

多光子跃迁过程中的量子衍射与量子相干控制

王 鹏

(延安大学物理与电子信息学院, 陕西 延安 716000)

摘要 从理论上解释了利用相位调制光场如何实现多光子跃迁的量子相干控制。在弱场作用下研究了几种整形激光脉冲形式与二能级原子系统的相互作用过程,研究了整形激光脉冲作用下双光子过程中的量子衍射效应。利用微扰理论给出了多光子跃迁过程的解析表示,根据解析表示解释了阶跃相位和余弦相位调制光场作用下多光子跃迁几率的量子相干控制。结果表明,这两种相干控制过程中都有跃迁几率消除现象,而且不同调制相位光场的作用结果对应着不同的几率消除位置。

关键词 量子光学;多光子跃迁;量子衍射;量子相干控制

中图分类号 O431.2 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/LOP48.072701

Quantum Diffraction and Quantum Coherent Control During Multi-Photon Transition

Wang Peng

(College of Physics and Electric Information, Yan'an University,
Yan'an, Shaanxi 716000, China)

Abstract We theoretically explain how to achieve the quantum coherent control of multi-photon transition by phase-modulated lightfield. The interaction between several types of shaped laser pulse and a two-level system is studied within the weak field regime. Quantum diffraction effect during the two-photon transition affected by a shaped laser pulse is studied. Under the perturbation theory, the analytical solutions of multi-photon transition probabilities are obtained. Based on these analytical expressions, we demonstrate that the quantum coherent control of multi-photon transition is affected by step-phase modulated laser and sinusoidally phase modulated laser. It is shown that the elimination of transition probabilities exist in these two processes, and the two results have different probability elimination positions.

Key words quantum optics; multi-photon transition; quantum diffraction; quantum coherent control

OCIS codes 270.4180; 320.5540; 260.1960; 020.1670

1 引 言

在线性啁啾光场与二能级原子系统的相互作用过程中会发生类似于菲涅耳直边衍射的现象^[1]。当二能级系统波尔跃迁频率等于光场频率的 N 倍(N 为正整数)时,在一定条件下会发生 N 光子跃迁过程^[2]。无论是单光子跃迁过程还是多光子跃迁过程,只要光场频率随时间满足非线性变化时都会发生量子衍射效应^[3]。衍射条纹的个数会与光场的相位或者相位随着频率变化的快慢有关,而其明暗程度则与光场强度的频谱分布有关。

激光脉冲整形技术的突破性进展使得量子态的相干控制成为可能^[4]。利用脉冲整形技术可以得到任意形状的激光脉冲^[5]。于是,人们利用各种形状的激光脉冲得到了各种状态的量子态^[6]。这种技术也可以应用于多光子跃迁过程^[7~12]。控制激光脉冲的形状可以获得各种状态的激发态波函数,从而可以获得不同的或者人们想要的跃迁几率分布^[13],也可以获得最大跃迁几率,甚至可以消除跃迁过程。跃迁几率被消除的位置也与调制相位的形式密切相关。但是,这些文献都没有给出三光子和四光子的解析表达式,从而不能清

收稿日期: 2011-03-02; **收到修改稿日期**: 2011-04-02; **网络出版日期**: 2011-06-01

作者简介: 王 鹏(1983—),男,硕士,助教,主要从事量子光学方面的研究。E-mail: yan.an1314@163.com

楚地看到整形激光脉冲中的调制相位在量子相干控制过程中所扮演的角色。为了更容易理解多光子过程中调制相位的这种重要作用,本文给出了单光子、双光子以及多光子跃迁几率的解析表示。根据这些解析结果详细地分析并解释了多光子跃迁的量子相干控制。

本文在弱场近似下研究了几种整形激光脉冲形式与二能级系统的相互作用过程。利用微扰理论给出了多光子跃迁过程的解析表示。根据跃迁几率的解析解研究了双光子过程中的量子衍射效应。利用整形技术对激光脉冲进行了相位调制,证明了多光子跃迁几率的量子相干控制。

2 理论模型

考虑一束弱超短激光脉冲与一个二能级原子作用的多光子跃迁过程,如图 1 所示。用符号 $|g\rangle$ 和 $|f\rangle$ 分别表示能量为 E_g 的基态和能量为 E_f 激发态。假定激发脉冲电场 $\epsilon(t)$ 的宽度远比激发态的寿命短得多,并假定在初始时刻原子处于基态。采用与时间有关的一级微扰理论得到激发态的几率振幅为

$$a_f(t) = \frac{\mu_{fg}}{i\hbar} \int_{-\infty}^t \epsilon(t_1) \exp(i\omega_0 t_1) dt_1, \quad (1)$$

