

# K<sub>2</sub>分子在强激光场下的量子调控：缀饰态选择性分布\*

姚洪斌<sup>†</sup> 李文亮 张季 彭敏

(新疆工程学院, 基础教学研究部, 乌鲁木齐 830091)

(2014年3月20日收到; 2014年5月9日收到修改稿)

利用含时量子波包法理论研究了分子在强激光场条件下的量子调控. 选取K<sub>2</sub>分子的三态模型(基态|X>、激发态|B>和电离态|X<sup>+</sup>>))作为研究对象. 在强激光场的作用下, 激发态|B>缀饰成两个子态: |α>态和|β>态. 分析K<sub>2</sub>分子电离后的光电子能谱, 可以得到缀饰态|α>和|β>的能量和概率分布信息. 同时, 根据分子的缀饰态理论, 提出了K<sub>2</sub>分子的缀饰态选择性分布方案. 研究表明: 调节激光场的强度可以实现对缀饰态能量的调控, 改变激光场的波长可以实现对缀饰态概率的选择性分布.

**关键词:** 量子调控, 含时波包法, 缀饰态, 光电子能谱

**PACS:** 82.20.Bc, 34.80.GS, 33.60.+q, 42.50.Hz

**DOI:** 10.7498/aps.63.178201

## 1 引言

在强激光场的作用下, 分子会展现出许多重要的量子现象, 例如, 分子键的软化和硬化<sup>[1]</sup>、阈上电离和解离<sup>[2,3]</sup>, Rabi振荡和能级分裂<sup>[4-6]</sup>, 等等. 研究这些量子现象的动力学行为并对其进行量子调控是国际上近年来兴起的一全新研究领域, 其在物理化学、量子光学、光化学、量子信息等诸多领域有着巨大的应用前景和现实意义<sup>[7,8]</sup>. 在强场量子调控的设计方案中, 最重要的一点是如何利用激光场的参数实现对分子动力学行为和过程的控制, 使其处在特定的状态或者指定的电子态上. 针对不同能级结构型的分子, 理论和实验工作者提出多种强场量子调控方案. 目前, 使用最为广泛的量子调控方案主要是基于以下几种理论方法: 受激拉曼绝热通道(stimulated Raman adiabatic passage, STIRAP)<sup>[9]</sup>, stark-chirped快速绝热通道(stark-chirped rapid adiabatic passage, SCRAP)<sup>[10,11]</sup>、光至势能面(light-induced poten-

tial, LIP)<sup>[12,13]</sup>以及循环反馈调节技术(adaptive feedback learning loops)<sup>[14]</sup>. STIRAP方法广泛用于Λ型能级系统, 主要是通过调节纳秒或者飞秒激光脉冲场的强度实现对量子态布居数的高效传播. SCRAP方法主要应用于二能级系统, 主要是通过改变两束外加激光场之间的时间差实现对量子态的选择性分布. LIP方法已开始应用于三能级系统. 分子初始时刻处在电子基态的振动基态上, 调节激光场的参数使其经过某个中间态后转移到末态, 而激发态的布居数几乎为零. 循环反馈调节技术扩展了量子调控的对象, 主要应用于生物大分子体系, 通过动态监测和反馈调节方法实现了对固态大分子体系的量子调控.

本文基于分子的缀饰态理论, 提出了一种利用超快激光脉冲场的参数操控分子系统的缀饰态能量和概率分布的方法: 缀饰态选择性分布. 研究中, 我们采用了K<sub>2</sub>分子的三态模型(基态|X>、激发态|B>和电离态|X<sup>+</sup>>)<sup>[15]</sup>. 根据光电子能谱与激光态动力学之间的对应性原理<sup>[16,17]</sup>, 分析K<sub>2</sub>分子电离

\* 新疆维吾尔自治区高等学校科研计划项目(批准号: XJEDU2012S41)和新疆维吾尔自治区青年科技创新人才培养工程(批准号: 2013731008)资助的课题.

<sup>†</sup> 通讯作者. E-mail: hbyao@mail.sdu.edu.cn

后的光电子能谱可以得出激发态 |B> 的缀饰态能量和概率分布信息. 我们通过调节激光场的强度实现对  $K_2$  分子缀饰态能量的操控, 以及改变激光场的波长实现对  $K_2$  分子缀饰态布居数的选择性分布.

## 2 动力学分析方法

本节首先给出了  $K_2$  分子的缀饰态选择性分布的理论模型和数值计算方法. 随后, 我们对  $K_2$  分子的缀饰态理论进行简要的阐述和推导, 并给出激发态 |B> 的缀饰态表达式.

