

## 利用多光子跃迁控制基态 HF 分子布居转移\*

王荣 修俊玲 牛英煜†

(大连交通大学理学院, 辽宁 116028)

(2012 年 12 月 6 日收到; 2013 年 1 月 6 日收到修改稿)

采用波包动力学方法研究了 HF 分子基电子态的多光子跃迁. 激光场由两束频率比为 1:2 的重合红外脉冲构成. 态  $|0,0\rangle$  作为初始态, 态  $|4,0\rangle$  与态  $|4,2\rangle$  分别作为目标态. 计算结果表明, 通过选取不同的共振频率, 可以控制布居跃迁至不同的目标态. 两束脉冲间的初相位差可以控制布居转移概率. 当初相位差为  $\pi/2$  的偶数倍时, 布居转移概率为最大值. 当初相位差为  $\pi/2$  的奇数倍时, 布居转移概率为最小值. 初相位差对于态  $|4,0\rangle$  的布居影响大于态  $|4,2\rangle$ .

关键词: 多光子跃迁, 初相位, 布居转移, 波包

PACS: 33.80.Be, 42.50.Hz

DOI: 10.7498/aps.62.093301

## 1 引言

利用激光场控制分子的振转态布居是光场与物质相互作用的一个重要研究方向<sup>[1-4]</sup>. 通过适当的设计激光场或优化激光场参数, 使分子布居由初始的振转态跃迁至目标振转态, 从而实现对分子布居分布的控制. 利用激光场控制分子布居转移主要有两种方式. 一种方式是分子在外场的作用下, 受激辐射光子, 分子布居由能级较高的振转态跃迁至能级较低的振转态, 例如超冷分子的光缔合反应<sup>[5,6]</sup>. 另一种方式是分子通过吸收光子, 由较低的能级跃迁至较高能级, 实现布居转移, 例如通过制备高振转态分子实现光解离<sup>[7]</sup>. 除了以上两种方式外, 还有同时利用辐射与吸收光子的方法控制布居转移, 即“pump-dump”方法, 例如绝热通道技术中的“Λ”体系<sup>[8-10]</sup>.

用于控制分子布居转移的激光场通常由单束或多束脉冲构成. 单束脉冲常用于研究光缔合过程中基电子态的布居转移<sup>[11,12]</sup>. 在多束脉冲的作用下, 分子布居由初始态跃迁至目标态通常经由一个或多个中间态. 采用多束部分重合的脉冲可以减小中间态的布居, 提高布居转移概率<sup>[13-15]</sup>. 例如,

Andrianov 等<sup>[16]</sup>利用 5 束相互部分重合的脉冲将分子由基电子态的  $|0,0\rangle$  态激发至具有较高能级的  $|22,5\rangle$  态, 并最终实现解离. 多束脉冲体系中, 两束脉冲构成的光场应用最为广泛. 例如两束部分重合的逆序脉冲可以有效的控制分子布居在电子态间转移<sup>[17-21]</sup>, 中间态只有少量布居出现. 我们<sup>[22]</sup>也研究了利用频率比为 1:3 的两束完全重合脉冲, 控制分子布居从初始态  $|0,0\rangle$  跃迁至目标态  $|3,1\rangle$ . 计算结果表明, 两束重合脉冲可以相互增强, 使布居转移概率提高 12%, 且两束脉冲间的初相位差对布居转移影响较大.

本文主要采用频率比为 1:2 的两束重合脉冲控制分子布居转移, 研究对象为 HF 分子. 布居转移分别经由双光子与四光子跃迁完成. 对于频率比为 1:3 的光场, 受跃迁选择定则及频率比的限制, 脉冲 1 激发的布居转移只能通过单光子跃迁来完成. 对于频率比为 1:2 的光场, 脉冲 1 控制的布居转移可通过双光子跃迁来实现. 因此可以使布居由初始态  $v=0$  跃迁至较高的目标态  $v=4$ . 同时, 双光子跃迁还能产生较多的跃迁路径. 通过调节脉冲频率, 可以使布居跃迁至两不同的目标态  $|4,0\rangle$  与  $|4,2\rangle$ . 计算结果表明, 频率比为 1:2 的两束重合脉冲可以使布居转移概率提高 50%.

\* 国家自然科学基金(批准号: 11047177)资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: niuyy@djtu.edu.cn

## 2 理论方法

在我们的模型中, 采用红外线性偏振脉冲激发分子布居转移. 在线性偏振光场作用下, 磁量子数改变为 0. 在 Born–Oppenheimer 近似下, 光场与分子相互作用的二维哈密顿可写为

$$\begin{aligned}\hat{H} &= \hat{T}_R + \hat{T}_\theta + \hat{V}(R) + \hat{W}(R) \\ &= -\frac{\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2}{\partial R^2} + \frac{\hat{j}^2(\theta)}{2mR^2} \\ &\quad + \hat{V}(R) - \mu(R) \cos(\theta) \varepsilon(t),\end{aligned}\quad (1)$$

其中  $m$  为 HF 分子约化质量,  $R$  为原子核间距离,  $\hat{j}$  为角动量算符,  $\theta$  为分子轴与光场轴间的夹角,  $\mu(R)$  为分子永久偶极矩. 由于红外脉冲频率较低, 只能引起基电子态振转能级间的布居跃迁, 因此在计算中只考虑基电子态. 基电子态势能  $\hat{V}(R)$  由 Morse 方程来描述. 基电子态永久偶极矩  $\mu(R)$  可表示为  $\mu(R) = \mu_0 R \exp(-\xi R^4)$ . 势能方程与永久偶极矩方程参数引自文献 [16].

