

啁啾脉冲激发的瞬态双光子跃迁探究*

任立庆† 杨易达 魏迎春

(榆林学院能源工程学院, 榆林 719000)

(2025 年 7 月 5 日收到; 2025 年 7 月 20 日收到修改稿)

在强场激发的一般情况下, 斯塔克效应对于瞬态双光子跃迁具有重要影响, 且该过程的解析描述具有很大挑战. 本文采用解析求解与数值模拟相结合的方法, 系统研究了弱场和强场啁啾脉冲激发的瞬态双光子跃迁过程, 揭示了光场强度、啁啾因子、失谐量等参数对双光子跃迁概率时域演化的重要影响. 首先, 本文利用二阶微扰理论得到了双光子时域跃迁概率振幅的近似解析解表达式. 该解析解表明, 弱场激发的瞬态双光子跃迁过程类似于菲涅耳直边衍射效应. 随着光场强度的增强, 斯塔克效应对双光子跃迁的影响随之增强. 其次, 本文通过一系列近似处理得到了强场作用下薛定谔方程的近似解析解. 此解析解表明, 强场斯塔克效应引起能级分裂使得双光子跃迁概率时域的对称性遭到了破坏, 其频域过程类似于“双缝干涉”效应. 研究结果表明, 强场激发时布居转移效率与光场强度具有重要关系, 而啁啾因子不仅可以调节布居转移效率和时间位置, 还可以改变布居概率在时域的振荡频率. 这对于强场激发的布居概率时域演化描述提供了新思路, 并对双光子显微成像研究提供了科学依据.

关键词: 双光子跃迁, 瞬态过程, 微扰理论, 啁啾因子

PACS: 42.65.-k, 42.50.Ct, 42.50.Hz, 42.65.Re

DOI: 10.7498/aps.74.20250879

CSTR: 32037.14.aps.74.20250879

1 引言

相干调控的发展和进步与飞秒脉冲整形技术的发展紧密相关^[1]. 大多数相干控制方案都应用于弱场激发的情况^[2]. 在这些研究方案中, 原子系统的能级结构受激励场的影响可以忽略不计, 因而可以使用微扰理论描述整个动力学过程^[3]. 在时域, 飞秒啁啾脉冲产生的波函数包络的演化过程先快速增大, 然后围绕着某一渐近值发生有趣的振荡现象, 其跃迁概率随时间的演化类似于经典的菲涅耳直边衍射^[4-6]. 在这样的体系中, 使用自适应 (闭环) 和脉冲整形方案的相干控制研究得到了广泛研

究和报道^[7-9]. 通过整形飞秒脉冲来实现的相干控制, 一般是控制光场的脉冲谱相位、谱振幅或谱频率分量的偏振^[10-12], 并且这些方案可以对多光子吸收过程实现有效控制. 其控制原理是基于相干控制脉冲诱导的多个初态到终态的多光子通道之间的干涉过程: 即跃迁通道之间相长干涉导致吸收增强 (即增加跃迁概率), 而跃迁通道之间相消干涉导致吸收减弱 (即减小跃迁概率).

强场激发下多光子吸收过程的相干调控对于非线性光谱与显微成像研究具有重要科学意义与应用价值. 与空间液晶调制器实现的整形脉冲调控相比, 色散扫描以其简单、廉价、易操作特性得到了非线性光学领域研究人员的青睐^[13]. 不仅如此,

* 国家自然科学基金 (批准号: 12464047, 12064046)、陕西省科技资源共享平台 (批准号: 2023-CX-PT-16)、陕西省“三项改革-以演代评”项目 (批准号: 2024-ZC-YYDP-63)、榆林市中青年科技领军人才项目 (批准号: 2024-KJZG-ZQNLJ-005) 和榆林市科技局产学研项目 (批准号: 2024-CXY-068) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: liqing_ren@yulinu.edu.cn

色散扫描还可以在四波混频过程中实现快速绝热通道^[14]. 这一技术在二次谐波产生过程中宽带激光强度噪声抑制^[15]、基于宽带频率转换的集成光子学^[16]领域具有重要的应用. 将时域微扰描述通过傅里叶方法变换到频域可以详细描述多光子吸收过程, 然而多数频域描述仅限于弱场情况^[17].

