

激光相干控制选态激发的理论研究*

周本汉 詹明生

中国科学院武汉物理与数学研究所波谱与原子分子物理国家重点实验室, 武汉 430071
中国科学院安徽光学精密机械研究所激光光谱开放实验室, 合肥 230031

摘 要 系统地研究了三色相位彼此相干的激光场与三能级体系的相互作用过程。证明了态的布居几率依赖于光场的相位和振幅属性。从理论上指出用相干光场实现选态激发的可能性, 并首次提出用相干光场去实现泛频激发的可行性和优点。

关键词 相干控制, Magnus-Light 展开, 选态激发, 布居几率。

1 引 言

20 世纪 70 年代以来, 激光技术飞速发展, 使“态-态”化学反应成为可能, 在此基础上形成一门新的科学——“选态化学”^[1]。它主要是利用激光的频率特性, 针对分子的不同振动模式激发, 从而改变分子的振动行为^[2, 3], 把分子制备到特定的状态上以获得最理想或最大产率, 特别是实现一些通常不可能的化学反应。选态激发实际上就是单量子态的制备。它主要有三种形式: 1) 振动泛频激发^[4]; 2) 受激吸收^[5]; 3) 态间转移^[6]。进入 80 年代以来, 人们发展了一种的理论, 即相干控制理论^[7-9]。它是利用激光的外部属性(如相位)来改变体系的内部属性, 如利用激光场对分子进行定向和囚禁^[10]; 利用激光对半导体中电流方向的控制^[11]; 利用双色激光场相位特性控制分子光解^[12]等。在理论上较早研究的是对化学反应的控制, 如对 IBr 生成 I+ Br、I+ Br* 的控制等, 其基本理论为, 设想对分子 ABC, 在解离的过程中有下面两种可能的通道 ABC→AB+ C 或 A+ BC。在一般条件下, 两种产物的分支比是一定的。但是当用两相位可控的相干激光去作用时, 发现分支比 ζ 是相位差 $\Delta\varphi$ 的函数, 即 $\zeta = f(\Delta\varphi)$ 。最近的理论研究证明, 用两相对相位可控的激光可以合成分子的局域模振动态^[13, 14]。

本文首先针对三能级体系, 从理论上证明用相干激光实现对分子的选态激发的可行性, 然后从一些特殊情况出发, 提出等效两能级模型, 并将它同单色光场与两能级体系作用的模型加以比较, 揭示出用双色光场实现泛频激发的优点和可能性。

2 理 论

2.1 问题的提出

本文以简单的三能级体系为例, 来证明相干激光控制选态激发的可能性。假设其能级图

* 国家自然科学基金资助课题。

收稿日期: 1997-03-09; 收到修改稿日期: 1997-10-23

如图 1 所示, 能级能量 $E_i = h\Omega_i/2\pi$ 。设作用在此三能级上的光场可表示为

$$E = E_{12} \cos(\omega_{12}t + \varphi_2) + E_{13} \cos(\omega_{13}t + \varphi_3) + E_{23} \cos(\omega_{23}t + \varphi_3). \quad (1)$$

为便于讨论, 将光场用复数形式表示,

$$E = \frac{1}{2} E_{12} \exp[i(\omega_{12}t + \varphi_2)] + \frac{1}{2} E_{13} \exp[i(\omega_{13}t + \varphi_3)] + \frac{1}{2} E_{23} \exp[i(\omega_{23}t + \varphi_3)] + c.c., \quad (2)$$

其中 E_{ij} 为光场的振幅, ω_j 为光场的频率, φ_j 为光场的初相。c.c. 表示复共轭项。假设该三能级体系满足以下两个条件之一:

