^+(v = 50)$	0.64
3	$X^1 \sum_g^+(v = 50) - A^1 \sum_u^+(v' = 21)$	0.53
4	$A^1 \sum_u^+(v' = 21) - X^1 \sum_u^+(v = 0)$	2.37

已知能级的自发辐射率分别为  $\gamma = 6 \times 10^4$  Hz,  $\Gamma = 3 \times 10^7$  Hz, 光脉冲拉比频率的幅值均为  $\Omega_i^{(0)} = 1.6 \times 2\pi$  MHz. 根据光功率的表达式  $I_i = c(\Omega_i^{(0)})^2 \hbar / D_{v,v'i}^2 / 8\pi$  [36], 其中  $c$  为真空中的光速,  $\hbar$  为普朗克常量. 可计算实验上使用的激光幅值功率:  $I_1 \sim 0.17$  W/cm<sup>2</sup>,  $I_2 \sim 0.13$  W/cm<sup>2</sup>,  $I_3 \sim 0.19$  W/cm<sup>2</sup> 和  $I_4 \sim 0.01$  W/cm<sup>2</sup>. 因此求得 4p (s) 方案下实际的转移效率为:  $\eta^{4p} \approx 0.473$ ,  $\eta^s \approx 0.56$  (计算中激光的时序参数均取优化数值). 此数值与实验文献 [11] 的结果较符合, 却与理论预估的最佳值  $\eta \sim 0.97$  相距甚远, 主要原因是  $\Gamma$  的实际数值扩大了 30 倍 (理论计算  $\Gamma = 10^6$  Hz),

导致一部分粒子布居经由激发态快速的自发辐射过程损失. 解决问题的方法是选择更稳定的中间激发态能级, 例如, 里德伯分子能级. 据目前实验测量里德伯分子能级寿命均在 20  $\mu\text{s}$  左右 ( $\Gamma \sim 10^6$  Hz) [37,38], 能够确保粒子布居的转移效率达 0.90 以上.

### 5.2 纠缠态的制备

纠缠态已被广泛应用于很多光学操控系统中, 例如, 利用 STIRAP 技术实现囚禁原子与单光子之间的纠缠 [39], 基于暗态在两原子系统中实现三态纠缠 [40] 等. 由 (5) 式可知, 约化后的准暗态  $|\omega_1\rangle \approx \sin \beta |1\rangle + \cos \beta |5\rangle$  是可控纠缠态的标准形式. 根据  $\beta$  的定义:  $\beta = \arctan(\Omega_2 \Omega_4 / (\Omega_1 \Omega_3))$ , 调节激光脉冲幅值即可改变  $\beta$  的数值, 不同的  $\beta$  值对应态  $|1\rangle$ ,  $|5\rangle$  上不同的布居分配比, 产生任意纠缠态. 极限的情况下, 当  $\beta = \pi/2$  或 0 时,  $|\omega_1\rangle \approx |1\rangle$  或  $|\omega_1\rangle \approx |5\rangle$  非纠缠; 当  $\beta$  在  $(0, \pi/2)$  之间连续改变时, 有望实现任意纠缠态的制备.

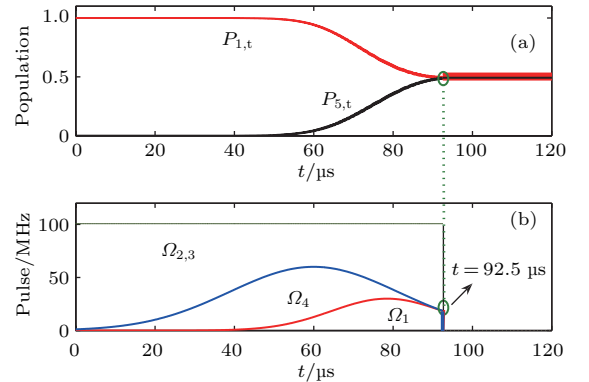


图 6 (网刊彩色) (a) 粒子布居数  $P_{1,t}$  (红色) 和  $P_{5,t}$  (黑色) 随时间演化的曲线, 当  $t > 92.5 \mu\text{s}$  时, 最终可实现粒子数的分布是  $P_{1,\infty} = P_{5,\infty} = 0.5$ ; (b) 该过程所需的激光脉冲时序分布图; 具体的激光参数为:  $\Omega_2 = \Omega_3 = 100$  MHz,  $\Omega_i(t) = \Omega_i^{(0)} \exp[-(t - t_i)^2 / (T_i)^2]$  ( $i = 1, 4$ ), 其中,  $\Omega_1^{(0)} = 30$  MHz,  $\Omega_4^{(0)} = 60$  MHz,  $t_1 = 78.5 \mu\text{s}$ ,  $t_4 = 60 \mu\text{s}$ ,  $T_1 = 20 \mu\text{s}$ ,  $T_4 = 30 \mu\text{s}$ ; 当  $t = 92.5 \mu\text{s}$  时, 关闭所有激光, 之后的布居数保持不变