当系统的能级结构由高强度激光来激发调制时, 理论描述就变得更具有挑战性. 这是由于该过程所产生的能量本征值是由超快激光脉冲的时间线型决定的. 迄今为止, 只有少量方法用于确定脉冲整形方案, 以有效进行超快强场控制. Dudovich^[18]研究了铯原子中的一个二能级系统, 结果表明, 真实场(在复杂平面中只有一个四边形的正弦或余弦光谱相)可以用于多光子吸收, 同时消除斯塔克移动效应. Lee等^[19]结合理论计算与实验研究分析并证明了强场激发条件下三能级系统中三光子吸收过程. Chatel等^[20]研究了二能级系统中单光子激发条件下终态布居概率随时间的演化过程. Tagliamonti等^[21]采用脉冲整形器产生的泵浦/探测脉冲研究了强场分子离解过程涉及的非绝热分子动力学. Trallero-Herrero等^[22]研究了强场作用下Na原子系统中斯塔克效应对多光子跃迁的影响. 该研究对于强场激发下的Na原子二能级系统研究具有重要启发意义. 但有关二能级系统中瞬态多光子跃迁理论和实验研究鲜见报道.

本文利用啁啾脉冲相位随时间线性变化这一特性, 研究了飞秒啁啾脉冲双光子激发的布居概率随着啁啾因子的变化规律, 并展示出了自然的时域演化过程; 系统地研究了弱场和强场啁啾脉冲激发下, 时域双光子跃迁概率与啁啾因子和失谐量的关系; 最后讨论了强啁啾场相干控制与相应的干涉机理, 为非线性光谱和显微成像研究提供科学依据.

2 物理模型

图1所示为从基态 $|g\rangle$ 到终态 $|f\rangle$ 的非共振双光子跃迁, 光场中心频率为 ω_0 , 失谐量为 $\delta = 2\omega_0 - \omega_{fg}$, 其中 ω_{fg} 是从基态 $|g\rangle$ 到终态 $|f\rangle$ 的跃迁频率. 图中实线表示的是原子系统中存在的能级, 而虚线表示虚能级. 原子的双光子吸收是二能级原子系统中的基态 $|g\rangle$ 到终态 $|f\rangle$ 的过程. 基态 $|g\rangle$ 和终态 $|f\rangle$ 是通过许多具有合适对称性的态 $|n\rangle$ 耦合的. 脉冲谱振幅在所有相应的跃迁频率处都为

零($E(\omega_{fn}) = E(\omega_{gn}) = 0$), 即脉冲谱对 $|f\rangle - |n\rangle$ 和 $|g\rangle - |n\rangle$ 的耦合都是非共振的, 相应的激发方案如图1所示.

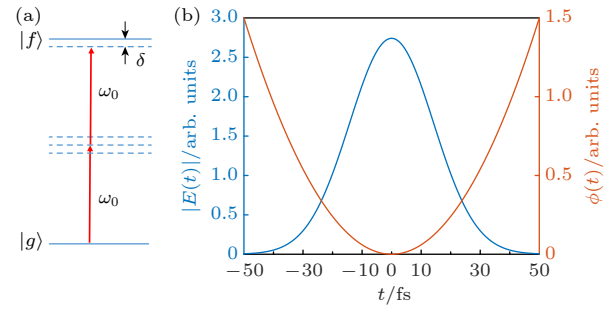


图1 飞秒啁啾脉冲驱动下双光子跃迁的激发方案 (a) 二能级原子系统中双光子跃迁模型; (b) 飞秒啁啾脉冲的高斯线形包络(蓝色)和相位分布(橙色)

Fig. 1. Excitation scheme of two-photon transition by a femtosecond chirped pulse: (a) Two-photon transition model in a two-level atomic system; (b) Gaussian profile envelope (blue) and the phase distribution (orange) of the femtosecond chirped pulse.