光场由两束整形脉冲构成, 可写为

$$\begin{aligned}\varepsilon(t) &= E_1 \sin^2 \left[ \frac{\pi(t-t_1)}{\tau_1} \right] \cos[\omega_1(t-t_1) + \phi_1] \\ &\quad + E_2 \sin^2 \left[ \frac{\pi(t-t_2)}{\tau_2} \right] \cos[\omega_2(t-t_2) + \phi_2],\end{aligned}\quad (2)$$

上式中,  $E_{1(2)}$ ,  $t_{1(2)}$ ,  $\tau_{1(2)}$ ,  $\omega_{1(2)}$  和  $\phi_{1(2)}$  分别为两束脉冲的振幅, 开始时间, 持续时间, 频率和初相位. 在计算中, 两束脉冲完全重合, 且开始时间为 0, 因此有  $t_1 = t_2 = 0$ ,  $\tau_1 = \tau_2$ . 两束脉冲间的初相位差为  $\Delta\phi = \phi_1 - \phi_2$ .

将 (1) 式作用于初始波函数, 利用分裂算符方法 [23,24] 可得到随时间演化的波函数, 可表达为

$$\begin{aligned}\Psi(t + \Delta t) &= e^{-i\Delta t[\hat{T}_R + \hat{T}_\theta + \hat{V}(R) + \hat{W}(R, \theta)]/\hbar} \Psi(t) \\ &\approx e^{-i\Delta t \hat{T}_R/2\hbar} e^{-i\Delta t \hat{T}_\theta/2\hbar} e^{-i\Delta t[\hat{V}(R) + \hat{W}(R, \theta)]/\hbar} \\ &\quad \times e^{-i\Delta t \hat{T}_\theta/2\hbar} e^{-i\Delta t \hat{T}_R/2\hbar} \Psi(t).\end{aligned}\quad (3)$$

势能算符  $\hat{V}(R)$  和场与分子相互作用算符  $\hat{W}(R, \theta)$  可直接作用于坐标空间表象下的波函数. 运用快速傅里叶变换方法 [25] 及 DVR [26] 方法将波函数分别变换至动量空间表象与多项式表象. 在此两表象下, 算符  $\hat{T}_R$  与  $\hat{T}_\theta$  可直接作用于波函数.

初始波函数可由径向与角向波函数的直积来获得. 其中角向波函数由勒让德多项式  $P_j(\cos \theta)$  来描述, 径向波函数及其本征值可通过 FGH 方法 [27] 来获得. 基电子态各束缚能级的布居为

$$P_{v,j} = |\langle v, j | \Psi(t) \rangle|^2. \quad (4)$$

## 3 结果与讨论

在我们的计算中, 初始时刻分子处于  $|0, 0\rangle$  态. 两束完全重合的脉冲频率比为  $\omega_1:\omega_2 = 2:1$ . 第一束脉冲激发分子吸收两个光子, 布居从初始态  $|0, 0\rangle$ , 经由中间态  $|2, 1\rangle$ , 跃迁至态  $|4, 0\rangle$  或态  $|4, 2\rangle$ , 其跃迁路径为

$$\begin{aligned}|0, 0\rangle &\rightarrow (\text{onephoton}) \rightarrow |2, 1\rangle \\ &\rightarrow (\text{onephoton}) \rightarrow \begin{cases} |4, 0\rangle, \\ |4, 2\rangle. \end{cases}\end{aligned}\quad (5)$$

第二束脉冲激发分子吸收四个光子, 使布居经由四个中间态  $|1, 1\rangle$ ,  $|2, 0\rangle$ ,  $|2, 2\rangle$  和  $|3, 1\rangle$ , 跃迁至态  $|4, 0\rangle$ , 其跃迁路径为

$$\begin{aligned}|0, 0\rangle &\rightarrow (\text{onephoton}) \rightarrow |1, 1\rangle \rightarrow (\text{onephoton}) \\ &\rightarrow \begin{cases} |2, 0\rangle \\ |2, 2\rangle \end{cases} \rightarrow (\text{onephoton}) \\ &\rightarrow |3, 1\rangle \rightarrow (\text{onephoton}) \rightarrow |4, 0\rangle,\end{aligned}\quad (6)$$