式中 μ_{fg} 是偶极矩矩阵元,且 $\omega_0 = (E_f - E_g)/\hbar$ 。如果激发脉冲电场不能共振激发任何单光子跃迁,那么它还可能诱导双光子跃迁。根据与时间有关的二级微扰理论,激发态的几率振幅可以表示为

$$a_f(t) = -\frac{1}{\hbar^2} \sum_n \mu_{fn} \mu_{ng} \int_{-\infty}^t \int_{-\infty}^{t_1} \epsilon(t_1) \epsilon(t_2) \exp(i\omega_n t_1) \exp(i\omega_{ng} t_2) dt_2 dt_1, \quad (2)$$

式中 $\omega_{ij} = (E_i - E_j)/\hbar$, 且求和指的是对未扰动原子所有可能的中间态而言的。短脉冲激发情况有益于考察中间能态的求和。假定在双光子和多光子过程中光场是连续作用的,并假定中间能态都远离共振,那么所有中间能级的贡献仅仅在很短的一段时间内相干叠加,从而作近似

$$\sum_n \mu_{fn} \mu_{ng} \exp[i E_n (t_2 - t_1)/\hbar] = \begin{cases} \langle f | \mu^2 | g \rangle, & |t_1 - t_2| < \bar{\omega}^{-1} \\ 0, & |t_1 - t_2| \geq \bar{\omega}^{-1} \end{cases}, \quad (3)$$

式中 $\hbar\bar{\omega}$ 近似为平均权重能量。(3)式的作用是确定虚能级的寿命。考虑光场作用以后的时间,激发态上的双光子跃迁几率可以表示为

$$P^{2-ph} = \frac{1}{\hbar^4} \left| \frac{\langle f | \mu^2 | g \rangle}{\bar{\omega}} \right|^2 \left| \int_{-\infty}^{\infty} \epsilon^2(t) \exp(i\omega_0 t) dt \right|^2. \quad (4)$$

同理,如果图 1 中所有低能级都是非共振的,那么在光脉冲作用以后的时间,到激发态的 N 光子跃迁几率为正比于 $\epsilon^N(t)$ 的共振傅里叶分量为

$$P^{N-ph} \propto \left| \int_{-\infty}^{\infty} \epsilon^N(t) \exp(i\omega_0 t) dt \right|^2. \quad (5)$$

3 双光子跃迁过程中量子衍射效应

假定激发脉冲 $\epsilon(t)$ 是一束中心频率为 ω_c 并具有一定频率带宽的短脉冲,那么 $\epsilon^2(t)$ 可以被分成 3 个频率带,其中两个在 $\pm 2\omega_c$ 附近,另一个在 0 附近。与单光子跃迁不同,激发脉冲的所有频率分量都可能对双光子跃迁有贡献。为了明确这一点,将(4)式中的积分在频域表示为

$$S_2(\omega_0) = \left| \int_{-\infty}^{\infty} \epsilon^2(t) \exp(i\omega_0 t) dt \right|^2 = \left| \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{\epsilon}(\omega) \tilde{\epsilon}(\omega_0 - \omega) d\omega \right|^2, \quad (6)$$

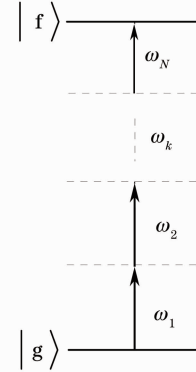


图 1 二能级系统中多光子跃迁过程

Fig. 1 Multi-photon transition in a two-level system

式中 $\tilde{\varepsilon}(\omega) = A(\omega)\exp[i\phi(\omega)]$ 是 $\varepsilon(t) = |\varepsilon(t)|\exp[i\phi(t)]$ 的傅里叶变换,且 $A(\omega)$ 和 $\phi(\omega)$ 分别是谱振幅和谱相位。光电场中 $|\varepsilon(t)|$ 为其高斯包络, $\phi(t) = (\omega_c + \beta t)t$ 是光学相位函数。其中 ω_c 为光电场的中心频率, β 为线性频率啁啾的啁啾速率。(6)式表明某一频率的脉冲在双光子能级上的作用是由所有频率分量的脉冲累计到这一频率脉冲上的作用之和。另外,如果 $\tilde{\varepsilon}(\omega)$ 在 $\omega_0/2$ 处达到峰值,那么 $S_2(\omega_0)$ 在 ω_0 处达到峰值。令 $\omega = \omega_0/2 - \Omega$, 则(6)式变为