1) 这种体系在空间上不具备中心反演对称性, 因而它可不遵守宇称选择定则。从而使态间可同时有单光子和双光子跃迁发生。

2) 该体系在空间上具备中心反演对称性, 但上态不是宇称的本征态, 而它总可写成宇称本征态的叠加, 即

$$|\Psi\rangle = b_1|+\rangle + b_2|-\rangle \quad (3)$$

式中 $|+\rangle$ 、 $|-\rangle$ 分别代表宇称的偶本征态和奇本征态。那么单光子和双光子跃迁都可发生。

设此体系的波函数可写为:

$$|\Psi\rangle = C_1|1\rangle + C_2|2\rangle + C_3|3\rangle, \quad (4)$$

它满足薛定谔方程

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\Psi\rangle = H |\Psi\rangle, \quad (5)$$

$$H = H_0 + V = H_0 - \mu \cdot E. \quad (6)$$

在相互作用表象下, 应用旋转波近似, 即略去和频项, 保留差频项, 得出该体系的矩阵方程

$$i \begin{bmatrix} \dot{C}_1 \\ \dot{C}_2 \\ \dot{C}_3 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 & V_{12} & V_{13} \\ V_{12}^* & 0 & V_{23} \\ V_{13}^* & V_{23}^* & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} C_1 \\ C_2 \\ C_3 \end{bmatrix}, \quad (7)$$

其中 $V_{mn} = \frac{-\mu E_{mn}}{2\hbar} \exp[i(\delta_{mn}t + \varphi_{mn})]$, $m, n = 1, 2, 3$ 。 $\delta_{mn} = \Omega_{mn} - \omega_{mn}$ 为频率失谐量。

2.2 Magnus-Light 展开

对形如

$$\frac{dC(t)}{dt} = A(t)C(t) \quad (8)$$

的一阶线性微分方程, Pechukas 和 Light 进行了系统的研究, 提出一种近似求解方法, 即 Magnus-Light 展开法^[15-17]。其具体思想是设方程(8)的解为

$$C(t) = \exp[U(t, -\infty)]C(-\infty), \quad (9)$$

$$U(t, -\infty) = \sum_{n=1}^{\infty} U^{(n)}(t, -\infty), \quad U^{(1)}(t, -\infty) = \int_{-\infty}^t A(t') dt',$$

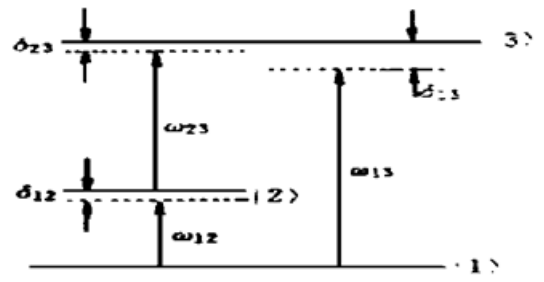


Fig. 1 The configuration of energy levels of laser control state-selected excitation, where the detunings are δ_{12} , δ_{23} and δ_{13} , respectively

$$\begin{aligned}
 U^{(2)}(t, -\infty) &= \frac{1}{2} \int_{-\infty}^t dt' \int_{-\infty}^{t'} dt'' [U(t'), U(t'')] \\
 U^{(3)}(t, -\infty) &= \frac{1}{6} \int_{-\infty}^t dt' \int_{-\infty}^{t'} dt'' \int_{-\infty}^{t''} dt''' (\{A(t'''), [A(t''), A(t')]\} + \\
 &\quad \{[A(t'''), A(t'')], A(t')\}) \quad (10)
 \end{aligned}$$

Magnus-Light 展开式实际上就是用无限多项和来近似表示方程(8)的精确解,在实际处理问题中,一般根据问题的实际情况,选择一阶到二阶解即可较好地说明问题。在本文中,对比(7)式和(8)式,可容易地写出

$$A(t, -\infty) = -iV = -i \begin{bmatrix} 0 & V_{12} & V_{13} \\ V_{12}^* & 0 & V_{23} \\ V_{13}^* & V_{23}^* & 0 \end{bmatrix}, \quad (11)$$

由于 $|U^{(n-1)}(t, -\infty)| \gg |U^{(n)}(t, -\infty)|$, 为简化计算起见,忽略高于一阶的项,只保留 $U^{(1)}(t, -\infty)$, 则

$$C(t) = \exp \left[-i \int_{-\infty}^t V(t') dt' \right] C(-\infty), \quad (12)$$

$C(t)$ 是一个三阶列阵,

$$C(t) = \begin{bmatrix} C_1(t) \\ C_2(t) \\ C_3(t) \end{bmatrix}, \quad (13)$$

其各分量的平方代表相应能级的布居几率。令

$$\rho_{mn} = -\frac{\mu E_{mn}}{2h} \int_{-\infty}^t \exp(i\delta_{mnt'}) dt', \quad (14)$$