假定光场的时间分布为高斯线型 $\varepsilon(t) = \varepsilon_0 \times e^{-t^2/\tau^2} e^{-i\omega_0 t} e^{-i\phi_c(t)}$, 其中 $E(t) = \varepsilon_0 e^{-t^2/\tau^2}$ 为时域高斯包络(如图1(b)中蓝色实线所示), ε_0 为时域常振幅, τ 为脉冲宽度, ω_0 为谱中心频率, $\phi_c(t)$ 为时域谱相位分布(如图1(b)中橙色实线所示). 对于时域线性啁啾脉冲而言, $\phi_c(t) = \alpha t^2$, 其中 α 为啁啾速率, 单位为 fs^{-2} .

3 理论描述

利用旋转波近似和旋转坐标系, 可获得如下薛定谔方程^[22]:

$$i\hbar \frac{d}{dt} \begin{pmatrix} a_g \\ a_f \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\dot{\phi}(t)/2 & \chi^*(t) \\ \chi(t) & \dot{\phi}(t)/2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_g \\ a_f \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\frac{\dot{\phi}(t)}{2} a_g + \chi^*(t) a_f \\ \chi(t) a_g + \frac{\dot{\phi}(t)}{2} a_f \end{pmatrix}, \quad (1)$$

其中, $\hat{H}(t) = \begin{pmatrix} -\dot{\phi}(t)/2 & \chi^*(t) \\ \chi(t) & \dot{\phi}(t)/2 \end{pmatrix}$, $\chi(t)$ 是双光子耦合场或双光子随时间变化的拉比频率, a_g 和 a_f 分别为基态和终态的概率振幅. 原子-光场相位定义如下:

$$\phi(t) = -\phi_s(t) - \phi_d(t) + \phi_c(t), \quad (2)$$

式中, $\phi(t)$ 描述的是原子和光场的相位匹配程度,

其中, $\phi_s(t) = -\int_{-\infty}^t \delta_\omega^{(s)}(t')dt'$ 为斯塔克移动引起的相位, $\delta_\omega^{(s)}(t) = \frac{1}{2} [\omega_f^{(s)}(t) - \omega_g^{(s)}(t)]$ 称为斯塔克移动引起的随时间变化的失谐量; $\phi_d(t) = \delta t$ 是与常失谐 δ 有关的相位; $\phi_c(t)$ 为光场自身携带的相位. $\omega_g^{(s)}(t)$ 和 $\omega_f^{(s)}(t)$ 分别表示基态和终态的动力学斯塔克移动. 通过对所有远失谐能级求和可以给出 $\omega_g^{(s)}(t)$ 和 $\omega_f^{(s)}(t)$ 及 $\chi(t)$ 的详细表示式^[22-25]:

$$\omega_g^{(s)}(t) = -\sum_m \frac{\mu_{mg}^2 E^2(t)}{2\hbar^2} \frac{\omega_{mg}}{\omega_{mg}^2 - \omega_0^2}, \quad (3)$$

$$\omega_f^{(s)}(t) = -\sum_m \frac{\mu_{fm}^2 E^2(t)}{2\hbar^2} \frac{\omega_{fm}}{\omega_{fm}^2 - \omega_0^2}, \quad (4)$$

$$\chi(t) = -\sum_m \frac{\mu_{fm}\mu_{mg}}{4\hbar^2} \frac{E^2(t)}{\omega_{mg} - \omega_0}. \quad (5)$$

这里 $\mu_{ij} = \langle i | \hat{\mu} | j \rangle$ 是能级 $|i\rangle$ 和 $|j\rangle$ 之间的偶极矩阵元, $\omega_{ij} = (E_i - E_j)/\hbar$ 是相应的跃迁频率.

