

太赫兹辅助测量铷原子超快量子相干过程的理论研究*

凌中火¹⁾²⁾ 王帅²⁾⁵⁾ 张金仓¹⁾ 张逸竹^{2)3)†}
 阎天民^{2)‡} 江玉海^{2)4)5)††}

1) (上海大学物理系, 材料基因组工程研究院, 上海 200444)

2) (中国科学院上海高等研究院, 上海 201210)

3) (天津大学精密仪器与光电子工程学院, 太赫兹研究中心, 天津 300072)

4) (中国科学院大学, 北京 100049)

5) (上海科技大学, 上海 201210)

(2020年2月13日收到; 2020年5月13日收到修改稿)

太赫兹辅助光电离瞬态测量方法可以分辨超快量子拍频, 同时对复杂量子系统的超快密度矩阵演化进行成像. 本文依据这种方法提出了一种具体的实验方案, 利用紫外脉冲 (脉宽为 30 fs) 和高强度太赫兹脉冲 (峰值场强: 约 1 MV/cm) 组成复合探测电场, 探测铷原子 $5S_{1/2}$ 和 $5P_{3/2}$ 叠加态振荡周期约为 2.6 fs 的量子拍频过程, 量子体系密度矩阵演化的布居项和相干项投影在光电子动量谱的不同位置, 可以对密度矩阵演化实现完全信息测量. 本文设计的实验方案不需要阿秒高次谐波或自由电子激光等复杂的先进光源, 可以成为探索复杂量子体系超快相干动力学过程的新方案.

关键词: 超快量子相干动力学, 密度矩阵, 量子拍频, 太赫兹激光

PACS: 34.80.Pa, 32.80.-t

DOI: 10.7498/aps.69.20200218

1 引言

在量子力学中, 量子相干是由叠加态原理衍生出的一个基本概念. 量子相干现象非常普遍, 在许多量子体系中都扮演着重要的角色. 伴随着新激光技术的发展, 不同量子体系中超短周期的量子相干现象在实验中被观测到, 透过量子相干现象能够清晰地理解原子内电子强关联以及分子内复杂的原子电子相互作用. 例如, 在微观的原子分子体系中, 利用宽带的紫外短脉冲激光电离原子内壳层电子,

产生空穴相干态, 相干态的退相干时间大约在 10 fs 以内, 这种飞秒乃至亚飞秒超快量子相干现象不仅能够用于解释光电子与母核之间的物理关系, 也是实验中研究空穴波包时间演化和电子-母核纠缠关联体系的重要依据^[1-4]. 而对于复杂的宏观量子体系, 短周期的量子相干同样有着重要影响, 利用多维光谱的分析发现量子相干能够帮助生物分子进行光合作用时的能量运输, 不过当分子处于常温生存环境时, 量子相干态是否还可以促进能量传递目前还不得而知, 需要在实验上进一步去证实^[5-7].

* 国家自然科学基金 (批准号: 11827806, 11874368, 61675213) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: zhangyz@sari.ac.cn

‡ 通信作者. E-mail: yantm@sari.ac.cn

†† 通信作者. E-mail: jiangyh@sari.ac.cn

不同量子体系下各异的退相干时间使得人们发展出不同时间尺度上的量子相干探测技术. 对于超快过程, 二维电子光谱^[8-10]是探测量子相干动力学的重要实验工具, 它能在飞秒时间尺度上重构光诱导反应体系的密度矩阵随反应时间的演化. 二维光谱中, 沿对角线区域的谱线特征反映了密度矩阵中的布居信息, 而非对角区域处的谱线特征则蕴含了动力学过程中的量子相干信息. 然而, 由于飞秒激光的脉宽通常在 30 fs 以上, 单纯利用飞秒激光脉冲诱导与探测的方法很难分辨更短时间尺度上的量子相干现象.

观察更快的电子相干与弛豫过程则需要使用具有阿秒分辨率的测量手段. 阿秒瞬态吸收光谱^[11]是目前较成熟的阿秒探测方法之一, 例如, 它能以亚飞秒时间精度用于研究氮离子价电子的电子相干性^[12], 并用于观察氮原子中双电子波包的相干运动^[13,14]. 但是, 阿秒瞬态吸收光谱对实验装置与探测技术有着十分苛刻的要求, 需要亚飞秒乃至阿秒时间脉冲, 需要在测量过程中同时精确控制多个参量, 特别是, 飞秒光场的振幅和相位的精准度将直接影响着探测的光谱结果; 另外, 所测的一维谱图上因同时包含了交叠于一处的布居和相干信号, 相对微弱的相干信号很难从布居信号中分离出来, 这使得提取量子相干信息非常困难. 现阶段的自由电子激光装置也无法将高能光子脉冲压缩到亚飞秒量级, 因此, 在亚飞秒时间尺度上对相干动力学过程进行探测并非易事.