或使布居经由五个中间态  $|1, 1\rangle$ ,  $|2, 0\rangle$ ,  $|2, 2\rangle$ ,  $|3, 1\rangle$  和  $|3, 3\rangle$ , 跃迁至态  $|4, 2\rangle$ , 其跃迁路径为

$$\begin{aligned}|0, 0\rangle &\rightarrow (\text{onephoton}) \rightarrow |1, 1\rangle \rightarrow (\text{onephoton}) \\ &\rightarrow \begin{cases} |2, 0\rangle \rightarrow (\text{onephoton}) \rightarrow |3, 1\rangle \\ |2, 2\rangle \rightarrow (\text{onephoton}) \rightarrow \begin{cases} |3, 1\rangle \\ |3, 3\rangle \end{cases} \end{cases} \rightarrow (\text{onephoton}) \rightarrow |4, 2\rangle.\end{aligned}\quad (7)$$

脉冲的频率可由目标态与初始态间的共振频率来获得

$$\omega = \frac{E_{v,j} - E_{0,0}}{n}, \quad (8)$$

上式中,  $E_{v,j}$  为目标态  $|v,j\rangle$  本征值,  $E_{0,0}$  为初始态  $|0,0\rangle$  本征值,  $n$  为光子数. 从 (8) 式可以看出, 通过选取不同的脉冲频率, 可以使布居跃迁至不同的目标态. 在实际的计算中, (8) 式得到的频率通常需要进行优化<sup>[2]</sup>, 以使目标态布居达到最大值.

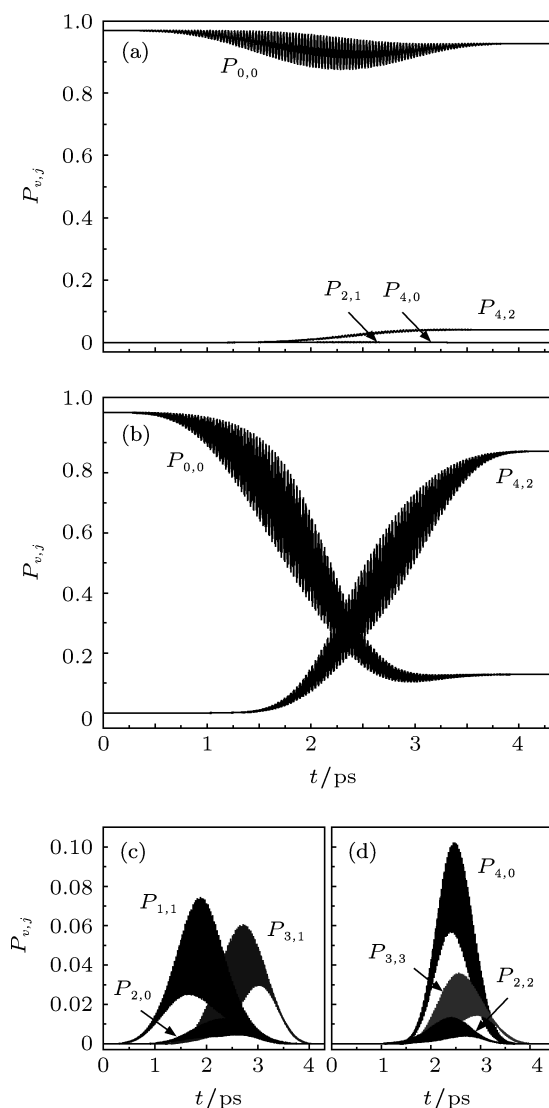


图1 以  $|4,2\rangle$  为目标态, 单束脉冲控制下的布居变化 (a) 脉冲 1 控制下的双光子跃迁; (b)–(d) 脉冲 2 控制下的四光子跃迁. 两束脉冲的优化参数为:  $E_1 = 133.44$  MV/cm,  $E_2 = 141.90$  MV/cm,  $\omega_1 = 7459.50$   $\text{cm}^{-1}$ ,  $\omega_2 = 3729.75$   $\text{cm}^{-1}$ ,  $\tau_1 = \tau_2 = 4.26$  ps,  $\phi_1 = \phi_2 = 0$

我们首先选取  $|4,2\rangle$  作为目标态, 其对应的脉冲频率分别为  $\omega_1 = 7459.50$   $\text{cm}^{-1}$ ,  $\omega_2 =$

$3729.75$   $\text{cm}^{-1}$ . 其他优化的脉冲参数见图 1. 作为对比, 我们分别计算了脉冲 1 和脉冲 2 先后单独控制下的布居转移与两束脉冲同时控制下的布居转移, 结果分别显示在图 1 与图 2 中.