$$S_2(\omega_0) = \left| \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{\varepsilon}(\omega_0/2 + \Omega)\tilde{\varepsilon}(\omega_0/2 - \Omega)d\Omega \right|^2 = \left| \int_{-\infty}^{\infty} A(\omega_0/2 + \Omega)A(\omega_0/2 - \Omega)\exp\{i[\Phi(\omega_0/2 + \Omega) + \Phi(\omega_0/2 - \Omega)]\}d\Omega \right|^2. \quad (7)$$

(7)式前两个右等式表明,频率分别为 ω_i 和 ω_j 且满足 $\omega_i + \omega_j = \omega_0$ 的光子组成的光子对驱动系统时都会发生双光子跃迁现象。于是通过裁剪一束光脉冲的谱相位就可以控制双光子跃迁几率。可以看到, $S_2(\omega_0)$ 可以被认为是相对相位为 $\Phi(\omega_0/2 + \Omega) + \Phi(\omega_0/2 - \Omega)$, 所占权重为 $A(\omega_0/2 + \Omega)A(\omega_0/2 - \Omega)$ 的所有频率分量的脉冲求和。尽管具有反对称相位分布的光场不能影响双光子跃迁几率,但是具有其它相位分布的光场诱导双光子跃迁会严重影响跃迁几率。通过裁剪相位分布可以在某个频率处消除多光子跃迁,具有这样相位分布的光脉冲叫做暗脉冲,这种暗脉冲是光频率恰当的相干叠加,这种相干叠加的结果会消除双光子与多光子吸收。不吸收共振光的量子态之间的相干叠加就是暗态。因此,暗脉冲和暗态在概念上很类似。以下用两种相位分布来讨论双光子与多光子吸收过程的消除机理。

当啁啾脉冲 $\tilde{\varepsilon}(\omega)$ 经过裁剪以后,它的形式可变为

$$|\tilde{\varepsilon}(\omega)| = \begin{cases} \tilde{\varepsilon}, & -\frac{1}{2}\Delta\omega \leq (\omega - \frac{\omega_0}{2}) \leq \frac{1}{2}\Delta\omega \\ 0, & \left| \omega - \frac{\omega_0}{2} \right| > \frac{1}{2}\Delta\omega \end{cases} \quad (8)$$

$$\Phi(\omega) = \alpha(\omega - \frac{\omega_0}{2})^2. \quad (9)$$

(8)式指的是具有频宽为 $\Delta\omega$ 的平方整形光场振幅,而(9)式指相位是频率的二次方函数。将(8),(9)式带入(7)式, $S_2(\omega_0)$ 在 ω_0 处为

$$S_2(\omega_0) = \left| \int_{-\Delta\omega/2}^{\Delta\omega/2} A(\omega_0/2 + \Omega)A(\omega_0/2 - \Omega)\exp[i2\Phi(\omega_0/2 + \Omega)]d\Omega \right|^2. \quad (10)$$

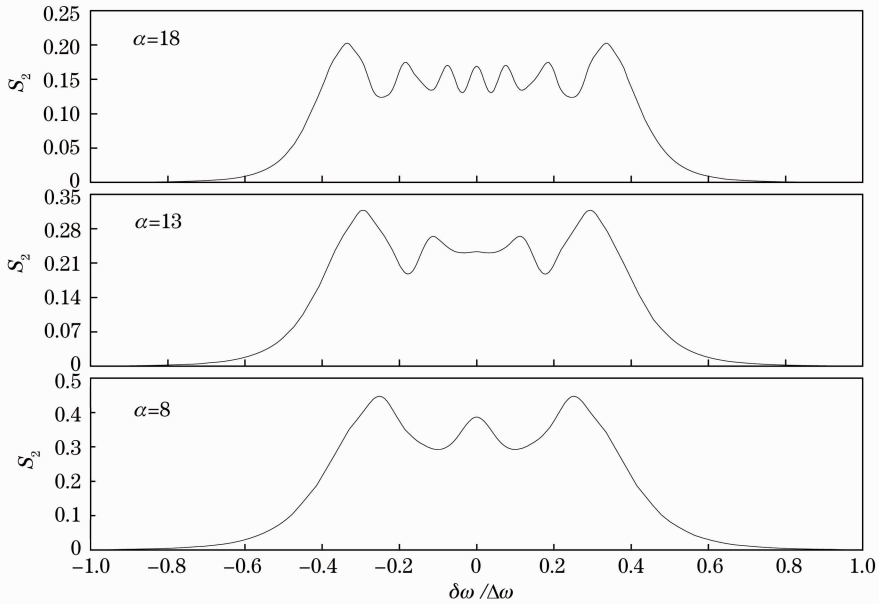
$S_2(\omega_0)$ 在 $\omega_0 + \delta\omega$ 处为