此外, 有理论提出将飞秒脉冲和相位锁定的近红外脉冲作为探测光作用于待测系统, 其光电子能谱可用于重构亚飞秒量级电子相干弛豫过程^[15]. 在探测过程中, 体系特征谱线两侧会出现带有高分辨率相干信息的边带谱线. 不过这种方法有一定的局限, 测量过程中边带谱线会使得电子能谱的结果变得非常复杂, 导致系统的特征谱线很难识别, 无法对光谱进行梳理和分析; 而且, 近红外脉冲光场的光子能量必须与系统本征能级共振, 这种匹配可能会增加实验的复杂度.

针对以上探测方法存在的缺点, 我们提出了一种新颖的瞬态探测技术, 利用太赫兹辅助光电离, 探测反应体系中密度矩阵的超快演化^[16]. 在我们的方法中, 探测光包括一束近紫外飞秒脉冲和太赫兹脉冲电场, 飞秒脉冲锁定在太赫兹电场矢势为零的位置, 通过探测太赫兹辅助光电离后的光电子动

量分布, 重构反应体系的时域密度矩阵演化, 密度矩阵中的布居项和相干项分别映射到不同能量的光电子谱谱峰, 易于识别和重构. 这种光谱方法有非常广泛的应用, 既能够识别周期远小于探测光脉宽的量子拍频, 研究亚飞秒量级的电子相干过程, 也可以用于提高桌面飞秒激光探测系统的时域分辨率. 对于自由电子激光, 其脉宽一般处于几十飞秒量级, 且波荡器可高质量地同步高能光子脉冲和太赫兹脉冲, 宜于实现我们的探测方案, 可进一步提高自由电子激光的时间分辨率.

在此工作中, 针对碱金属元素铷提出一种实现上述探测方法的实验方案. 碱金属最外层电子为单电子, 能级结构简单, 电离能仅为 4.18 eV, 紫外脉冲激光即可将铷电离. 此外, 铷原子能级间相干态的退相干时间可达数十秒^[17], 在超冷物理与化学领域被广泛研究^[18], 这非常利于我们去探测原子能级间的相干动力学关系. 相比之前的实验概念, 该实验方案无需大型自由电子激光装备和复杂的实验线站. 利用桌面飞秒激光系统和磁光阱反应显微谱仪^[19-21], 即可在普通实验室环境中实现我们提出的探测方案.

2 实验方案设想

实验方案设想如图 1 所示. 在磁光阱反应显微谱仪中^[19], 当铷原子作为反应靶时, 铷原子经过三维磁光阱冷却, 利用吸收成像法与光电离法可标定出铷原子的空间密度在 10^7 — 10^9 atoms/cm³, 飞秒激光聚焦的光斑束腰半径约为 10 μ m, 经过计算在光斑体积内约有 0.04—4.00 个原子, 选取约 10^8 atoms/cm³ 作为原子的空间密度, 这样可以保证单个脉冲体积内的原子数略小于 1, 探测离子既能保证实验的计数率, 同时避免产生空间电荷效应, 冷铷原子使得离子动量分辨率可达 0.12 a.u.. 对光电子而言, 由于电离能量比较大, 电离时原子被认为静止不动, 此时电子动量分辨和靶温度无关. 所以, 单独测量电子和离子都可以实现实验设想, 电子和离子符合探测会更有效降低实验噪音. 另外, 冷靶的使用可以减少原子碰撞, 维持相干态的相干时间, 这也是我们计划观测 5s 和 5p 量子拍频的前提. 铷原子的 5s 和 5p 能级间隔在 800 nm 附近, 首先利用红外脉冲激发可制备电子在 5s 与 5p 能级上的叠加态, 布局数分别约为 60% 和

40%. 飞秒基频光 (800 nm) 经过四倍频波长变换到 200 nm (6.2 eV), 脉冲宽度 30 fs. 通过单光子电离过程, 5s 和 5p 的电子被电离到连续态. 利用倾斜波面的飞秒激光脉冲抽运铷酸锂晶体产生高强度太赫兹脉冲^[22-24]. 基于桌面飞秒激光系统, 通过精密延迟线可以精确同步太赫兹脉冲和紫外脉冲, 紫外飞秒脉冲锁定在太赫兹电场矢势的零点. 在太赫兹电场的驱动下, 来自 5s 和 5p 轨道的光电子的运动轨迹受到调制, 形成干涉条纹, 干涉条纹中包含量子态的干涉信息. 电离发生后, 光电子由摄谱仪引出, 并通过微通道板和阳极延迟线探测器确定该光电子的末动量.