图 1 为单束脉冲控制下, 初始与目标态间的布居转移. 其中, 图 1(a) 为双光子跃迁, 图 1(b)–(d) 为四光子跃迁. 从图 1(a) 可以看出, 双光子跃迁概率较低, 当脉冲结束时, 目标态  $|4,2\rangle$  的最终布居仅为 0.041. 态  $|4,0\rangle$  和中间态  $|2,1\rangle$  出现布居的概率几乎为零. 图 1(b) 中, 四光子跃迁的概率较大, 目标态  $|4,2\rangle$  的最终布居为 0.871. 图 1(c) 和 (d) 为四光子跃迁过程中, 各中间态的布居变化. 从图中可以看出, 中间态  $|1,1\rangle$  出现布居的时间约为 0.31 ps, 早于其他各中间态. 中间态  $|2,0\rangle$  与  $|2,2\rangle$  出现布居的时间分别为 0.89 ps 与 1.13 ps. 对于跃迁  $|1,1\rangle \rightarrow |2,0\rangle$  和  $|1,1\rangle \rightarrow |2,2\rangle$ , 脉冲频率与其共振频率间的失谐为  $(\chi_{2,0} - \chi_{1,1}) - \omega_2 = 21.84$   $\text{cm}^{-1}$  和  $(\chi_{2,2} - \chi_{1,1}) - \omega_2 = -137.46$   $\text{cm}^{-1}$ . 由于跃迁  $|1,1\rangle \rightarrow |2,0\rangle$  的失谐较小, 使得态  $|2,0\rangle$  的布居出现的时间早于态  $|2,2\rangle$ . 从跃迁路径 (7) 可知, 中间态  $|3,1\rangle$  的布居同时来自于两个态  $|2,0\rangle$  与  $|2,2\rangle$ . 中间态  $|3,3\rangle$  的布居只来自于一个态  $|2,2\rangle$ . 因此, 态  $|3,1\rangle$  布居的最大值大于态  $|3,3\rangle$ . 除各中间态外, 图 1(d) 还给出了态  $|4,0\rangle$  的布居变化. 虽然在四光子跃迁过程中部分布居转移到了态  $|4,0\rangle$ , 并使其布居最大值达到 0.041. 但由于失谐较大, 态  $|4,0\rangle$  最终的布居为零.

图 2 为两束重合脉冲同时作用下的布居分布. 从图 2(a) 可以看出, 两束重合脉冲的作用下, 目标态  $|4,2\rangle$  的最终布居达到了 0.982. 在图 1 中, 两单束脉冲作用下, 目标态  $|4,2\rangle$  布居的和为 0.912. 与单束脉冲相比, 两束重合脉冲可以将布居转移概率提高 8%. 除了跃迁路径 (5) 和 (7) 外, 两束脉冲还可引起额外的跃迁路径, 例如:  $|0,0\rangle \rightarrow |1,1\rangle \rightarrow |3,2\rangle$ ,  $|0,0\rangle \rightarrow |2,1\rangle \rightarrow |3,0\rangle$ . 这些额外的跃迁使图 2(a) 中的布居变化曲线震荡较为明显. 单束脉冲作用下, 中间态  $|2,1\rangle$  布居出现的概率为零. 在图 2(d) 中, 中间态  $|2,1\rangle$  出现了少量布居. 这表明, 两束脉冲作用下, 跃迁路径 (5) 的布居转移被增强. 此外, 两束脉冲作用下, 态  $|4,0\rangle$  上出现的布居也被增加. 除中间态  $|2,1\rangle$  以外, 比较图 1 与图 2 可知, 其他中间态布居变化基本相同.

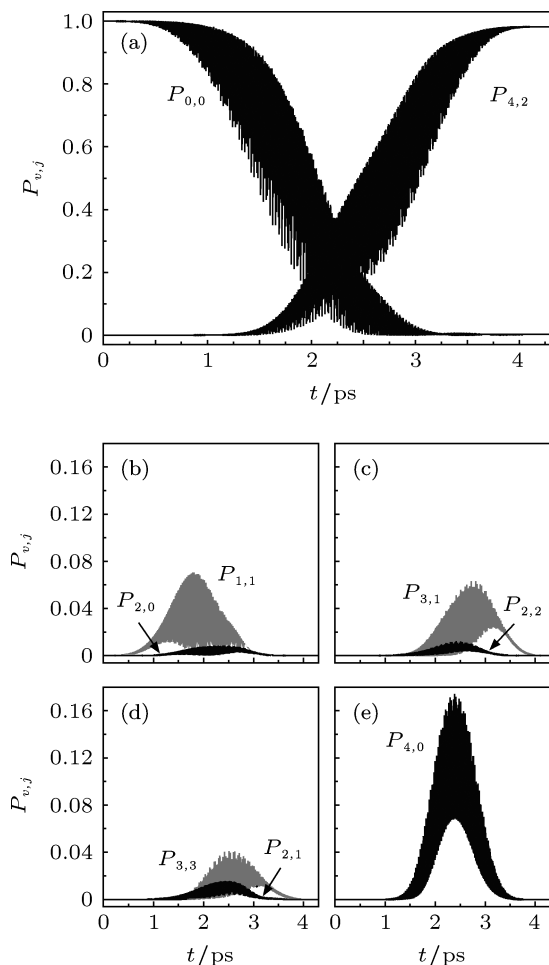


图2 以  $|4,2\rangle$  为目标态, 两束重合脉冲同时控制下的布居变化 (a) 初始态  $|0,0\rangle$  与目标态  $|4,2\rangle$  的布居变化; (b)–(d) 中间态的布居变化; (e) 态  $|4,0\rangle$  的布居变化. 脉冲参数与图 1 相同