### 2.1 理论模型和方法

为了研究缀饰态选择性分布的量子调控机理, 本文采用了  $K_2$  分子的三态模型 (基态 |X>、激发态 |B> 和电离态  $|X^+\rangle$ ). 此模型是根据文献 [15] 选取的, 本文只考虑抽运和探测激光场同时作用于  $K_2$  分子的情况, 其示意图如图 1 所示.  $K_2$  分子初始时刻处在基态势能面  $|X\rangle^1\Sigma_g^+$  上, 一束抽运激光场  $E_{\text{pump}}$  将分子激发到激发态势能面  $|B\rangle^1\Pi_g$  上. 于此同时, 另一束探测激光场  $E_{\text{probe}}$  将处在激发态上的分子电离至电离态  $|X^+\rangle^2\Sigma_g^+$ , 并放出一个光电子  $E_k$ . 通过分析电离后的光电子能谱, 可以得到分子在激发态 |B> 上的动力学信息.

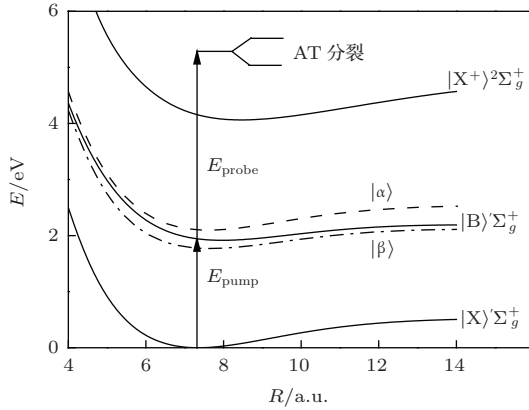


图1  $K_2$  分子的势能曲线图 [18,19]

$K_2$  分子体系满足的含时薛定谔方程

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi = H\Psi, \quad (1)$$

系统的哈密顿量  $H$  可以写成

$$H = T_n + V + H_e, \quad (2)$$

其中,  $T_n$  是核的动能演化算符,  $V$  是系统的势能演化算符,  $H_e$  是分子与外加抽运和探测激光场的相

互作用项. 对于此三态模型, 核的波函数可以写成列向量的形式

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

其中,  $\psi_X$ ,  $\psi_B$  和  $\psi_{\text{ion}}$  分别代表  $K_2$  分子的基态、激发态和电离态波函数. 电离态  $\psi_{\text{ion}}$  是一个连续态. 根据出射光电子的能量分布,  $\psi_{\text{ion}}$  可以转化成一系列的准连续态, 其表示形式为

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

动能算符  $T_n$  可以表示为

$$T_n = -\frac{\hbar^2}{2\mu} \frac{\partial^2}{\partial R^2} \begin{pmatrix} 1 & 0 & \Theta \\ 0 & 1 & \Theta \\ \tilde{\Theta} & \tilde{\Theta} & II \end{pmatrix}, \quad (5)$$

其中,  $\mu$  是  $K_2$  分子的折合质量,  $R$  是原子核之间的距离,  $\Theta$  是一个  $N$  维的零向量  $\Theta = (0, 0, \dots, 0)$ ,  $\tilde{\Theta}$  是  $\Theta$  的转置向量,  $II$  是一个  $N \times N$  维的单位矩阵.

势能算符  $V$  可以表示为

$$V_d = \begin{pmatrix} V_X & 0 & \Theta \\ 0 & V_B & \Theta \\ \tilde{\Theta} & \tilde{\Theta} & (V_{\text{ion}} + E_k^{(i)})II \end{pmatrix}, \quad (6)$$

其中,  $V_X$  和  $V_B$  分别代表  $K_2$  分子的基态 |X> 和激发态 |B> 势能面,  $V_{\text{ion}}$  是分子的电离基态  $|X^+\rangle$  势能面,  $E_k^{(i)} = (i-1)\Delta E_k$  ( $i = 1, 2, \dots, N$ ) 是出射光电子的能量.

分子与外加抽运和探测激光场的相互作用项  $H_e$  可以表示为

$$H_e = \begin{pmatrix} 0 & W_{XB} & 0 \\ W_{XB} & 0 & W_{Bi} \\ 0 & \tilde{W}_{Bi} & \Lambda \end{pmatrix}, \quad (7)$$

其中,  $W_{Bi} = (W_{Bi}^{(1)}, W_{Bi}^{(2)}, \dots, W_{Bi}^{(N)})$  是一个  $N$  维的行向量, 向量元代表的是 |B> 态与电离态  $|X^+\rangle$  在外场下的耦合,  $\Lambda$  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成:

$$W_{XB} = \mu_{XB} \varepsilon_{\text{pump}} f_{\text{pump}}(t) \cos(\Omega_{\text{pump}} t), \quad (8)$$

$$W_{Bi} = \mu_{Bi} \varepsilon_{\text{probe}} f_{\text{probe}}(t) \cos(\Omega_{\text{probe}} t), \quad (9)$$