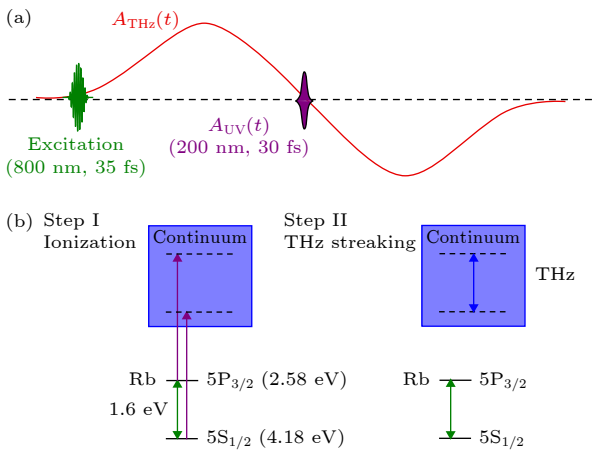


图 1 太赫兹辅助下的铷原子 5s 和 5p 能级光电离实验原理图 (a) 探测光含紫外飞秒激光脉冲和太赫兹脉冲, 紫外飞秒脉冲锁定于太赫兹矢势零点处, 将用于探测由红外光制备的铷原子叠加态的相干动力学过程; (b) 太赫兹辅助光电离过程示意图. 第一步, 紫外飞秒激光电离铷原子叠加态电子, 在光电子能谱上形成两条特征谱线; 第二步, 不同末动量的连续电子波函数在太赫兹的驱动下, 能谱展宽并发生干涉现象

Fig. 1. Schematic diagram of terahertz-streaking photoionization experiments. (a) The probe pulses consist of a ultraviolet pulse and a terahertz pulse. The ultraviolet pulse is locked at the zero point of terahertz vector potential. The superposition state of rubidium atoms is excited by an infrared pulse. (b) Schematic diagram in energy representation. First, the electrons in the superposition state of rubidium atoms are ionized by a UV femtosecond pulse to form two characteristic spectral lines in the photoelectron energy spectrum. Second, the continuous electron with different final momenta is driven by the terahertz pulse. The spectral lines are broadened and the interference occurs.

3 理论计算结果与分析

根据以上的实验条件给出数值计算结果, 展示

相干动力学成像和密度矩阵重构的可行性. 被磁光阱俘获的铷原子处于 $5S_{1/2}$ 和 $5P_{3/2}$ 的叠加态, 初态波函数为 $|\Psi_0(t)\rangle = \sqrt{0.6}|g\rangle e^{-iE_g(t-t_0)+i\varphi_g} + \sqrt{0.4}|e\rangle e^{-iE_e(t-t_0)+i\varphi_e}$, 其中, $|g\rangle$ 和 $|e\rangle$ 分别表示铷原子的基态 ($5S_{1/2}$) 与激发态 ($5P_{3/2}$), 基态和激发态的布居数大约为 60% 和 40%. 铷原子基态和激发态的能级分别为 $E_g = -4.18$ eV, $E_e = -2.58$ eV, 初始时刻的波函数相位假设在 $\varphi_g = \varphi_e = 0$. 设定紫外飞秒脉冲的光子能量 6.2 eV, 电场的峰值功率为 9.0×10^{11} W/cm², 脉冲宽度为 30 fs. 单周期太赫兹脉冲的中心频率为 1 THz, 峰值场强是 1 MV/cm. 桌面飞秒激光系统和磁光阱反应显微谱仪可满足以上条件.

利用强场近似^[25,26] 我们计算得到光电子动量分布 $w(p; \tau)$, p 为光电子的末动量, τ 为探测时间, 在实验中通过扫描延迟线改变 τ . 铷原子处于线性偏振场 $E(t) = E_{UV}(t) + E_{THz}(t)$, 沿着偏振方向采集电离信号 $w(p; \tau) = |p| |M_p(\tau)|^2$. 忽略高阶阈上电离的贡献, 直接电离几率幅为

$$M_p(\tau) = \lim_{t \rightarrow \infty} \int_0^t dt' e^{iS_p(t')} \langle p + A(t') | \hat{\mu} E(t') | \Psi_0(t') \rangle,$$

其中 $A(t) = A_{UV}(t) + A_{THz}(t)$ 为探测电场对应的矢势, 且

$$S_p(t') = \frac{1}{2} \int_0^{t'} dt'' [p + A(t'')]^2,$$

探测时间 τ 包含在 $E(t)$ 与 $A(t)$ 变量中, $\hat{\mu}$ 为跃迁偶极矩算符.