其中 $m, n = 1, 2, 3$; δ_{mn} 为失谐量; $\delta_{mn} = -\delta_{nm}$; 当 $m = n$ 时, $\delta_{mn} = 0$ 。那么, (12) 式可变为

$$C(t) = \exp[-i\Gamma(t)] C(-\infty), \quad (15)$$

在上式中,

$$\Gamma(t) = \begin{bmatrix} 0 & \rho_{12} \exp(i\mathcal{Q}_2) & \rho_{13} \exp(i\mathcal{Q}_3) \\ \rho_{12}^* \exp(-i\mathcal{Q}_2) & 0 & \rho_{23} \exp(i\mathcal{Q}_3) \\ \rho_{13}^* \exp(-i\mathcal{Q}_3) & \rho_{23}^* \exp(-i\mathcal{Q}_3) & 0 \end{bmatrix}.$$

应用指数函数的展开式 $\exp[i\Gamma(t)] = 1 - i\Gamma - \Gamma^2/2! + i\Gamma^3/3! + \dots$, 可将(15)式简化。式中 1 代表三阶单位矩阵。通常感兴趣的是在 t 较小但远远大于原子分子的特征时间范围内, 此时 $|\rho_{mn}|$ 较小, 故可以只取展开式的前三项, 即保留至二次项而忽略三次和更高次的项, 得到 $\exp[-i\Gamma(t)] = 1 - iA - \frac{1}{2}B$,

$$A = \Gamma(t),$$

$$B = \begin{bmatrix} |\rho_{12}|^2 + |\rho_{13}|^2 & \rho_{13}\rho_{23}^* \exp[i(\mathcal{Q}_3 - \mathcal{Q}_2)] & \rho_{12}\rho_{23} \exp[i(\mathcal{Q}_2 + \mathcal{Q}_3)] \\ \rho_{23}\rho_{13}^* \exp[-i(\mathcal{Q}_3 - \mathcal{Q}_2)] & |\rho_{12}|^2 + |\rho_{23}|^2 & \rho_{13}\rho_{12}^* \exp[i(\mathcal{Q}_3 - \mathcal{Q}_2)] \\ \rho_{12}^*\rho_{23}^* \exp[-i(\mathcal{Q}_2 + \mathcal{Q}_3)] & \rho_{13}^*\rho_{12} \exp[-i(\mathcal{Q}_3 - \mathcal{Q}_2)] & |\rho_{13}|^2 + |\rho_{23}|^2 \end{bmatrix}. \quad (16)$$

那么, (15) 式可以简化成

$$C(t) = \exp[-i\Gamma(t)] C(-\infty) = 1C(-\infty) - iAC(-\infty) - \frac{1}{2}BC(-\infty) \quad (17)$$

假设在 $t = -\infty$ 时, 粒子数全分布在基态上, 而其它态的粒子数均为零, 即

$$C(-\infty) = \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix}, \quad (18)$$

应用(18)式, 可以写出任意时刻 t 下, (17) 式的各分量:

$$\begin{aligned} C_1(t) &= 1 - \frac{1}{2}(|\rho_{12}|^2 + |\rho_{13}|^2) \\ C_2(t) &= -i\rho_{12}^* \exp(-i\mathcal{Q}_2) - \frac{1}{2}\rho_{23}\rho_{13}^* \exp[i(\mathcal{Q}_3 - \mathcal{Q}_2)] \\ C_3(t) &= -i\rho_{13}^* \exp(-i\mathcal{Q}_3) - \frac{1}{2}\rho_{12}^*\rho_{23} \exp[-i(\mathcal{Q}_2 + \mathcal{Q}_3)] \end{aligned} \quad (19)$$