其中,  $\mu_{XB}$  是分子在 |X> 态和 |B> 态之间的跃迁偶极矩,  $\mu_{Bi}$  是 |B> 态与  $|X^+\rangle$  态之间的跃迁偶极矩,  $\varepsilon_{\text{pump}}$  和  $\varepsilon_{\text{probe}}$  是外加抽运和探测激光场的幅值,

$\Omega_{\text{pump}}$  和  $\Omega_{\text{probe}}$  是它们的角频率. 激光场的脉冲包络  $f_{\text{pump}}(t)$  和  $f_{\text{probe}}(t)$  采用超高斯型的形式:

$$\begin{aligned} f_{\text{pump}}(t) &= \exp\left[-\left(\frac{t}{\tau_{\text{pump}}}\right)^4\right], \\ f_{\text{probe}}(t) &= \exp\left[-\left(\frac{t}{\tau_{\text{probe}}}\right)^4\right], \end{aligned} \quad (10)$$

其中,  $\tau_{\text{pump}}$  和  $\tau_{\text{probe}}$  是抽运和探测激光场的脉冲宽度.

利用分裂算符-傅里叶变换方法<sup>[20,21]</sup>数值求解含时薛定谔方程(1). 一旦求得体系的波函数  $\psi_i(R, t)$ , 便可以得到分子在各电子态上的概率<sup>[22]</sup>:

$$P_i(t) = \int |\psi_i(R, t)|^2 dR, (i = X, B, \text{ion}), \quad (11)$$

以及光电子能谱<sup>[23,24]</sup>

$$\begin{aligned} P(E_k^{(j)}) &= \lim_{t \rightarrow \infty} \int |\psi^{(j)}(R, t, E_k^{(j)})|^2 dR, \\ (j &= 1, 2, \dots, N). \end{aligned} \quad (12)$$

数值计算中, 出射光电子的能量分布范围: 0—1.6 eV. 为了保证计算结果的收敛性, 电离态数目  $N = 100$ , 时间间隔  $\Delta t = 0.1$  fs.  $\text{K}_2$  分子的势能面如图 1 所示, 分子的跃迁偶极矩来自于文献<sup>[19, 25]</sup>.

## 2.2 缀饰态理论

一般而言, 缀饰态强调的是外加激光场的作用, 它对体系的影响主要表现在以下两个方面: 首先, 在外加激光场的作用下, 分子在各能级之间跃迁; 其次, 激光场通过相位因子缀饰分子的固有能量. 有关缀饰态理论的介绍可以参考文献<sup>[26, 27]</sup>. 下面, 我们将理论推导  $\text{K}_2$  分子在抽运激光场作用下的缀饰态表达式, 并讨论激发态 |B> 的缀饰态能量分布. 在推导过程中, 我们只考虑抽运激光场作用的基态 |X> 和激发态 |B>, 并忽略分子的动能项.

当  $\text{K}_2$  分子与外场的相互作用  $H_e = 0$  时, 系统在基态 |X> 和激发态 |B> 上满足的含时薛定谔方程是

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi = V\Psi, \quad (13)$$

上述方程的通解可以表示成

$$\Psi_n(R, t) = e^{-iV_n t/\hbar} \psi_n(R), (n = X, B),$$

其中,  $\psi_n(R)$  和  $V_n$  分别是矩阵  $V$  的本征函数和本征值.

当  $\text{K}_2$  分子与外场的相互作用  $H_e \neq 0$  时, 系统在基态 |X> 和激发态 |B> 上满足的含时薛定谔方程是

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \tilde{\Psi}(R, t) = (V + H_e) \tilde{\Psi}(R, t), \quad (14)$$

上述方程的通解可以用定态解  $\psi_n(R)$  ( $n = X, B$ ) 展开, 即

$$\tilde{\Psi}(R, t) = \sum_n a_n(t) e^{-iV_n t/\hbar} \psi_n(R). \quad (15)$$

在旋转波近似下, 系数  $a_n(t)$  满足如下方程:

$$\begin{aligned} \frac{da_X}{dt} &= -\frac{i}{2} \Omega_{XB} e^{-i\Delta_{XB} t} a_B, \\ \frac{da_B}{dt} &= -\frac{i}{2} \Omega_{XB} e^{-i\Delta_{XB} t} a_X, \end{aligned} \quad (16)$$

其中,

$$\Omega_{XB} = \frac{1}{\hbar} \mu_{XB} E_{\text{pump}}$$

是  $\text{K}_2$  分子在基态 |X> 和激发态 |B> 之间振荡的 Rabi 频率,

$$\Delta_{XB} = \Omega_{\text{pump}} - \frac{V_B(R_0) - V_X(R_0)}{\hbar}$$

是抽运激光场的失谐频率.