光电子发射过程包括两个阶段: 首先, 原子在紫外激光场的作用下发生单光子电离, 此时, 太赫兹电场的贡献可以忽略; 电离发生后, 因为 $|A_{UV}| \ll |A_{THz}|$, 自由电子运动主要受太赫兹电场驱动, 而紫外激光场的贡献可以忽略. 因此, 在不同的阶段, 紫外光场与太赫兹电场各自扮演不同的角色, 彼此独立. 从强场近似公式出发, 可解析地求得组合电场中的光电子动量分布. 紫外脉冲电场峰值为 $E_0^{(UV)}$, 当波函数的振幅在紫外脉冲脉宽时间范围内满足慢变近似时, 振幅 $|M_p(\tau)|^2$ 由布居项和相干项两部分组成,

$$|M_p(\tau)|^2 = \left(\frac{\pi (E_0^{(UV)})^2}{2 |b(p)|} \right) [W_{\text{pop}}(p; \tau) + W_{\text{coh}}(p; \tau)],$$

其中,

$$W_{\text{pop}}(p; \tau) = \sum_i \rho_{ii}(\tau) e^{-\left(\Omega_{ii}^2(p)/|b(p)\sigma|^2\right)}, \quad (1)$$

$$\begin{aligned} & W_{\text{coh}}(p; \tau) \\ &= 2 \sum_{i,j < i} \text{Re} \left[\rho_{ij}(\tau) e^{i(\alpha p \Omega_{ij}(p) \Delta_{ij}/|b(p)|^2)} \right] \\ & \quad \times e^{-\left(\Omega_{ij}^2(p)/|b(p)\sigma|^2\right)} e^{-\left((\Delta_{ij}/2)^2/|b(p)\sigma|^2\right)}, \quad (2) \end{aligned}$$

(1) 式中, ρ_{ii} 代表布局分布, $\Omega_{ij}(p) = 0$ 决定光电子的谱峰位置, $\Omega_{ij}(p) = p^2/2 + (I_p^{(i)} + I_p^{(j)})/2 - \omega_{\text{UV}}$ (当 $i = j$ 时, $\Omega_{ii}(p) = p^2/2 + I_p^{(i)} - \omega_{\text{UV}}$), 其中 p 为光电子的末动量, ω_{UV} 是紫外场的光子能量, $I_p^{(i)} = -E_i$ 是第 i 个本征态的电离能. 当 $i = j$ 时, 通过方程解 $p_{ii} = \pm \sqrt{2(\omega_{\text{UV}} - I_p^{(i)})}$ 处的谱峰对应于布居项 ρ_{ii} ; 同理, (2) 式中, ρ_{ij} 代表着相干分布, 此时 $i \neq j$, 解 $p_{ij} = \pm \sqrt{2(\omega_{\text{UV}} - (I_p^{(i)} + I_p^{(j)})/2)}$ 处的谱峰对应于相干项 ρ_{ij} . $|b(p)\sigma|$ 项决定着布居和相干峰值的谱线宽度, $|b(p)\sigma| = \sqrt{1/\sigma^2 + (\alpha p \sigma)^2}$, 且 $b(p) = 1/\sigma^2 - i\alpha p$, 可以得出, $b(p)$ 由 THz 场的振幅 α 和紫外场的时间宽度 σ 共同决定. 在方程 (2) 中, Δ_{ij} 为振荡频率, 定义 i 态与 j 态之间的瞬时相对相位为 $\phi_{ij}(\tau) = \Delta_{ij}\tau + \phi_i - \phi_j$, ϕ_i 和 ϕ_j 为两种态的初始相位, 其中振荡频率 Δ_{ij} 沿着 τ 的演变与 $\rho_{ij}(\tau)$ 保持一致, 由于 $\Delta_{ij} = I_p^{(i)} - I_p^{(j)}$ 是指数项, 相干项 W_{coh} 相对布居项 W_{pop} 较小, 但是随 THz 电场增强, 相干项 W_{coh} 的振幅也会增大. 通过飞秒激光抽运铷酸锂晶体产生的 THz 源很容易就得到的强度为 MV/cm 量级的太赫兹电场, 这种强度已经足够调制来自铷原子 5s 和 5p 能级的自由电子, 形成明显的相干条纹.