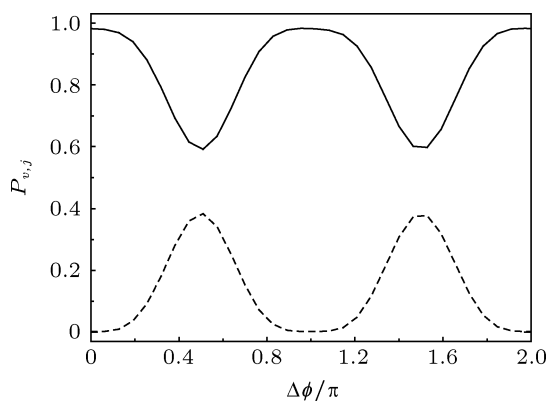


图3 初始态  $|0,0\rangle$  与目标态  $|4,2\rangle$  最终布居与两束脉冲初相位差  $\Delta\phi$  之间的变化关系 (图中虚线为初始态布居, 实线为目标态布居)

图 3 为跃迁概率与两束脉冲初相位差之间的变化关系. 在计算中, 第二束脉冲初相位  $\phi_2 = 0$ , 改变第一束脉冲的初相位, 则两束脉冲间的初相位差为  $\Delta\phi = \phi_1 - \phi_2 = \phi_1$ . 从图中可以看出, 当两束脉

冲间初相位差为  $0$  与  $\pi$  时, 目标态布居达到最大值; 当初相位差为  $0.5\pi$  与  $1.5\pi$  时, 目标态布居达到最小值. 目标态布居最小值为  $0.592$ , 其最小值比单束脉冲控制下的布居降低  $35\%$ . 当  $\Delta\phi$  值在  $0$  与  $\pi$  附近时, 初始态与目标态布居变化较慢; 当  $\Delta\phi$  值在  $0.5\pi$  与  $1.5\pi$  附近时, 初始态与目标态布居变化较快.

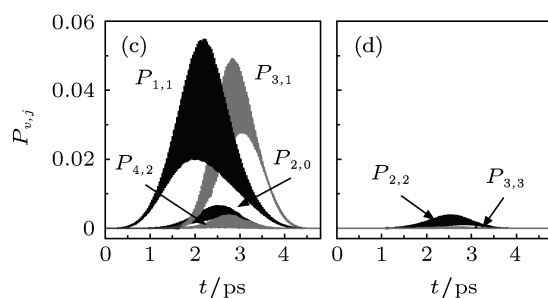
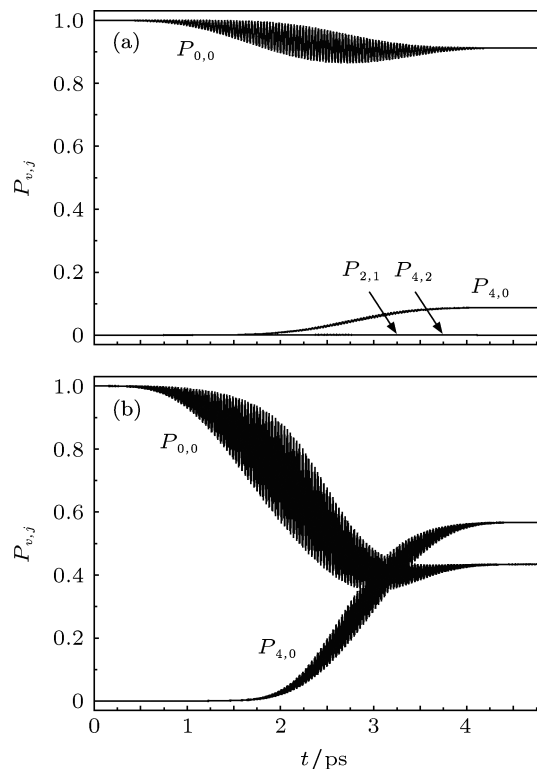


图4 以  $|4,0\rangle$  为目标态, 单束脉冲控制下的布居变化 (a) 脉冲 1 控制下的双光子跃迁; (b)–(d) 脉冲 2 控制下的四光子跃迁. 两束脉冲的优化参数为:  $E_1 = 131.90$  MV/cm,  $E_2 = 130.36$  MV/cm,  $\omega_1 = 7408.72$   $\text{cm}^{-1}$ ,  $\omega_2 = 3704.36$   $\text{cm}^{-1}$ ,  $\tau_1 = \tau_2 = 4.71$  ps,  $\phi_1 = \phi_2 = 0$

我们还计算了态  $|4,0\rangle$  作为目标态的多光子跃迁, 其对应的脉冲频率分别为  $\omega_1 = 7408.72$   $\text{cm}^{-1}$ ,  $\omega_2 = 3704.36$   $\text{cm}^{-1}$ . 其它优化的脉冲参数见图 4. 在图 4(a) 中, 脉冲 1 控制下目标态  $|4,0\rangle$  的最终布居为  $0.088$ , 态  $|4,2\rangle$  与中间态  $|2,1\rangle$  的布居出现概率

几乎为零. 从跃迁路径 (6) 和 (7) 可知, 布居从初始态  $|0,0\rangle$  跃迁至目标态  $|4,0\rangle$  经由四个中间态, 而跃迁至  $|4,2\rangle$  经由五个中间态. 由于路径 (7) 的中间态以及跃迁通道较多, 因此通过四光子跃迁到态  $|4,2\rangle$  的布居多于跃迁至态  $|4,0\rangle$  的布居. 在图 4 (b) 中, 脉冲 2 控制下四光子跃迁目标态  $|4,0\rangle$  的最终布居仅为 0.567. 由于跃迁路径 (6) 中不包含态  $|3,3\rangle$ , 态  $|3,3\rangle$  上出现的布居几乎为零. 态  $|4,2\rangle$  上出现布居的最大值仅为 0.004.