各态布居几率由 $P_i = |C_i(t)|^2$ 给出。

2.3 共振解和非共振解

2.3.1 共振情形

对(19)式, 先考虑最简单的情况, 即假设各激光分别与能级精确共振, 亦即 $\delta_{12} = \delta_{13} = \delta_{23} = 0$, 在此情形下, (19) 简化为(设光场是在 $t = 0$ 时刻作用于体系的):

$$\begin{aligned} C_1(t) &= 1 - \frac{\mu^2 t^2}{8h^2}(E_{12}^2 + E_{13}^2) \\ C_2(t) &= i\frac{\mu E_{12}}{2h} \exp(-i\mathcal{Q}_2)t - \frac{1}{2}\frac{\mu^2 E_{23}E_{13}}{4h^2} t^2 \exp[i(\mathcal{Q}_3 - \mathcal{Q}_2)] \\ C_3(t) &= i\frac{\mu E_{13}}{2h} \exp(-i\mathcal{Q}_3)t - \frac{1}{2}\frac{\mu^2 E_{23}E_{12}}{4h^2} t^2 \exp[-i(\mathcal{Q}_2 + \mathcal{Q}_3)] \end{aligned} \quad (20)$$

因而 1、2、3 态上的布居几率为

$$\begin{aligned} P_1 &= 1 - \frac{\mu^2 E_{12}^2 t^2}{4h^2} - \frac{\mu^2 E_{13}^2 t^2}{4h^2} + \frac{\mu^4 t^4}{64h^4} (E_{12}^2 + E_{13}^2)^2 \\ P_2 &= |C_2(t)|^2 = \frac{\mu^2 E_{12}^2 t^2}{4h^2} + \frac{\mu^4 E_{13}^2 E_{23}^2 t^4}{64h^4} - \frac{\mu^3 E_{12} E_{23} E_{13} t^3}{8h^3} \sin(\mathcal{Q}_2 + \mathcal{Q}_3 - \mathcal{Q}_1), \\ P_3 &= |C_3(t)|^2 = \frac{\mu^2 E_{13}^2 t^2}{4h^2} + \frac{\mu^4 E_{12}^2 E_{23}^2 t^4}{64h^4} - \frac{\mu^3 E_{12} E_{23} E_{13} t^3}{8h^3} \sin(\mathcal{Q}_2 + \mathcal{Q}_3 - \mathcal{Q}_1) \end{aligned} \quad (21)$$

在(21)式中, 发现在时间较小的情形下, 忽略时间的高次项, 则几率和为 1。

2.3.2 非共振情况

对大多数实际问题而言, 本文所利用的激光并不能保证严格与激发能级共振, 而是有一定的失谐, 即 δ_{12} 、 δ_{23} 、 $\delta_{13} \neq 0$, 此时(19)式变为:

$$\begin{aligned} C_1(t) &= 1 - \frac{\mu^2 E_{12}^2 [1 - \cos(\delta_{12}t)]}{4h^2 \delta_{12}^2} - \frac{\mu^2 E_{13}^2 [1 - \cos(\delta_{13}t)]}{4h^2 \delta_{13}^2} \\ C_2(t) &= -\frac{\mu E_{12}}{2h \delta_{12}} \exp(-i\mathcal{Q}_2) [\exp(-i\delta_{12}t) - 1] - \\ &\quad \frac{1}{2} \frac{\mu E_{23} E_{13}}{4h^2 \delta_{23} \delta_{13}} \exp[i(\mathcal{Q}_3 - \mathcal{Q}_2)] \{ \exp[i(\delta_{23} - \delta_{13})t] - 1 \} \end{aligned} \quad (22)$$

$$C_3(t) = -\frac{\mu E_{13}}{2h\delta_{13}} \exp(-i\mathcal{Q}_3) [\exp(-i\delta_{13}t) - 1] + \frac{1}{2} \frac{\mu^2 E_{23} E_{12}}{4h^2 \delta_{23} \delta_{12}} \exp[i(\mathcal{Q}_2 + \mathcal{Q}_3)] \{\exp[-i(\delta_{12} + \delta_{23})t] - 1\}$$