通过求解方程(16), 我们可以得到系数  $a_X(t)$  和  $a_B(t)$  的表达式, 结果如下:

$$\begin{aligned} a_X(t) &= e^{i\Delta_{XB} t/2} (iB^{1/2} e^{-i\Omega_{XB}^* t/2} \\ &+ A^{1/2} e^{i\Omega_{XB}^* t/2}), \end{aligned} \quad (17)$$

$$\begin{aligned} a_B(t) &= -i e^{-i\Delta_{XB} t/2} (A^{1/2} e^{-i\Omega_{XB}^* t/2} \\ &+ iB^{1/2} e^{i\Omega_{XB}^* t/2}), \end{aligned} \quad (18)$$

其中,

$$A = \frac{1 - \Delta_{XB}/\Omega_{XB}^*}{2},$$

$$B = \frac{1 + \Delta_{XB}/\Omega_{XB}^*}{2},$$

$$\Omega_{XB}^* = \sqrt{\Omega_{XB}^2 + \Delta^2}.$$

根据波函数初相位可任意选取, 故可去掉常数相位因子  $-i = e^{-i\pi/2}$ , 则缀饰后的基态 |X> 和激发态 |B> 波函数可以写成

$$\begin{aligned} \tilde{\Psi}_X(R, t) &= a_X(t) e^{-iV_X t/\hbar} \psi_X(R) \\ &= iB^{1/2} \psi_{X\alpha} + A^{1/2} \psi_{X\beta}, \end{aligned} \quad (19)$$

$$\begin{aligned} \tilde{\Psi}_B(R, t) &= a_B(t) e^{-iV_B t/\hbar} \psi_B(R) \\ &= A^{1/2} \psi_{B\alpha} + iB^{1/2} \psi_{B\beta}, \end{aligned} \quad (20)$$

其中,

$$\begin{aligned}\psi_{X\alpha} &= e^{-iV_X t/\hbar - i(-\Delta_{XB}/2 + \Omega_{XB}^*/2)t} \psi_X, \\ \psi_{X\beta} &= e^{-iV_X t/\hbar - i(-\Delta_{XB}/2 - \Omega_{XB}^*/2)t} \psi_X,\end{aligned}\quad (21)$$

$$\begin{aligned}\psi_{B\alpha} &= e^{-iV_B t/\hbar - i(\Delta_{XB}/2 + \Omega_{XB}^*/2)t} \psi_B, \\ \psi_{B\beta} &= e^{-iV_B t/\hbar - i(\Delta_{XB}/2 - \Omega_{XB}^*/2)t} \psi_B.\end{aligned}\quad (22)$$

在共振激发条件下  $\Delta_{XB} = 0$ , 缀饰后的激发态  $|B\rangle$  波函数可以简化成

$$\tilde{\psi}_B(R, t) = \frac{1}{2}|\alpha\rangle + \frac{i}{2}|\beta\rangle, \quad (23)$$

其中,

$$\begin{aligned}\alpha &= e^{-i(V_B/\hbar + \Omega_{XB}/2)t} \psi_B, \\ \beta &= e^{-i(V_B/\hbar - \Omega_{XB}/2)t} \psi_B.\end{aligned}$$

根据(23)式可以得出, 在缀饰态表象下, 激发态  $|B\rangle$  分裂成两个子态:  $|\alpha\rangle$  态和  $|\beta\rangle$  态, 相应的缀饰态能量分别是  $V_B + \frac{\hbar}{2}\Omega_{XB}$ ,  $V_B - \frac{\hbar}{2}\Omega_{XB}$ .

### 3 结果及讨论

#### 3.1 激发态 $|B\rangle$ 的缀饰态能量和概率分布

图2给出了  $K_2$  分子在共振激发 ( $\lambda = 642$  nm) 条件下, 激发态  $|B\rangle$  上的布居数随演化时间的变化关系, 以及相应的光电子能谱. 图2(a)和(d)的激光场强度等于  $2.1I_0$ , 相应的脉冲面积  $\Theta = 2\pi$ ;

图2(b)和(e)的激光场强度等于  $4.8I_0$ , 相应的脉冲面积  $\Theta = 3\pi$ ; 图2(c)和(f)的激光场强度等于  $8.5I_0$ , 相应的脉冲面积  $\Theta = 3\pi$ . 脉冲面积的定义[28]:

$$\Theta = \frac{1}{\hbar} \mu E_{\text{pump}} \int_0^\infty f_{\text{pump}}(t) dt.$$

从图2(a), (b), (c)可以看出, 当抽运激光场的脉冲面积  $\Theta > 2\pi$  时,  $K_2$  分子在激发态  $|B\rangle$  上的布居数呈现出 Rabi 振荡. 在飞秒时间尺度范围内, 分子在激发态上的衰减可以忽略不计, 这主要是因为分子在激发态上的寿命在皮秒到纳秒量级之间. 此时, 所谓的裸态已经失去了物理意义, 分子实际上是被束缚在外场耦合下的绝热势能面上运动[29]. 在抽运激光场的作用下,  $K_2$  分子在基态  $|X\rangle$  和激发态  $|B\rangle$  之间来回地跳跃, 其振荡的周期与脉冲面积  $\Theta$  有关. 当脉冲面积等于  $\pi$  的奇数倍时, 分子在  $|B\rangle$  态的布居数达到最大值; 当脉冲面积等于  $\pi$  的偶数倍时, 分子在  $|B\rangle$  态上的布居数达到最小值.