在 p_{ij} 的临近区域内, 方程 (2) 中实数部分的指数项与 p 是线性比例关系, 因此取近似,

$$p \Omega_{ij}^2(p) / |b(p)\sigma|^2 \approx p_{ij}^2 (p - p_{ij}) / (1/\sigma^4 + \alpha^2 p_{ij}^2),$$

从而可得出方程 (2) 中相干项的实部为

$$|\rho_{ij}(\tau)| \cos \left[-\frac{\Delta_{ij} \alpha p_{ij}^2 (p - p_{ij})}{1/\sigma^4 + \alpha^2 p_{ij}^2} + \phi_{ij}(\tau) \right],$$

表示光谱随着动量 p 和时间延迟 τ 振荡.

利用实验设想所给出的紫外光场与太赫兹探测场的实验参数、以及铷原子的布居分布与自身的物理参数 (5S_{1/2} 态电离能为 4.18 eV, 5P_{3/2} 态电离能为 2.58 eV), 计算跃迁振幅 $|M_p(\tau)|^2$ 可得到铷原子光电离后的光电子动量分布 $w(p; \tau)$. 图 2 对比了

只有紫外电场的光电子动量谱与太赫兹辅助光电离下的光电子动量谱. 图 2(a) 中动量峰值出现在 $p_{\text{gg}} = 0.384$ a.u. 和 $p_{\text{ee}} = 0.514$ a.u. 处, 根据光电子能量公式 $\omega_{\text{UV}} - I_p^{(i)}$, 知它们分别对应于来自铷原子 5s 和 5p 能级的出射光电子. 因为激光冷却中基态与激发态的布居数被假定为常数, 图 2(a) 中两个动量峰的振幅不随时间变化.

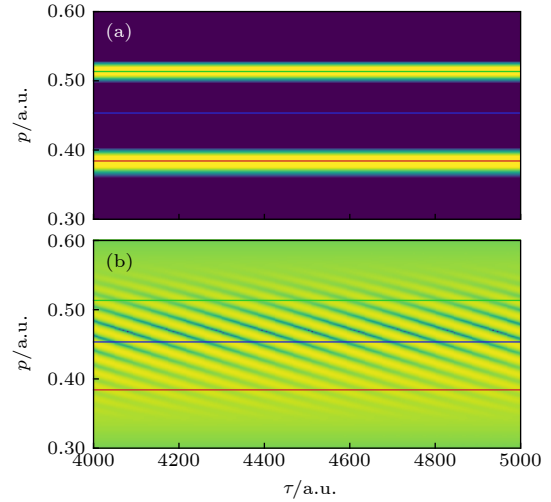


图 2 光电子动量谱随抽运-探测时间的演化 (a) 仅紫外脉冲电离铷原子情况下光电子的动量谱; (b) 太赫兹电场辅助光电离下光电子的动量谱

Fig. 2. The evolution of photoelectron momentum spectra as a function of time delay: (a) Photoelectron momentum spectra without a terahertz field; (b) photoelectron momentum spectra with a terahertz field.

在 THz 电场的作用下, 图 2(b) 中的两个动量谱峰被明显拓宽, 中间区域发生重叠, 从铷原子 5s 和 5p 能级出射的光电子可以作为两条电离路径, 且两条电离路径的末动量相同, 在测量中无法区分, 因此造成了动量谱的中间区域的量子干涉现象, 如图 2(b) 中的干涉条纹. 干涉条纹的振荡周期是 105 a.u. (约 2.6 fs), 与基态和激发态之间的能量差 1.6 eV (周期为约 2.6 fs) 相吻合. 干涉条纹的周期远小于紫外探测光的脉冲宽度 (约 30 fs, 约 1260 a.u.), 这表明太赫兹辅助光电离的方法允许我们分辨时间尺度远小于探测脉宽的相干动力学过程.

通过对比图 2 数据与 (2) 式的解析表达式, 可以重构密度矩阵随时间的演化, 理论结果见图 3. 由 (2) 式, 在图 2(a) 中的 $w(p = p_{\text{gg}}; \tau)$ 和 $w(p = p_{\text{ee}}; \tau)$, 即图 2(a) 中红线和绿线的位置, 可以重构铷原子基态和激发态布居数随时间的演化. 这里, 铷原子

基态和激发态布居不再改变, 因此, 相应动量处的两条谱线 (图 2(a) 中红线与绿线), 不随演化时间发生变化. 在图 2(b) 中, 当 $p = p_{eg}$ 时, 沿蓝色实线可以提取相干项随时间的演化 $w(p = p_{eg}; \tau)$, 所得信号如图 3(a) 中的蓝色点线所示, 光电子信号随时间发生快速振荡. 对比理论得到的相干项 $\text{Re}[\rho_{eg}(\tau)]$ (图 3(a) 中蓝色实线), 解析和数值计算结果符合得很好.