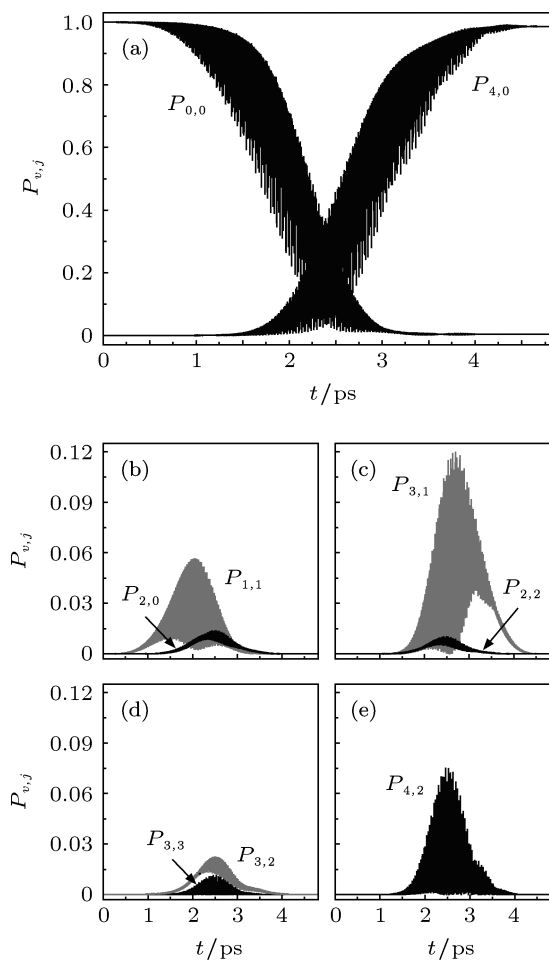


图 5 以  $|4,0\rangle$  为目标态, 两束重合脉冲同时控制下的布居变化 (a) 初始态  $|0,0\rangle$  与目标态  $|4,0\rangle$  的布居变化; (b)–(d) 中间态的布居变化; (e) 态  $|4,2\rangle$  的布居变化. 脉冲参数与图 4 相同

图 5 为两束脉冲同时控制下, 目标态  $|4,0\rangle$  的布居转移过程. 在图 5(a) 中, 目标态  $|4,0\rangle$  的最终布居为 0.987, 其值比两单束脉冲分别作用下目标态的布居提高了 50%. 从图 5(b)–(d) 可以看出, 跃迁路径 (5) 中的一个中间态和路径 (6) 中的四个中间态出现的布居都多于图 4 中的布居. 这表明, 两束脉冲同时作用下, 经由路径 (5) 和 (6) 转移的布居都

被增加. 从前面的讨论可知, 当选取态  $|4,2\rangle$  作为目标态时, 两束脉冲同时作用下, 只有路径 (5) 的布居转移概率被增加. 因此, 两束重合脉冲方法对于控制布居较移到态  $|4,0\rangle$  效率更高. 此外, 图 5(e) 中态  $|4,2\rangle$  出现的布居多于图 4(a) 中的布居.

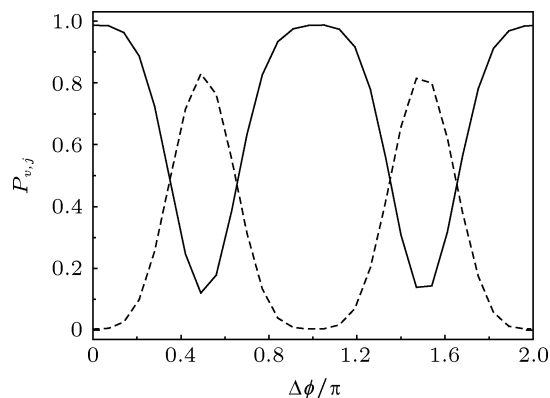


图 6 初始态  $|0,0\rangle$  与目标态  $|4,0\rangle$  最终布居与两束脉冲初相位差  $\Delta\phi$  之间的变化关系 (图中虚线为初始态布居, 实线为目标态布居)

图 6 为改变两束重合脉冲间的初相位差时, 目标态  $|4,0\rangle$  的最终布居分布. 与图 3 相同, 当图 6 中初相位差  $\Delta\phi$  为 0 与  $\pi$  时, 目标态布居达到最大值; 当初相位差为  $0.5\pi$  与  $1.5\pi$  时, 目标态布居达到最小值. 这表明两束频率比为 1:2 的重合脉冲, 当其初相位差为  $\pi/2$  的偶数倍时, 可以相互增强, 提高布居转移概率; 当初相位差为  $\pi/2$  的奇数倍时, 可以相互削弱, 降低布居转移概率. 图 6 中目标态布居最小值为 0.116, 其最小值比单束脉冲控制下的布居降低 82%. 当选取态  $|4,0\rangle$  作为目标态时, 通过改变两束脉冲间的初相位差可以控制目标态布居从 0.987 减小至 0.116, 其布居变化范围远大于图 3 中目标态  $|4,2\rangle$  的布居变化范围.