相应地, 1、2、3 态的布居几率为

$$P_1 = 1 - \frac{\mu^2 E_{12}^2}{2h^2 \delta_{12}^2} - \frac{\mu^2 E_{13}^2}{2h^2 \delta_{13}^2} + \frac{\mu^2 E_{12}^2}{2h^2 \delta_{12}^2} \cos(\delta_{12}t) + \frac{\mu^2 E_{13}^2}{2h^2 \delta_{13}^2} \cos(\delta_{13}t) + \left[\frac{\mu^2 E_{12}^2 [1 - \cos(\delta_{12}t)]}{4h^2 \delta_{12}^2} - \frac{\mu^2 E_{13}^2 [1 - \cos(\delta_{13}t)]}{4h^2 \delta_{13}^2} \right]^2 \quad (23)$$

$$P_2 = |C_2(t)|^2 = \frac{\mu^2 E_{12}^2}{2h^2 \delta_{12}^2} + \frac{\mu^4 E_{23}^2 E_{13}^2}{32h^4 \delta_{23}^2 \delta_{13}^2} - \frac{\mu^2 E_{12}^2}{2h^2 \delta_{12}^2} \cos(\delta_{12}t) - \frac{\mu^4 E_{23}^2 E_{13}^2}{128h^4 \delta_{23}^2 \delta_{13}^2} \cos[(\delta_{23} - \delta_{13})t] + \frac{\mu^3 E_{12} E_{23} E_{13}}{8h^3 \delta_{12} \delta_{23} \delta_{13}} \{\cos[(\delta_{12} + \delta_{23} - \delta_{13})t + (\mathcal{Q}_2 + \mathcal{Q}_3 - \mathcal{Q}_3)] - \cos[\delta_{12}t + (\mathcal{Q}_2 + \mathcal{Q}_3 - \mathcal{Q}_3)] - \cos[(\delta_{23} - \delta_{13})t + (\mathcal{Q}_2 + \mathcal{Q}_3 - \mathcal{Q}_3)] + \cos(\mathcal{Q}_2 + \mathcal{Q}_3 - \mathcal{Q}_3)\} \quad (24)$$

$$P_3 = |C_3(t)|^2 = \frac{\mu^2 E_{13}^2}{2h^2 \delta_{13}^2} + \frac{\mu^4 E_{23}^2 E_{13}^2}{32h^4 \delta_{23}^2 \delta_{12}^2} - \frac{\mu^2 E_{13}^2}{2h^2 \delta_{13}^2} \cos(\delta_{13}t) - \frac{\mu^4 E_{23}^2 E_{12}^2}{128h^4 \delta_{23}^2 \delta_{12}^2} \cos[(\delta_{23} - \delta_{12})t] - \frac{\mu^3 E_{12} E_{23} E_{13}}{8h^2 \delta_{12} \delta_{23} \delta_{13}} \{\cos[(\delta_{12} + \delta_{23} - \delta_{13})t + (\mathcal{Q}_2 + \mathcal{Q}_3 - \mathcal{Q}_3)] - \cos[\delta_{13}t + (\mathcal{Q}_2 + \mathcal{Q}_3 - \mathcal{Q}_3)] - \cos[(\delta_{12} + \delta_{23})t + (\mathcal{Q}_2 + \mathcal{Q}_3 - \mathcal{Q}_3)] + \cos(\mathcal{Q}_2 + \mathcal{Q}_3 - \mathcal{Q}_3)\} \quad (25)$$

3 分析与讨论

从(21)式、(23)式~(25)式可以发现态的布居几率都是随时间变化的, 因而对连续光而言, 几率不可控, 这是当然的, 因为对于连续光而言, t 愈大, 跃迁几率必愈大, 从而使态达到饱和布居。但对有一定脉宽的脉冲光则可加以控制。在一个脉冲过后, 几率是确定的, 即将(21)式、(23)式~(25)式中的 t 换成激光脉宽 τ 。

在(21)式中, 调节 $\mathcal{Q}_2 + \mathcal{Q}_3 - \mathcal{Q}_3 = 2k\pi + \pi/2$, $k = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$, 则可变为

$$P_2 = \left[\frac{\mu E_{12} \tau}{2h} - \frac{\mu^2 E_{13} E_{23} \tau^2}{8h^2} \right]^2, \quad P_3 = \left[\frac{\mu E_{13} \tau}{2h} + \frac{\mu^2 E_{12} E_{23} \tau^2}{8h^2} \right]^2 \quad (26)$$

从而可以再调节光场振幅使 $P_2 = 0$ 而 P_3 最大去实现选择激发 3 态, 或者调节 $\mathcal{Q}_2 + \mathcal{Q}_3 - \mathcal{Q}_3 = 2k\pi + 3\pi/2$, $k = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$, 以及振幅使 $P_3 = 0$ 而 P_2 最大去实现选择激发 2 态。