$$S_2(\omega_0 + \delta\omega) = \left| \int_{-(\Delta\omega + \delta\omega)/2}^{(\Delta\omega - \delta\omega)/2} |\tilde{\varepsilon}(\omega_0/2 + \omega')|^2 \exp[i2\Phi(\omega_0/2 + \omega')]d\omega' \right|^2. \quad (11)$$

由(11)式可以得到双光子跃迁几率随着失谐量 $\delta\omega$ 的演化关系,如图2所示。当失谐量为零时,跃迁几率较大,但不是最大。随着失谐量的增大,跃迁几率会出现谷值和峰值,并出现最大值。当失谐量很大时,即 $\delta\omega/\Delta\omega > 1$, 不会有双光子跃迁发生。该过程与非涅耳衍射不同,属于非线性过程,类似于单缝衍射效应。条纹的个数随着啁啾因子 α 的增大而增多,但亮条纹的亮度却降低,而且最亮条纹的位置会向外移动。由于条纹所占的频率宽度不变,故亮暗条纹之间的距离缩短,且它们的宽度也减小。对于更高阶的多光子跃迁过程,裁剪的啁啾脉冲激发所得到的情形与双光子衍射现象基本类似。本质上说,衍射效应的发生是由于线性啁啾的频率扫描导致了不同频率分量对应的多光子跃迁通道之间干涉的结果。因此,光场的相位形式对于衍射的结果有着至关重要的作用。

4 多光子跃迁过程中跃迁几率的相干量子控制

从(7)式的中间等式可知,对于变换受限光场 [$\Phi(\omega) = 0$] 的双光子激发情形,跃迁几率可以达到最大。而对于具有反对称相位分布 [$\Phi(\omega_0/2 + \Omega) = -\Phi(\omega_0/2 - \Omega)$] 的光场激发情形,双光子跃迁几率与光场谱相

图 2 跃迁几率随着相对失谐量 $\delta\omega/\Delta\omega$ 的变化关系Fig. 2 Transition probabilities versus the relative value of the detuning $\delta\omega/\Delta\omega$

位分布无关。然而,这种谱相位分布严重改变来光场的脉冲形状。

根据(5)式可得激发态的 3 光子跃迁几率为

$$P^{3-ph} \propto S_3(\omega_0) = \left| \int_{-\infty}^{\infty} \epsilon^3(t) \exp(i\omega_0 t) dt \right|^2 = \left| \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{\epsilon}(\omega_1) \tilde{\epsilon}(\omega_2) \tilde{\epsilon}(\omega_0 - \omega_1 - \omega_2) d\omega_1 d\omega_2 \right|^2 = \left| \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{\epsilon}(\omega_0/3 + \omega) \tilde{\epsilon}(\omega_0/3 + \Omega) \tilde{\epsilon}(\omega_0/3 - \omega - \Omega) d\omega d\Omega \right|^2. \quad (12)$$

同理,4 光子跃迁过程中激发态的跃迁几率为

$$P^{4-ph} \propto S_4(\omega_0) = \left| \int_{-\infty}^{\infty} \epsilon^4(t) \exp(i\omega_0 t) dt \right|^2 = \left| \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{\epsilon}(\omega_1) \tilde{\epsilon}(\omega_2) \tilde{\epsilon}(\omega_3) \tilde{\epsilon}(\omega_0 - \omega_1 - \omega_2 - \omega_3) d\omega_1 d\omega_2 d\omega_3 \right|^2 = \left| \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{\epsilon}(\omega_0/4 + \omega) \tilde{\epsilon}(\omega_0/4 + \Omega) \tilde{\epsilon}(\omega_0/4 + \bar{\omega}) \tilde{\epsilon}(\omega_0/4 - \omega - \Omega - \bar{\omega}) d\omega d\Omega d\bar{\omega} \right|^2. \quad (13)$$