从图2(d), (e), (f)可以看出, 随着抽运激光场强度的增加, 光电子能谱呈现出两个对称的峰, 而且这两个峰朝着远离彼此的方向移动. 根据光电子能谱与激发态动力学之间的对应性原理[16], 可以得出激发态  $|B\rangle$  在激光场的缀饰下分裂成两个子态:  $|\alpha\rangle$  态和  $|\beta\rangle$  态, 如图1所示. 随着激光场强度的增加, 缀饰态  $|\alpha\rangle$  和  $|\beta\rangle$  之间的能量间距也逐渐增大.

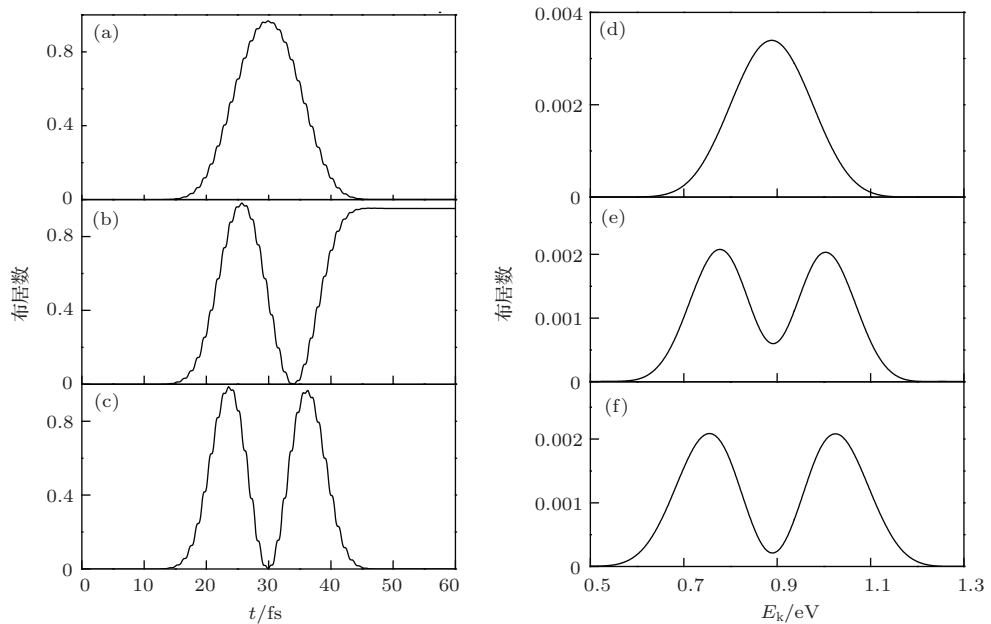


图2 激发态  $|B\rangle$  上的布居数随时间  $t$  的变化关系 ((a), (b), (c)) 以及相应的光电子能谱 ((d), (e), (f)). 抽运激光场的参数: (a)、(d) 的强度是  $2.1I_0$ ; (b)、(e) 的强度是  $4.8I_0$ ; (c)、(f) 的强度是  $8.5I_0$ ;  $\lambda_{\text{pump}} = 642$  nm;  $\tau_{\text{pump}} = 25$  fs. 探测激光场的参数:  $I_0 = 1.0 \times 10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>;  $\lambda_{\text{probe}} = 400$  nm;  $\tau_{\text{probe}} = 25$  fs

### 3.2 缀饰态能量的调控

图3给出了K<sub>2</sub>分子在共振激发条件下, 光电子能谱随抽运激光场的强度  $I$  和光电子能量  $E_k$  的变化关系. 图中的实线对应的表达式:  $E_{\pm} = 0.89 \pm \frac{\hbar}{2}\Omega_{XB}$ , 其准确地描绘了高能 and 低能光电子峰随激光场强度的变化规律. 当激光场的强度等于  $4I_0$  时, 高能 and 低能光电子分别位于 0.99 eV 和 0.79 eV 附近, 它们所占的比例都是 50%. 当激光场的强度增加到  $16I_0$  时, 高能 and 低能光电子分别位于 1.09 eV 和 0.69 eV 附近, 它们所占的比例还是 50%. 因此, 我们可以得出: 激光场的强度从  $4I_0$  变到  $16I_0$  过程中, 高能光电子的能量上移了 0.1 eV, 低能光电子的能量下移了 0.1 eV, 但是它们所占的比例没有发生变化.