对(23)式~(25)式可以作同样的分析而且由于此时的失谐不为零, 还可以通过改变失谐量差来控制几率, 这又增加了控制选态的一条途径。

对共振和非共振两种情形, 假设已通过调节相位和振幅实现了选态, 譬如选择了态 3 而态 2 无布居, 可以把态 2 看成一个虚能级, 这时的三能级体系可等效于两能级体系, 如图 2

所示。

在等效两能级模型中, 假设 $\omega_{12} = \omega_{23} = \omega_{13}/2$, 这就是人们较多研究的用基频和其二倍频 ($\omega, 2\omega$) 去相干控制的方案。以往靠泛频激发制备高振动态(称为方案 I)是通过分子对一定频率的光子的阶梯吸收, 从而把体系制备到高态, 如图 3(a) 所示。然而激发的能级愈高, 分子对光场的吸收截面愈小, 要想使高达一定布居需大幅度提高光场振幅。从本文的结论可以发现, 用等效的两能级模型中的基频和其二倍频 ($\omega, 2\omega$) 光子激发之(称为方案 II), 如图 3(b) 所示。假设方案 I 中的激发光场振幅和方案 II 中的 E_{13} 相同并且都是和能级共振的, 经过简

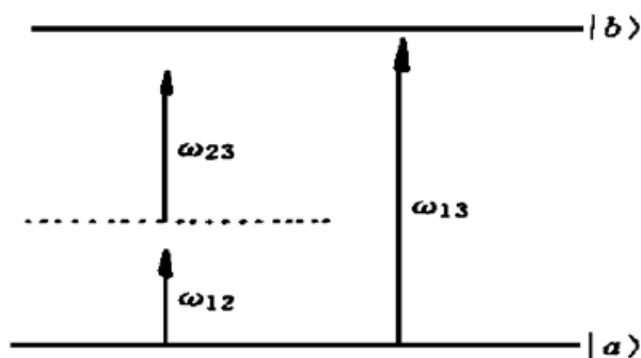


Fig. 2 The effective two-level mode diagram versus Fig. 1 when the intermediate state distribution probability is zero

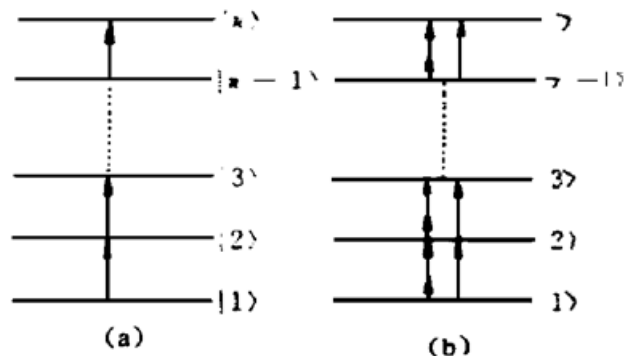


Fig. 3 The energy-level diagrams of monochlor excitation [scheme I, figure (a)] and bichromatic excitation [scheme II, figure (b)]

单计算可以得出方案 I 的上能级布居几率为(对脉冲光而言)

$$P_I = \sin^2 \left[\frac{\mu E}{2h} \tau \right] \approx \left[\frac{\mu E}{2h} \tau \right]^2, \quad (27)$$

而对方案 II, 假设由倍频光和基频光产生的几率相同, 在(26)式中, 其第 2 项相当于由双光子过程的跃迁几率。则上能级的布居几率可由(26)式给出

$$P_{II} = \sin^2 \left[2 \frac{\mu E}{2h} \tau \right] \approx 4 \left[\frac{\mu E}{2h} \tau \right]^2. \quad (28)$$

那么, 对于 n 阶泛频激发, 可以粗略估计两种方案的效率比为

$$\frac{P_{II}}{P_I} \propto 4^n \left[\frac{\mu E}{2h} \tau \right]^{2n} \left/ \left[\frac{\mu E}{2h} \tau \right]^{2n} \right. = 4^n. \quad (29)$$