(7),(11)和(12)式都表明,多光子跃迁发生在 $\omega_1 + \omega_2 + \dots + \omega_N = \omega_0$ 处。而且,跃迁几率都是光场频谱的卷积表示。

研究具有 π 阶跃相位分布光场与系统的相互作用过程。该光场的具体形式为

$$\tilde{\epsilon}(\omega_l + \Omega) = \operatorname{sech}\left(\frac{1.76\Omega}{\Delta\omega}\right) \exp\left[i \frac{\pi}{2} \operatorname{sgn}(\Omega - \delta)\right], \quad (14)$$

式中 $\omega_l = \omega_0/N$ 是 N 光子吸收调谐的中心频率, δ 是中心频率的移位, $\Delta\omega$ 是光场振幅包络带宽的半高宽, $\operatorname{sgn}(x) = \pm 1$, 其正负号取决于 x 的正负。在这种整形光场的作用下,多光子跃迁过程得到了很好的控制,如图 3 所示。图 3(a)~(c)分别为 N 光子跃迁跃迁几率相对值的数值计算值。 N 光子跃迁过程有 N 个零值点。对于双光子跃迁,由(4)式可知调制相位中心位移 $\delta = 0$ 处跃迁几率的值与未经过整形光场激发的几率值一致,如图 3(a)所示。这是由于这时双光子跃迁的谱相位是反对称的,不会影响跃迁几率。但是,更高阶的跃迁几率则会受到整形光场的严重调制,如图 3(b)和(c)所示。当 $\delta \gg \Delta\omega$ 时,所有曲线表明,跃迁几率值接近未经整形过程作用的情形。高阶跃迁过程对 $\delta/\Delta\omega$ 很敏感,阶数越高,敏感区越靠近几率谱的两翼。

激发光场的形式为

$$\tilde{\epsilon}(\omega_l + \Omega) = \operatorname{sech}\left(\frac{\Omega}{\Delta\omega}\right) \exp[i a \cos(\beta \Omega)], \quad (15)$$

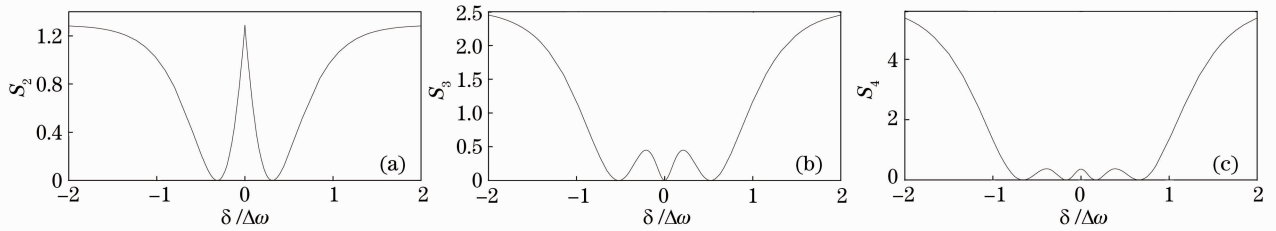


图3 π 阶跃相位调制光场作用下双光子(a)、3光子(b)以及4光子(c)跃迁几率的量子相干控制

Fig. 3 Quantum coherent control of two (a), three (b) and four (c) photon transition probabilities with a π step phase-modulated laser pulse

式中 α 是相位振幅, β 是频率振幅, $\Delta\omega$ 是脉冲宽度。 N 光子跃迁几率的相干量子控制如图4所示。图中实线和虚线分别对应于双光子和三光子跃迁几率分布, 而实线加空心圆圈表示4光子跃迁几率分布。从图中看出, 随着调制相位振幅的增大, 跃迁阶数越低, 振荡衰减幅度越大, 跃迁消失得越快。

5 结论

在弱场近似下研究了几种整形激光脉冲形式与二能级系统的相互作用过程。通过裁剪脉冲研究了双光子过程中的量子衍射效应。研究发现, 衍射条纹与啁啾因子有关。证明了 π 阶跃相位调制光场作用下多光子跃迁几率的量子相干控制。观察到了跃迁几率消除现象, 并发现跃迁几率消除的位置与微扰阶数有关。随着调制相位振幅的增大, 跃迁几率逐渐减小, 并呈周期地消失。