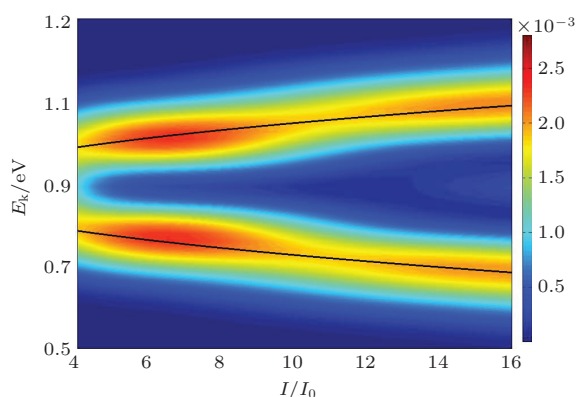


图3 (网刊彩色) 固定抽运激光场的波长 ( $\lambda = 642$  nm), K<sub>2</sub> 分子光电子能谱随激光场的强度  $I$  和光电子能量  $E_k$  的变化关系 (激光场的其他参数同图2)

利用光电子能谱与缀饰态之间的对应关系, 我们可以得出缀饰态  $|\alpha\rangle$  和  $|\beta\rangle$  的能量以及它们的概率分布. 光电子能谱中的高能光电子对应的是从  $|\alpha\rangle$  态的电离, 低能光电子对应的是从  $|\beta\rangle$  态的电离. 与未缀饰的激发态  $|B\rangle$  相比, 缀饰态  $|\alpha\rangle$  和  $|\beta\rangle$  的能量分别移动了  $E_{\pm} = \pm \frac{\hbar}{2}\Omega_{XB}$ . 但是, 缀饰态  $|\alpha\rangle$  和  $|\beta\rangle$  所占的比例没有发生改变. 因此, 我们可以通过调节激光场的强度, 实现对缀饰态能量的操控, 而不改变缀饰态的概率分布. 在这里, 我们顺便提下, 图3中能级分裂的大小可以用来推导K<sub>2</sub>分子的跃迁偶极矩  $\mu_{XB}$ . 在实验上, 这是一种非常有效的测量分子跃迁偶极矩的方法.

### 3.3 缀饰态概率分布的调控

图4给出了K<sub>2</sub>分子在固定抽运激光场强度

( $I = 6 \times 10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>) 的条件下, 光电子能谱随波长  $\lambda$  和光电子能量  $E_k$  的变化关系. 随着波长  $\lambda$  的增大, 高能 and 低能光电子的能量都向低能区方向移动. 因此, 调节抽运激光场的波长同样可以控制缀饰态  $|\alpha\rangle$  和  $|\beta\rangle$  的能量值. 关于缀饰态能量的调控, 上一节已经给出了详细地讨论, 本节重点讨论改变抽运激光场的波长对缀饰态概率分布的影响.

为了描述分子在缀饰态  $|\alpha\rangle$  和  $|\beta\rangle$  上的概率分布, 我们定义一个物理量:  $\Gamma_i$ , 其表达式为

$$\Gamma_i = \frac{P_i}{P_{\alpha} + P_{\beta}}, (i = \alpha, \beta), \quad (24)$$

其中,  $P_{\alpha}$  和  $P_{\beta}$  描述的是分子在缀饰态  $|\alpha\rangle$  和  $|\beta\rangle$  上的布居数.

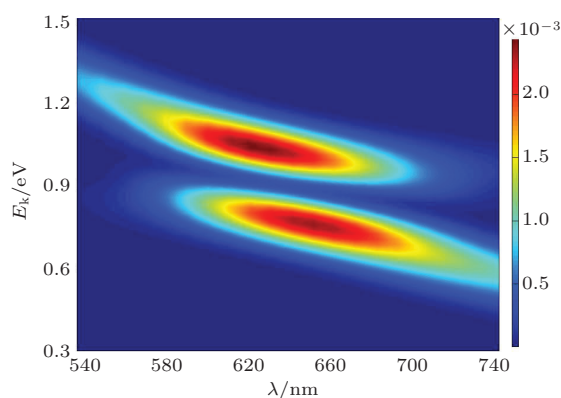


图4 (网刊彩色) 固定抽运激光场的强度 ( $I = 6 \times 10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>), K<sub>2</sub> 分子光电子能谱随激光场的波长  $\lambda$  和光电子能量  $E_k$  的变化关系 (激光场的其他参数同图2)