由(29)式可以看出, 用两相干激光去进行泛频激发的效率将比单光场泛频激发的效率提高 4^n 倍! 可见用相干激光去制备高态是比较理想的新方法。

参 考 文 献

- [1] F. F. Crim, State and bond-selected unimolecular reactions. *Science*, 1990, **249**(4975): 1387~ 1390
- [2] D. W. Lupo, M. Quack, IR-laser photochemistry. *Chem. Rev.*, 1987, **87**(1): 181~ 216
- [3] S. Shi, A. Woody, H. Rabitz, Optical control of selective vibrational excitation in harmonic linear chain molecules. *J. Chem. Phys.*, 1988, **88**(11): 6870~ 6883
- [4] F. F. Crim, Selective excitation studies of unimolecular reaction dynamics. *Annu. Rev. Phys. Chem.*, 1984, **35**: 657~ 691

- [5] C. E. Hamilton, J. L. Kinsey, Stimulated emission pumping: new methods in spectroscopy and molecular dynamics. *Annu. Rev. Phys. Chem.*, 1986, **37** : 493~ 524
- [6] H. Reisler, C. Witting, Photo-initiated unimolecular reactions. *Annu. Rev. Phys. Chem.*, 1986, **37** : 307~ 349
- [7] P. Brumer, M. Shapiro, Control of unimolecular reactions using coherent light. *Chem. Phys. Lett.*, 1986, **126**(6) : 541~ 546
- [8] C. Asaro, P. Brumer, Polarization control of branching ratios in photodissociation. *Phys. Rev. Lett.*, 1988, **60**(16) : 1634~ 1637
- [9] Z. D. Chen, P. Brumer, Multiproduct coherent control of photodissociation via two-photon versus two-photon interference. *J. Chem. Phys.*, 1993, **98**(9) : 6843~ 6852
- [10] B. Friedrich, D. Herchbach, Alignment and trapping of molecules in intense laser fields. *Phys. Rev. Lett.*, 1995, **74**(23) : 4623~ 4627
- [11] R. Atanasov, A. Hache, J. L. P. Hughes *et al.*, Coherent control of photocurrent generation in bulk semiconductors. *Phys. Rev. Lett.*, 1996, **76**(10) : 1703~ 1706
- [12] B. Shechy, B. Walker, L. F. DiMauro, Phase control in the two-color photodissociation of HD⁺. *Phys. Rev. Lett.*, 1995, **74**(24) : 4799~ 4803
- [13] M. S. Zhan, Q. Huang, S. K. Zhou *et al.*, Localized molecular vibration induced by coherent lasers. *Chinese Science Bulletin*, 1995, **40**(8) : 647~ 649
- [14] Q. Huang, M. S. Zhan, S. K. Zhou *et al.*, Local molecular vibration induced by laser. *Phys. Lett. (A)*, 1995, **205**(1) : 3~ 7
- [15] J. C. Light, Adiabatic perturbation approximation for time dependent collision processes. *J. Chem. Phys.*, 1977, **66**(11) : 5241~ 5242
- [16] P. A. Rodgers, S. Swain, Time-dependent pulse in quantum optics: the use of light's perturbation theory. *J. Phys. (B)*, 1987, **20**(3) : 617~ 628
- [17] P. Pechukas, J. C. Light, On the exponential form of time-displacement operators in quantum mechanics. *J. Chem. Phys.*, 1966, **44**(10) : 3897~ 3912

Theoretical Study of Coherent Control of State-Selected Excitation with Lasers

Zhou Benhan Zhan Mingsheng

*State Laboratory of Magnetic Resonance, Atomic and Molecular Physics,
Wuhan Institute of Physics and Mathematics, The Chinese Academy of Sciences, Wuhan 430071
Laser Spectroscopy Laboratory, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics,
The Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031*

(Received 9 March 1997; revised 23 October 1997)

Abstract The interaction of three-energy-level system and tricolor phase coherent laser is systematically studied, and the state population probabilities depending on phases and amplitudes of fields are demonstrated. As a conclusion, we referred to that it is possible to fulfil state-selected excitation by using coherent lasers. Virture and feasibility of using coherent lasers to perform overtone excitation are proposed.

Key words coherent control, Magnus-Light expansion, state-selected excitation, population probability.