Fig. 6. (color online) (a) Time-dependent population dynamics during the process of entangled state preparation. Populations  $P_{1,t}$  and  $P_{5,t}$  are respectively marked by red and black lines. The final stable population distribution is  $P_{1,\infty} = P_{5,\infty} = 0.5$  after  $t = 92.5 \mu\text{s}$ . (b) The required light pulse sequences with laser parameters:  $\Omega_2 = \Omega_3 = 100$  MHz,  $\Omega_i(t) = \Omega_i^{(0)} \exp[-(t - t_i)^2 / (T_i)^2]$  ( $i = 1, 4$ ) where  $\Omega_1^{(0)} = 30$  MHz,  $\Omega_4^{(0)} = 60$  MHz,  $t_1 = 78.5 \mu\text{s}$ ,  $t_4 = 60 \mu\text{s}$ ,  $T_1 = 20 \mu\text{s}$ ,  $T_4 = 30 \mu\text{s}$ . At  $t = 92.5 \mu\text{s}$ , all lasers are turned off, giving rise to stable population distributions.

下面举例说明如何产生最大纠缠态  $|\omega_1\rangle \approx 1/\sqrt{2}|1\rangle + 1/\sqrt{2}|5\rangle$ . 初始条件下, 粒子完全制备在态  $|1\rangle$  上, 即  $|\omega_1\rangle \approx |1\rangle (P_{1,t} = 1.0)$ . 若  $\beta$  从  $\pi/2$  调至  $\pi/4$ , 便能实现  $P_{1,t} = P_{5,t} = 0.5$  完成制备. 由 (4a) 和 (4b) 式中  $\alpha$  和  $\beta$  的定义可得 (采用 4p 方案), 假设  $\Omega_1$  和  $\Omega_4$  是一对下降沿部分重叠的高斯光,  $\Omega_2$  和  $\Omega_3$  是等幅的连续光且幅值远大于  $\Omega_1$  和  $\Omega_4$ . 光脉冲的时序如图 6 (b) 所示, 具体的激光参数详见注释. 初始情况  $P_{1,t} = 1.0$ ,  $P_{5,t} = 0$ , 粒子与激光场发生相互作用, 当  $t = 92.5 \mu\text{s}$  时关闭所有激光, 此时布居数恰好均匀分配在态  $|1\rangle$  和  $|5\rangle$ , 使得  $P_{1,\infty} = P_{5,\infty} = 0.5$  即得目标纠缠态  $|\omega_1\rangle$ . 图 6 (a) 描绘了  $P_{1,t}$  和  $P_{5,t}$  随时间演化的关系曲线.

## 6 结 论

基于一个五能级级联系统, 详细研究了 4p(s) 两种激光脉冲时序方案实现粒子布居高效转移的过程. 通过解析求解系统的准暗态本征态和对应的绝热条件, 详细讨论了各种实验参量包括激发态能级失谐量、中间能级的自发辐射率、激光脉冲的幅值以及光脉冲对之间的相对时差对转移效率的影响. 研究重点旨在比较 4p 和 s 方案在实施过程的区别和各自优缺点, 利用理论分析对实验结果进行解释和预测. 研究发现, 实验中观测到  $\text{Cs}_2$  转移效率较低的主要原因是受激发态能级自发辐射率的影响, 粒子在转移过程中无法绝对地绝热跟随准暗态, 存在部分粒子因激发而损失的情况.