从前面讨论可以看出, 通过选择不同的脉冲频率可以控制分子布居跃迁至不同的振转能级. 我们计算了振转态布居分布与脉冲频率间变化关系, 其中  $\omega_2$  变化范围为  $3690\text{--}3736\text{ cm}^{-1}$ ,  $\omega_1$  始终为  $\omega_2$  的 2 倍, 其他参数见图 7. 在图 7 中, 当脉冲频率为  $3704\text{ cm}^{-1}$  与  $3729\text{ cm}^{-1}$  时, 态  $|4,0\rangle$  与态  $|4,2\rangle$  的布居分别达到最大值; 当脉冲频率远离此频率时, 两态的布居迅速减小. 这表明脉冲频率对布居转移起决定作用. 脉冲的其他参数对布居转移也有影响. 由于脉冲场强与持续时间不是最佳值, 图 7 中态  $|4,0\rangle$  的最大值只有 0.789. 当频率远离态  $|4,0\rangle$

与态  $|4, 2\rangle$  的共振频率时, 两束脉冲还可以引起其他跃迁. 例如, 两束脉冲可使布居通过“ladder”式跃迁<sup>[28]</sup>, 转移至态  $|4, 1\rangle$ , 跃迁路径有两种, 分别为

$$\begin{aligned} &|0, 0\rangle \rightarrow (\text{pulse2}) \rightarrow |1, 1\rangle \rightarrow (\text{pulse2}) \\ &\rightarrow \left\{ \begin{array}{l} |2, 0\rangle \\ |2, 2\rangle \end{array} \right\} \rightarrow (\text{pulse1}) \rightarrow |4, 1\rangle, \\ &|0, 0\rangle \rightarrow (\text{pulse1}) \rightarrow |2, 1\rangle \\ &\rightarrow (\text{pulse2}) \rightarrow \left\{ \begin{array}{l} |3, 0\rangle \\ |3, 2\rangle \end{array} \right\} \rightarrow (\text{pulse2}) \rightarrow |4, 1\rangle. \end{aligned}$$

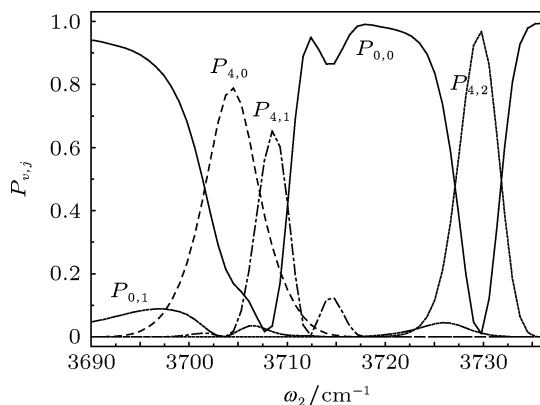


图7 振转态布居分布与脉冲频率间变化关系. 两束脉冲其他参数为:  $E_1 = 133.44$  MV/cm,  $E_2 = 141.90$  MV/cm,  $\tau_1 = \tau_2 = 4.50$  ps,  $\phi_1 = \phi_2 = 0$

也可使布居通过“ $\Lambda$ ”式跃迁<sup>[29]</sup>, 转移至态  $|0, 1\rangle$ , 跃

迁路径分别为

$$\begin{aligned} &|0, 0\rangle \rightarrow (\text{pulse2}) \rightarrow |1, 1\rangle \rightarrow (\text{pulse2}) \\ &\rightarrow \left\{ \begin{array}{l} |2, 0\rangle \\ |2, 2\rangle \end{array} \right\} \rightarrow (\text{pulse1}) \rightarrow |0, 1\rangle, \\ &|0, 0\rangle \rightarrow (\text{pulse1}) \rightarrow |2, 1\rangle \rightarrow (\text{pulse2}) \\ &\rightarrow \left\{ \begin{array}{l} |1, 0\rangle \\ |1, 2\rangle \end{array} \right\} \rightarrow (\text{pulse2}) \rightarrow |0, 1\rangle. \end{aligned}$$

## 4 结 论

我们研究了频率比为 1:2 的两束重合脉冲控制下的基态 HF 分子的多光子跃迁过程. 通过选取不同的脉冲频率, 可以使近 100% 的布居从初始态转移至目标态. 与单束脉冲相比, 两束脉冲同时作用可增加中间态的布居转移概率, 从而提高目标态的最终布居. 两束脉冲之间的初相位差可以控制布居转移概率. 当  $\Delta\phi$  为  $\pi/2$  的偶数倍时, 布居转移概率增加. 当  $\Delta\phi$  为  $\pi/2$  的奇数倍时, 布居转移概率降低. 与目标态  $|4, 2\rangle$  相比, 目标态  $|4, 0\rangle$  的最终布居受两束脉冲间初相位差影响更明显. 脉冲的频率对目标态布居转移起决定作用. 当脉冲频率远离目标态的共振频率时, 两束脉冲可引起其他跃迁.