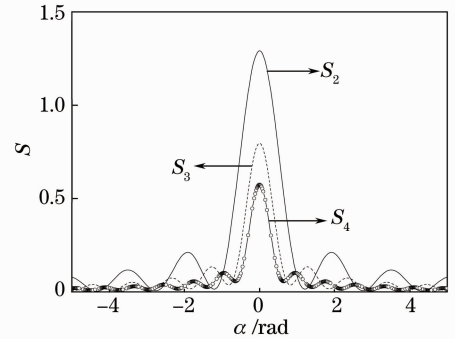


图4 余弦相位调制光场作用下多光子跃迁几率的量子相干控制

Fig. 4 Quantum coherent control of multi-photon transition probabilities with a cosinusoidally phase-modulated laser pulse

参 考 文 献

- 1 S. Zamith, J. Degert, S. Stock *et al.*. Observation of coherent transients in ultrashort chirped excitation of an undamped two-level system[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2001, **87**(3): 033001
- 2 Nirit Dudovich, Dan Oron, Yaron Silberberg. Coherent transient enhancement of optically induced resonant transitions[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2002, **88**(12): 123004
- 3 Li Yongfang, Ren Liqing, Ma Ruiqiong *et al.*. Temporal diffraction of wave function[J]. *Science in China Series G*, 2009, **39**(4): 600~605
李永放, 任立庆, 马瑞琼等. 波函数的时域衍射[J]. *中国科学 G 辑*, 2009, **39**(4): 600~605
- 4 T. C. Weinacht, J. Ahn, P. H. Bucksbaum. Controlling the shape of a quantum wavefunction[J]. *Nature*, 1999, **397**(6716): 233~235
- 5 M. Wollenhaupt, A. Prakelt, C. Sarpe-Tudoran *et al.*. Femtosecond strong-field quantum control with sinusoidally phase-modulated pulses[J]. *Phys. Rev. A*, 2006, **73**(6): 063409
- 6 B. Dayan, A. Pe'er, A. A. Friesem *et al.*. Two photon absorption and coherent control with broadband down-converted light[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2004, **93**(2): 023005
- 7 N. Dudovich, B. Dayan, M. G. Sarah Faeder *et al.*. Transform-limited pulses are not optimal for resonant multiphoton transitions[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2001, **86**(1): 47~50
- 8 Li Yongfang, Fan Rong, Liu Juan *et al.*. Study on kinetic characteristic and imaging pattern of ionized photoelectrons[J]. *Acta Optica Sinica*, 2010, **30**(2): 551~556
李永放, 樊荣, 刘娟等. 电离光电子动力学特征及其成像图谱[J]. *光学学报*, 2010, **30**(2): 551~556
- 9 Li Yongfang, Liu Juan, Fan Rong *et al.*. Interference effect and space angular distribution of the ionization[J]. *Chinese J. Lasers*, 2009, **36**(11): 2865~2868

- 李永放, 刘娟, 樊荣等. 电离光电子的干涉效应与空间角分布[J]. 中国激光, 2009, **36**(11): 2865~2868
- 10 Zhou Yuan, Zhang Yingjie, Xia Yunjie. Remote control of quantum statistical properties of light field[J]. *Acta Optica Sinica*, 2007, **27**(6): 1122~1128
- 周原, 张英杰, 夏云杰. 远程控制光场的量子统计性质[J]. 光学学报, 2007, **27**(6): 1122~1128
- 11 Lai Zhenjiang, Zhang Li, Liu Baoping *et al.*. Phase properties of the field in atoms and light field coupling system with phase dissipation[J]. *Acta Optica Sinica*, 2010, **30**(9): 2730~2736
- 赖振讲, 张利, 刘宝平等. 相位耗散原子光场耦合系统中光场的相位特性[J]. 光学学报, 2010, **30**(9): 2730~2736
- 12 Han Baobin, Pei Changxing, Liu Dan. Analysis of influence of magneto-optical effect on quantum key distribution system with phase coding[J]. *Acta Optica Sinica*, 2010, **30**(11): 3328~3331
- 韩宝彬, 裴昌幸, 刘丹. 磁光效应对量子相位编码系统的影响分析[J]. 光学学报, 2010, **30**(11): 3328~3331
- 13 Z. Amitay, A. Gandman, L. Chuntonov *et al.*. Multichannel selective femtosecond coherent control based on symmetric properties[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2008, **100**(19): 193002