在两种方案的实际操作上, 4p 方案可控参量少, 相对简单, 对中间亚稳态能级自发辐射率的依赖程度小, 缺点是准暗态的绝热性易受激发态能级失谐量的影响; s 方案可控参量较多操作相对复杂, 因为它依赖于两个  $\Lambda$ -STIRAP 的级联, 受中间亚稳态能级性质的影响较大, 优点是绝热性相对稳定, 不易受激发态能级失谐量的影响. 除此之外, 两种方案下都可以利用参量优化实现理论预期的最佳值  $\eta^{4p} = \eta^s \approx 0.97$ . 通过对方案的可行性和纠缠态制备的讨论, 我们认为该 STIRAP 技术在目前的量子信息领域有一定的应用前景, 如实现高保真度的量子可控纠缠态. 因此下一步的研究目标可以放在继续拓展它们在量子信息、量子纠缠、精密测量相关领域的应用, 也为实验上进一步探索超冷 (极性) 分子的产生方法提供了更多理论上的依据.

## 参考文献

- [1] Gaubatz U, Rudecki P, Schieman S, Bergmann K 1990 *J. Chem. Phys.* **92** 5363
- [2] Vitanov N V, Rangelov A A, Shore B W, Bergmann K 2017 *Rev. Mod. Phys.* **89** 015006
- [3] Yun J, Li C, Chung H, Choi J, Cho M 2015 *Chem. Phys. Lett.* **627** 20
- [4] Vewinger F, Heinz M, Garcia-Fernandez R, Vitanov N V, Bergmann K 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 213001
- [5] Toyoda K, Uchida K, Noguchi A, Haze S, Urabe S 2013 *Phys. Rev. A* **87** 052307
- [6] Qian J, Zhang W, Ling H Y 2010 *Phys. Rev. A* **81** 013632
- [7] Zhai J, Zhang L, Zhang K, Qian J, Zhang W 2015 *J. Opt. Soc. Am. B* **32** 2164
- [8] Di Stefano P G, Paladino E, Pope T J, Falci G 2016 *Phys. Rev. A* **93** 051801
- [9] Jamonneau P, Hétet G, Dréau, Roch J F, Jacques V 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 043603
- [10] Yale C G, Buckley B B, Christle D, Burkard G, Heremans F J, Bassett L C, Awschalom D D 2013 *PNAS* **110** 7595
- [11] Danzl J G, Mark M J, Haller E, Gustavsson M, Hart R, Aldegunde J, Hutson J M Nägerl H C 2010 *Nat. Phys.* **6** 265
- [12] Chen T, Zhu S, Li X, Qian J, Wang Y 2014 *Phys. Rev. A* **89** 063402
- [13] Møller D, Sørensen J L, Thomsen J B, Drewsen M 2007 *Phys. Rev. A* **76** 062321
- [14] Webster S C, Weidt S, Lake K, McLoughlin J J, Hensinger W K 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 140501
- [15] Theuer H, Bergmann K 1998 *Eur. Phys. J. D* **2** 279
- [16] Kulin S, Saubamea B, Peik E, Lawall J, Hijmans T W, Leduc M, Cohen-Tannoudji C 1997 *Phys. Rev. Lett.* **78** 4185
- [17] Nölleke C, Neuzner A, Reiserer A, Hahn C, Rempe G, Ritter S 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 140403
- [18] Novikov S, Sweeney T, Robinson J E, Premaratne S P, Suri B, Wellstood F C, Palmer B S 2015 *Nat. Phys.* **12** 75
- [19] Ospelkaus S, Pe'Er A, Ni K K, Zirbel J J, Neyenhuis B, Kotochigova S, Jin D S 2008 *Nat. Phys.* **4** 622
- [20] Ni K K, Ospelkaus S, de Miranda M H G, Pe'Er A, Neyenhuis B, Zirbel J J, Ye J 2008 *Science* **322** 231
- [21] Lang F, Winkler K, Strauss C, Grimm R, Denschlag J H 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 133005
- [22] Stellmer S, Pasquiou B, Grimm R, Schreck F 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 115302
- [23] Shore B W 2011 *Manipulating Quantum Structures Using Laser Pulses* (Cambridge: Cambridge University Press) pp57–60
- [24] Aikawa K, Akamatsu D, Hayashi M, Oasa K, Kobayashi J, Naidon P, Inouye S 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 203001
- [25] Molony P K, Gregory P D, Ji Z, Lu B, Köppinger M P, Le Sueur C R, Cornish S L 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 255301
- [26] Ji Z, Zhang H, Wu J, Yuan J, Yang Y, Zhao Y, Jia S 2012 *Phys. Rev. A* **85** 013401