当抽运激光场的波长  $\lambda = 540$  nm 时, 光电子能谱中只有一个高能光电子峰. 根据光电子能谱与缀饰态之间的对应关系, 可以得知缀饰态  $|\beta\rangle$  上的布居数为 0. 此时, K<sub>2</sub> 分子处在缀饰态  $|\alpha\rangle$  和  $|\beta\rangle$  上的概率分别为:  $\Gamma_{\alpha} = 1, \Gamma_{\beta} = 0$ . 随着波长的增大, 缀饰态  $|\alpha\rangle$  和  $|\beta\rangle$  上的布居数开始增加. 当波长  $\lambda = 642$  nm 时, K<sub>2</sub> 分子处在缀饰态  $|\alpha\rangle$  和  $|\beta\rangle$  上的布居数相同. 此时,  $\Gamma_{\alpha} = 0.5, \Gamma_{\beta} = 0.5$ . 随着激光场的波长继续增大, 缀饰态  $|\alpha\rangle$  和  $|\beta\rangle$  上的布居数开始减小. 当波长  $\lambda = 740$  nm 时, 激发态上的分子分布于  $|\beta\rangle$  态,  $|\alpha\rangle$  态上的布居数为 0. 此时,  $\Gamma_{\alpha} = 0, \Gamma_{\beta} = 1$ . 因此, 我们可以通过改变激光场的波长, 实现对缀饰态概率的选择性分布. 譬如: 当选取激光场的波长  $\lambda = 540$  nm 时,  $|\alpha\rangle$  态上的概率分布达到最大值; 当选取激光场的波长  $\lambda = 740$  nm 时,  $|\beta\rangle$  态上的概率分布达到最大值; 当选取激光场的波长  $\lambda = 642$  nm 时,  $|\alpha\rangle$  态和  $|\beta\rangle$  态上的概率分布各占 50%.

## 4 结 论

本文利用含时量子波包法系统地研究了分子在强激光场条件下的量子调控: 缀饰态选择性分布. 我们采用了  $K_2$  分子的三态模型 (基态  $|X\rangle$ 、激发态  $|B\rangle$  和电离态  $|X^+\rangle$ ) 作为研究对象. 在抽运激光场的作用下,  $K_2$  分子从基态  $|X\rangle$  跃迁到激发态  $|B\rangle$ . 当激光场的脉冲面积  $\Theta > 2\pi$  时,  $K_2$  分子在激发态  $|B\rangle$  上的布居数呈现出 Rabi 振荡的现象, 其振荡的周期与脉冲面积  $\Theta$  有关. 同时,  $K_2$  分子电离后的光电子能谱发生了能级分裂. 根据光电子能谱与缀饰态之间的对应关系, 得出激发态  $|B\rangle$  在激光场的缀饰下分裂成两个子态:  $|\alpha\rangle$  态和  $|\beta\rangle$  态, 其能量大小由激光场的强度和波长决定. 在共振激发 ( $\lambda = 642 \text{ nm}$ ) 条件下, 与未缀饰的激发态  $|B\rangle$  相比, 缀饰态  $|\alpha\rangle$  和  $|\beta\rangle$  的能量分别移动了  $E_{\pm} = \pm \frac{\hbar}{2} \Omega_{XB}$ . 但是, 缀饰态  $|\alpha\rangle$  和  $|\beta\rangle$  所占的比例没有发生改变. 因此, 我们可以调节脉冲激光场的强度, 实现对缀饰态能量的操控. 此外, 我们还可以改变激光场的波长实现对缀饰态概率分布的调控. 譬如, 当激光场的波长  $\lambda = 540 \text{ nm}$  时,  $|\alpha\rangle$  态上的概率分布达到最大值; 当激光场的波长  $\lambda = 740 \text{ nm}$  时,  $|\beta\rangle$  态上的概率分布达到最大值; 当激光场的波长  $\lambda = 642 \text{ nm}$  时,  $|\alpha\rangle$  和  $|\beta\rangle$  态上的概率分布各占 50%.

总之, 缀饰态选择性分布不仅可以调节分子的缀饰态能量, 而且还可以控制缀饰态的概率分布. 这种高效的量子调控方案在操控分子的化学反应方面有着巨大的应用前景, 譬如, 利用激光场调控化学反应体系的缀饰态势能面, 使其沿着某个给定的反应通道进行化学反应, 进而实现对反应产物的操控.