在太赫兹电场的驱动下, 光电子动量谱随动量 p 变化也呈现出振荡行为. 图 3(b) 展示了图 2(b) 中在 $\tau = 4000$ a.u. 时的动量分布图. 图 3(b) 中的动量分布 (黄色实线) 包含布居项 W_{pop} 和相干项 W_{coh} 的贡献. 如 (2) 式中所示, W_{pop} 的贡献 (图 3(b) 红线) 和 W_{coh} (图 3(b) 绿线) 之和 (图 3(b) 蓝线), 同数值模拟的结果符合很好, 说明光电子动量分布可用于对密度矩阵的布居项 $\rho_{ii}(\tau)$ 和相干项 $\rho_{ij}(\tau)$ 进行重构. 此外, W_{coh} 的振荡特征可用于重构量子叠加态的瞬时相位, 可选取其位于 $p = p_{eg}$ 的信号值计算对应叠加态的相对量子相位, 而随延迟时间 τ 的变化可重构密度矩阵中 $\text{Re}[\rho_{eg}(\tau)]$ 的演化过程. 从图 2 和图 3 的分析中可知, 利用太赫兹辅助光电离的方法, 光电子动量谱在沿反应时间 τ 维度和随动量 p 变化时都呈现快速的干涉条纹, 根据干涉条纹能够很好地重构出铷原子二能级体系量子叠加态的相位关系. 结合解析结果, 通过设计相应的算法, 能够重构量子体系密度矩阵随时间的演化.

通过数值模拟的情况可以推演出模拟结果对模拟参数的依赖程度, 从而得出此方法在具体实验室环境中的可行性. 在模拟中发现, 由于铷原子的是单光子电离, 且电离能很低 (4.18 eV), 紫外飞秒脉冲的单光子能量为 6.2 eV, 足以把 5s 和 5p 电子从铷原子里电离出去, 一般实验室中单脉冲能量为 mJ 量级的普通桌面飞秒激光器产生的激光光强在约 10^{15} W/cm², 此类激光器通过倍频晶体得到的紫外飞秒脉冲的光强在约 10^{12} W/cm² (通过调节功率可调), 通过理论模拟发现, 在可调紫光脉冲功率的范围内, 铷原子 5s 与 5p 两条能级谱分离开, 且随着光强的增大无明显变化. 激光的脉冲持续时间可以通过调节激光器内的光栅对来得到理想的脉宽, 因此普通的飞秒脉冲激光器在原则上可以符合理论模拟的参数要求. 模拟结果显示, 太赫兹的频率低于 10 THz 时, 相干分辨的结果受到的影响不大, 但处于高频太赫兹时, 相干图像会受到

非常严重的畸变; 而太赫兹的强度在符合近似条件范围 ($|A_{UV}| \ll |A_{THz}|$) 时, 强度越大, 所得到的相干分辨的结果越清晰, 同时也更加准确, 当太赫兹的电场强度低于 MV/cm 时, 两条通道之间的干涉条纹逐渐变形, 无法得到有助于分析的量子相干信息. 目前, 我们在实验室内以铷酸锂晶体为作用介质通过倾斜波前的方式产生的太赫兹基本是频率处于 3 THz 以下的低频太赫兹辐射, 且电场强度已经达到了 MV/cm 的量级.

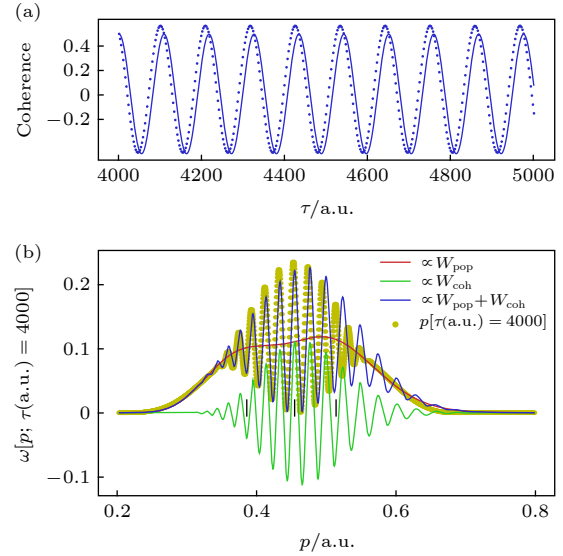


图 3 量子相干信息的时域分辨以及计算与理论的拟合 (a) 重构体系的相干动力学过程, 实线为理论相干项 $\text{Re}[\rho_{eg}(\tau)]$, 虚线为图 2(b) 中蓝线提取的相干相位信息; (b) 黄线为在太赫兹电场驱动下 $\tau = 4000$ a.u. 时的光电子动量分布, 红线代表布居项贡献, 绿线代表着相干项的贡献