- [1] Malinovskaya S A, Malinovsky V S 2007 *Opt. Lett.* **32** 707
- [2] Korolkov M V, Paramonov G K, Schmidt B 1996 *J. Chem. Phys.* **105** 1862
- [3] Garraway B M, Suominen K A 1998 *Phys. Rev. Lett.* **80** 932
- [4] Magnier S, Persico M, Rahman N 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 2159
- [5] Paramonov G K, Saalfrank P 2009 *Phys. Rev. A* **79** 013415
- [6] Marquetand P, Engel V 2007 *J. Chem. Phys.* **127** 084115
- [7] Niu Y Y, Wang R, Xiu J L 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 123402 (in Chinese) [牛英煜, 王荣, 修俊玲 2011 物理学报 **60** 123402]
- [8] Shu C C, Yu J, Yuan K J, Hu W H, Yang J, Cong S L 2009 *Phys. Rev. A* **79** 023418
- [9] Vitanov N V, Shore B W 2006 *Phys. Rev. A* **73** 053402
- [10] Goto H, Ichimura K 2008 *Phys. Lett. A* **372** 1535
- [11] Korolkov M V, Paramonov G K 1997 *Phys. Rev. A* **56** 3860
- [12] Su Q Z, Yu J, Niu Y Y, Cong S L 2010 *Chin. Phys. Lett.* **27** 093401
- [13] Band Y B, Julienne P S 1991 *J. Chem. Phys.* **95** 5681
- [14] Shore B W, Bergmann K, Oreg J, Rosenwaks S 1991 *Phys. Rev. A* **44** 7442
- [15] Marx C A, Jakubetz W 2006 *J. Chem. Phys.* **125** 234103
- [16] Andrianov I V, Paramonov G K 1999 *Phys. Rev. A* **59** 2134
- [17] Meng S Y, Fu L B, Liu J 2008 *Phys. Rev. A* **78** 053410
- [18] Remacle F, Levine R D 2006 *Phys. Rev. A* **73** 033820
- [19] Gearba M A, Camp H A, Trachy M L, Veshapidze G, Shah M H, Jang H U, DePaola B D 2007 *Phys. Rev. A* **76** 013406
- [20] Brown A 2007 *Chem. Phys.* **342** 16
- [21] Gräfe S, Kiefer W, Engel V 2007 *J. Chem. Phys.* **127** 134306
- [22] 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]
- [23] Feit M D, Fleck J A, Jr, Steiger A 1982 *J. Comput. Phys.* **47** 412
- [24] Han Y C, Yuan K J, Hu W H, Yan T M, Cong S L 2008 *J. Chem. Phys.* **128** 134303
- [25] Kosloff D, Kosloff R 1983 *J. Comput. Phys.* **52** 35
- [26] Light J C, Hamilton I P, Lill J V 1985 *J. Chem. Phys.* **82** 1400
- [27] Marston C C, Balint-Kurti G G 1989 *J. Chem. Phys.* **91** 3571
- [28] Niu Y Y, Wang R, Qiu M H 2011 *Phys. Rev. A* **84** 023406
- [29] Niu Y Y, Wang R, Qiu M H 2010 *Phys. Rev. A* **81** 043406

# Population transfer of HF molecules in the ground electronic state through multiphoton transition\*

Wang Rong Xiu Jun-Ling Niu Ying-Yu<sup>†</sup>

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

(Received 6 December 2012; revised manuscript received 6 January 2013)

## Abstract

The multiphoton transition is investigated theoretically by using wave packet method for the ground electronic state of HF molecule. A laser field composed of two overlapping infrared pulses is used in our model, and the ratio of their frequencies is 1:2. States  $|4,0\rangle$  and  $|4,2\rangle$  are chosen as target states. Calculated results show that the population can be transferred to different target states as the corresponding resonant frequency is chosen. The probability of the population transfer can be controlled by the initial phase difference of the two pulses. When the initial phase difference is of an odd number of  $\pi/2$ , the probability of population transfer reaches the maximal value. When the initial phase difference is of an even number of  $\pi/2$ , the probability of population transfer reaches the minimum value. In comparison with the state  $|4,2\rangle$ , the initial phase difference has a stronger influence on the population of the state  $|4,0\rangle$ .

**Keywords:** multiphoton transition, initial phase, population transfer, wave packet

**PACS:** 33.80.Be, 42.50.Hz

**DOI:** 10.7498/aps.62.093301

---

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11047177).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: niuyy@djtu.edu.cn