## 参考文献

- [1] He H X, Lu R F, Zhang P Y, Han K L, He G Z 2012 *J. Chem. Phys.* **136** 024311
- [2] He H X, Lu R F, Zhang P Y, Guo Y H, Han K L, He G Z 2011 *Phys. Rev. A* **84** 033418
- [3] Tian Y Y, Wei S S, Guo F M, Li S Y, Yang Y J 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 153202 (in Chinese) [田原野, 魏珊珊, 郭福明, 李苏宇, 杨玉军 2013 物理学报 **62** 153202]
- [4] Granucci G, Magnier S, Persico M 2002 *J. Chem. Phys.* **116** 1022
- [5] Yao H B, Zheng Y J 2012 *Chin. Phys. B* **21** 023302
- [6] 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]
- [7] Penfold T J, Worth G A, Meier C 2010 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **12** 15616
- [8] Wollenhaupt M, Engel V, Baumert T 2005 *Annu. Rev. Phys. Chem.* **56** 25
- [9] Guérin S, Yatsenko P L, Jauslin H R 2001 *Phys. Rev. Lett.* **63** 031403
- [10] Rangelov A A, Vitanov N V, Yatsenko L P, Shore B W, Halfmann T, Bergmann K 2005 *Phys. Rev. A* **72** 053403
- [11] Rickes T, Yatsenko L P, Steuerwald S, Halfmann T, Shore B W, Vitanov N V, Bergmann K 2000 *J. Chem. Phys.* **113** 534
- [12] Sola I R, Chang B Y, Santamaría J, Malinovsky V S, Krause J L 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 4241
- [13] Underwood J G, Spanner M, Ivanov M Y, Mottershead J, Sussman B J 2003 *Phys. Rev. Lett.* **90** 223001
- [14] Levis R J, Meenkir G M, Rabitz H 2001 *Science* **292** 709
- [15] Schwoerer H, Pausch R, Heid M, Engel V, Kiefer W 1997 *J. Chem. Phys.* **107** 9749
- [16] Yao H B, Lin S Y, Zheng Y J 2011 *J. Theor. Comp. Chem.* **10** 509
- [17] 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]
- [18] Magnier S, Aubert-Frécon M, Allouche A R 2004 *J. Chem. Phys.* **121** 1771
- [19] Jraij A, Allouche A R, Magnier S, Aubert-Frécon M 2009 *J. Chem. Phys.* **130** 244307
- [20] Hu J, Han K L, He G Z 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 123001
- [21] Chu T S, Zhang Y, Han K L 2006 *Int. Rev. Phys. Chem.* **25** 201
- [22] 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]
- [23] Meng Q T, Yang G H, Sun H L, Han K L, Lou N Q 2003 *Phys. Rev. A* **67** 063202
- [24] Yao H B, Zheng Y J 2011 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **13** 8900
- [25] Magnier S, Millié P 1996 *Phys. Rev. A* **54** 204
- [26] Cohen-Tannoudji C, Diu B, Laloë 1996 *Quantum Mechanics* (New York: Wiley)
- [27] Tan W H 2009 *Introduction to Quantum Optics* (Vol. 2) (Beijing: Science Press) p61–64 (in Chinese) [谭维翰 2009 量子光学导论 (第2版) (北京: 科学出版社) 第61–64页]
- [28] Vitanov N V, Halfmann T, Bergmann K 2001 *Annu. Rev. Phys. Chem.* **52** 763
- [29] Paloviita A, Suominen K A 1997 *Phys. Rev. A* **55** 3007

# Quantum control of $K_2$ molecule in an intense laser field: Selective population of dressed states\*

Yao Hong-Bin<sup>†</sup> Li Wen-Liang Zhang Ji Peng Min

(Department of Basic Courses, Xinjiang Institute of Engineering, Urumqi 830091, China)

( Received 20 March 2014; revised manuscript received 9 May 2014 )

## Abstract

Control of molecular dynamics in an intense laser field has been studied by employing the time-dependent wave packet approach. A system of  $K_2$  molecule in three states (ground state  $|X\rangle$ , excited state  $|B\rangle$  and ionized state  $|X^+\rangle$ ) serves as a prototype which interacts with pump-probe laser fields. Interacting with an intense pump field, the excited state  $|B\rangle$  splits into two substates:  $|\alpha\rangle$  and  $|\beta\rangle$ . Information of the energies and probability distributions of dressed states  $|\alpha\rangle$  and  $|\beta\rangle$  can be obtained by analysing the photoelectron spectra (PES) of  $K_2$  molecule. Meanwhile, the scheme of selective population of dressed states (SPODS) has been put forward according to the dressed states theory of  $K_2$  molecule. It is found that regulating the laser intensity can control the dressed state energies, and altering the laser wavelength can make the high selectivity of the dressed state population readied.

**Keywords:** quantum control, time-dependent wave packet approach, dressed states, photoelectron spectra

**PACS:** 82.20.Bc, 34.80.GS, 33.60.+q, 42.50.Hz

**DOI:** [10.7498/aps.63.178201](https://doi.org/10.7498/aps.63.178201)

---

\* Project supported by the Scientific Research Program of the Higher Education Institution of Xinjiang, China (Grant No.XJEDU2012S41), and the Youth Science and Technology Innovation Talents Project of Xinjiang, China(Grant No. 2013731008).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: [hbyao@mail.sdu.edu.cn](mailto:hbyao@mail.sdu.edu.cn)