4 结 论

综上所述, 本文提出一种利用波长 200 nm 脉宽 30 fs 激光和太赫兹脉冲激光组成的复合探测光场, 数值仿真可以观察到铷原子 $5S_{1/2}$ 和 $5P_{3/2}$ 叠加态振荡周期约为 2.6 fs 的演化过程. 和传统的瞬态光谱方法相比, 在太赫兹场辅助下利用飞秒量级的紫外探测脉冲, 可以获得亚飞秒精度的量子相干拍

频信息. 通过设计算法, 可以重构量子体系的密度矩阵演化. 该实验方案切实可行, 利用桌面飞秒激光系统和磁光阱反应显微谱仪等技术, 可实现我们提出的太赫兹辅助光电离瞬态测量方案. 太赫兹辅助技术也将成为一种探究量子相干动力学的新方法, 未来和短波自由电子激光结合, 将大大提升该大型平台时间分辨的探测能力.

参考文献

- [1] Pabst S, Greenman L, Ho P J, Mazziotti D A, Santra R 2011 *Phys. Rev. Lett.* **106** 053003
- [2] Arnold C, Vendrell O, Santra R 2017 *Phys. Rev. A* **95** 033425
- [3] Willenberg B, Maurer J, Mayer B W, Keller U 2019 *Nat. Commun.* **10** 5548
- [4] Hartung A, Eckart S, Brennecke S, Rist J, Trabert D, Fehre K, Richter M, Sann H, Zeller S, Henrichs K, Kastirke G, Hoehl J, Kalinin A, Schöffler M S, Jahnke T, Schmidt L P H, Lein M, Kunitski M, Dörner R 2019 *Nat. Phys.* **15** 1222
- [5] Collini E, Scholes G D 2009 *Science* **323** 369
- [6] Collini E, Wong C Y, Wilk K E, Curmi P M G, Brumer P, Scholes G D 2010 *Nature* **463** 644
- [7] Engel G S, Calhoun T R, Read E L, Ahn T K, Mančal T, Cheng Y C, Blankenship R E, Fleming G R 2007 *Nature* **446** 782
- [8] Brixner T, Stenger J, Vaswani H M, Cho M, Blankenship R E, Fleming G R 2005 *Nature* **434** 625
- [9] Meng Q X, Zhang Y Z, Yan T M, Jiang Y H 2017 *Opt. Express* **25** 6644
- [10] Zhang Y Z, Yan T M, Jiang Y H 2016 *Opt. Lett.* **41** 4134
- [11] Kobayashi Y, Chang K F, Zeng T, Neumark D M, Leone S R 2019 *Science* **365** 79
- [12] Goulielmakis E, Loh Z H, Wirth A, Santra R, Rohringer N, Yakovlev V S, Zherebtsov S, Pfeifer T, Azzeer A M, Kling M F, Leone S R, Krausz F 2010 *Nature* **466** 739
- [13] Ott C, Kaldun A, Argenti L, Raith P, Meyer K, Laux M, Zhang Y, Blättermann A, Hagstotz S, Ding T, Heck R, Madroñero J, Martín F, Pfeifer T 2014 *Nature* **516** 374
- [14] Ott C, Aufleger L, Ding T, Rebholz M, Magunia A, Hartmann M, Stooß V, Wachs D, Birk P, Borisova G D, Meyer K, Rupprecht P, da Costa Castanheira C, Moshhammer R, Attar A R, Gaumnitz T, Loh Z H, Dürster S, Treusch R, Ullrich J, Jiang Y H, Meyer M, Lambropoulos P, Pfeifer T 2019 *Phys. Rev. Lett.* **123** 163201
- [15] Kowalewski M, Bennett K, Rouxel J R, Mukamel S 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 043201
- [16] Zhang Y Z, Yan T M, Jiang Y H 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 113201
- [17] Deutsch C, Ramirez-Martinez F, Lacroute C, Reinhard F, Schneider T, Fuchs J N, Piéchon F, Laloe F, Reichel J, Rosenbusch P 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 020401
- [18] Mudrich M, Stienkemeier F, Drosselmann G, Claas P, Schulz C 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 023401
- [19] Li R Y, Yuan J Y, Wang X C, Hou X Y, Zhang S, Zhu Z Y, Ma Y X, Gao Q, Wang Z Y, Yan T M, Qin C C, Li S, Zhang Y Z, Weidemüller M, Jiang Y H 2019 *J. Instrum.* **14** P02022
- [20] Yuan J Y, Ma Y X, Li R Y, Ma H Y, Yan T M, Zhang Y Z, Ye D F, Shen Z J, Wang X C, Weidemüller M, Jiang Y H 2020 *Chin. Phys. Lett.* **37** 053201
- [21] Ma Y X, Li R Y, Yuan J Y, Meng Q X, Ma H Y, Ruan S S, Zhang Y Z, Yan T M, Shen Z J, Wang X C, Jiang Y H 2020 *Chinese J. Lasers* **47** 0601011 (in Chinese) [马祎璇, 李任远, 袁俊阳, 孟秋香, 马欢玉, 阮舒舒, 张逸竹, 阎天民, 沈镇捷, 王新成, 江玉海 2020 *中国激光* **47** 0601011]
- [22] Hirori H, Doi A, Blanchard F, Tanaka K 2011 *Appl. Phys. Lett.* **98** 091106
- [23] Ravi K, Huang W R, Carbajo S, Wu X J, Kärtner F 2014 *Opt. Express* **22** 20239
- [24] Wu X J, Carbajo S, Ravi K, Ahr F, Cirimi G, Zhou Y, Mücke O D, Kärtner F X 2014 *Opt. Lett.* **39** 5403
- [25] Huang W X, Zhang Y Z, Yan T M, Jiang Y H 2016 *Acta Phys. Sin.* **65** 223204 (in Chinese) [黄文道, 张逸竹, 阎天民, 江玉海 2016 *物理学报* **65** 223204]
- [26] Huang Y, Qin C C, Zhang Y Z, Wang X C, Yan T M, Jiang Y H 2019 *Chin. Phys. B* **28** 93202