- [27] Park J W, Will S A, Zwiernik M W 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 205302
- [28] Guo M, Zhu B, Lu B, Ye X, Wang F, Vexiau R, Wang D 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 205303
- [29] Ciamei A, Bayerle A, Chen C C, Pasquiou B, Schreck F 2017 *Phys. Rev. A* **96** 013406
- [30] Liao W T, Pálffy A, Keitel C H 2011 *Phys. Lett. B* **705** 134
- [31] Oreg J, Bergmann K, Shore B W, Rosenwaks S 1992 *Phys. Rev. A* **45** 4888
- [32] Viteau M, Chotia A, Allegrini M, Bouloufa N, Dulieu O, Comparat D, Pillet P 2008 *Science* **321** 232
- [33] Klein J, Beil F, Halfmann T 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 113003
- [34] Du Y X, Liang Z T, Huang W, Yan H, Zhu S L 2014 *Phys. Rev. A* **90** 023821
- [35] Pu H, Maenner P, Zhang W, Ling H Y 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 050406
- [36] Meystre P 2001 *Atom Optics* (New York: Springer Science & Business Media) pp4–7
- [37] Butscher B, Bendkowsky V, Nipper J, Balewski J B, Kukota L, Löw R, Rost J M 2011 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **44** 184004
- [38] Bendkowsky V, Butscher B, Nipper J, Shaffer J P, Löw R, Pfau T 2009 *Nature* **458** 1005
- [39] Volz J, Weber M, Schlenk D, Rosenfeld W, Vrana J, Saucke K, Weinfurter H 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 030404
- [40] Zhen B Y, Huai Z W, Shi B Z 2010 *Chin. Phys. B* **19** 094205

# Theoretical research on an efficient population transfer based on two different laser pulse sequences\*

Zhang Lu Yan Lu-Yao Bao Hui-Han Chai Xiao-Qian Ma Dan-Dan Wu Qian-Nan  
Xia Ling-Chen Yao Dan Qian Jing<sup>†</sup>

(Quantum Institute for Light and Atoms, Department of Physics and Material Science, East China Normal University,  
Shanghai 200062, China)

( Received 23 May 2017; revised manuscript received 11 July 2017 )

## Abstract

A quantum gas of ultracold molecules, with long-range and anisotropic interactions, will enable a series of fundamental studies in physics and chemistry. In particular, samples of ground-state molecules at ultralow temperatures and high number densities will facilitate the explorations of a large number of many-body physical phenomena and applications in quantum information processing. However, due to the lack of efficiently cooling techniques such as laser cooling for atomic gases, high number densities for ultracold molecular samples are not readily attainable. Associating ultracold atoms to weakly bound dimer molecules via Feshbach resonance and subsequently transferring them to a wanted molecular ro-vibronic ground state by a stimulated Raman adiabatic passages (STIRAP) have proved to be an effective way in producing ideal ultracold molecular samples. As a typical illustration, in a recent study (2010 *Nat. Phys.* **6** 265) Danzl et al. experimentally realized the preparation of Cs<sub>2</sub> molecule into its ro-vibronic ground state via two different multi-level STIRAPs: one is based on a single conversion route and the others are based on a cascade-connected route (labeled by 4p-STIRAP and s-STIRAP, respectively). In this work, we present a theoretical study for these two STIRAP schemes, focusing on the differences in physical principle and realistic performance between them. On the one hand, according to the theoretical approach of quasi-dark eigenstates, we conclude that a highly efficient population transfer is achievable in both schemes. On the other hand, by systematically studying the influences of the relevant parameters, including the spontaneous decays and the detunings from the intermediate states, and the temporal sequence and the amplitude of the laser pulses, we disclose their respective advantages and weaknesses in the realistic implementation. We theoretically predict that for both schemes their maximal conversion efficiencies each can attain 0.97 as long as the spontaneous decays from the intermediate excited states are sufficiently suppressed. Yet considering the fact that the already implemented efficiency is only around 0.6 for both schemes, there is still room for optimization, e.g. using stable Rydberg energy levels in future experiment. Furthermore, the success of these two schemes can provide a new route to the controllable entanglement preparation, opening more applications in the fields of quantum logic gate and so on.

**Keywords:** stimulated Raman adiabatic process, population transfer, adiabatic condition, entangled state

**PACS:** 33.80.Be, 42.50.Hz, 32.80.Rm, 42.65.Dr

**DOI:** 10.7498/aps.66.213301

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11474094, 11104076).

† Corresponding author. E-mail: [jqian1982@gmail.com](mailto:jqian1982@gmail.com)