The theoretical study of terahertz-streaking photoionization for ultrafast imaging of density matrix in rubidium atom^{*}

Ling Zhong-Huo¹⁾²⁾ Wang Shuai²⁾⁵⁾ Zhang Jin-Cang¹⁾ Zhang Yi-Zhu^{2)3)†}
 Yan Tian-Min^{2)‡} Jiang Yu-Hai^{2)4)5)††}

1) (*Materials Genome Institute, Department of Physics, Shanghai University, Shanghai 200444, China*)

2) (*Shanghai Advanced Research Institute, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201210, China*)

3) (*Center for Terahertz Waves, College of Precision Instrument and Optoelectronics Engineering, Tianjin University, Tianjin 300072, China*)

4) (*University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*)

5) (*ShanghaiTech University, Shanghai 201210, China*)

(Received 13 February 2020; revised manuscript received 13 May 2020)

Abstract

Terahertz-streaking photoionization can be exploited to resolve ultrafast quantum beating and reconstruct the ultrafast evolution of density matrix. Here, we propose an experimental strategy to implement the method merely with the tabletop femtosecond system and magneto-optical trap reaction microscopy. The probe pulse consists of an ultraviolet pulse with pulse duration of about 30 fs and a strong terahertz pulse with strength of about 2.6 fs in rubidium-atom superposition. The population and coherence terms of the density matrix can be projected into different positions of the photoelectron momentum distribution. The reconstruction algorithm was designed to acquire the ultrafast evolution of density matrix from the time-dependent photoelectron spectrum. The experimental conception can demonstrate the newly proposed transient spectral method only with the commercial femtosecond laser system and magneto-optical trap reaction microscopy, thus preventing the complex laser system, such as extreme ultraviolet free electron lasers and attosecond higher harmonics, allowing a new metrology to explore the coherence dynamics of quantum systems.

Keywords: ultrafast quantum coherence dynamics, density matrix, quantum beating, terahertz laser

PACS: 34.80.Pa, 32.80.-t

DOI: 10.7498/aps.69.20200218

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11827806, 11874368, 61675213).

† Corresponding author. E-mail: zhangyz@sari.ac.cn

‡ Corresponding author. E-mail: yantm@sari.ac.cn

†† Corresponding author. E-mail: jiangyh@sari.ac.cn