3.1 弱场驱动时的双光子跃迁概率

在弱场条件下, 光电场 $\varepsilon(t)$ 激发 Na 原子所得终态 $|f\rangle$ 上的含时概率振幅 $a_f(t)$ 可以有效地使用二阶含时微扰理论来描述^[22]. 这种相互作用的微扰解是假设在弱光场共振激发下, 基态概率振幅满足 $|a_g(t)| \approx 1$, 且斯塔克移动引起的随时间变化的失谐量满足 $\delta_\omega^{(s)} \approx 0$ 的条件下得到的. 为了明确强场激发和弱场激发的界限, 定义 $\delta_\omega^{(s)} \approx 0$ 为弱场激发的情况, $\delta_\omega^{(s)}$ 不能忽略不计的情况则为强场激发的情况. 因此, 根据方程 (1) 和前面的微扰假设, 以及二阶微扰近似可以得到^[4]:

$$a_f^{(2)}(t) = -\frac{1}{\hbar^2} \sum_m \mu_{fm}\mu_{mg} \int_{-\infty}^t \varepsilon(t_1) e^{i\omega_{fm}t_1} \times \left(\int_{-\infty}^{t_1} \varepsilon(t_2) e^{i\omega_{mg}t_2} dt_2 \right) dt_1. \quad (6)$$

假定在双光子过程中光场的作用是连续激发的, 并假定中间能态都远离共振, 则 (6) 式可以近似写为^[4]

$$a_f^{(2)}(t) \propto \int_{-\infty}^t \varepsilon^2(t') \exp(i\omega_{fg}t') dt'. \quad (7)$$

利用傅里叶变换可以将 (7) 式转换到频域研究^[4]. 在时域, (7) 式可以表示为^[6]

$$a_f^{(2)}(t) \propto \{B + C(t) + S(t)\}. \quad (8)$$

(7) 式花括号内第 1 项 $B = K \int_{-\infty}^0 \exp(-i\beta t_1^2) dt_1$ 为

常数 (复数), 后两项分别为

$$C(t) = K \int_0^{t+\Delta/2\alpha} \cos(\beta t_1^2) dt_1, \quad (9)$$

$$S(t) = K \int_0^{t+\Delta/2\alpha} \sin(\beta t_1^2) dt_1, \quad (10)$$

其中 $K = \varepsilon_0^2 \exp\left(i\frac{\Delta^2}{4\beta^2}\right)$ 和 $\beta = 2(\alpha - i/\tau^2)$ 均为复常数, $C(t)$ 和 $S(t)$ 称为菲涅耳积分, Δ 为常数失谐量. 菲涅耳积分是由积分定义的一类特殊函数. 在一般情况下, 菲涅耳积分没有清晰的数学展开式. 但是, 在 t 值较小的时候, 令 $T = t + \Delta/(2\beta)$, (8) 式中的菲涅耳积分, 即 (9) 式和 (10) 式可以用幂级数展开, 得

$$C(t) = KT \left[1 - \frac{1}{2!5} \left(\frac{2}{\pi} \beta T^2 \right)^2 + \frac{1}{4!9} \left(\frac{2}{\pi} \beta T^2 \right)^4 - \dots \right], \quad (11)$$

$$S(t) = KT \left[\frac{1}{1!3} \left(\frac{2}{\pi} \beta T^2 \right) - \frac{1}{3!7} \left(\frac{2}{\pi} \beta T^2 \right)^3 + \frac{1}{5!11} \left(\frac{2}{\pi} \beta T^2 \right)^5 - \dots \right], \quad (12)$$

(11) 式和 (12) 式对于所有的 T 值都收敛. 因此在斯塔克相位 $\phi_s(t) = 0$ 时, 原子-光场相位匹配主要取决于啁啾相位 ϕ_c 和常失谐相位 ϕ_d . 这样, 啁啾相位 ϕ_c 的时域分布如图 1 所示, 其关于 $t = 0$ 对称, 也可以说, 啁啾相位以 αt 的线性形式调制光场的频率. 正是在啁啾相位线性调制的作用下, 双光子激发的终态布居概率才呈现出类似于菲涅耳直边衍射的效果. 在啁啾脉冲作用下, 单光子跃迁过程也类似于菲涅耳直边衍射, 其详细描述参考我们前期的研究工作^[4]. 啁啾相位中的 αt 决定着布居概率的振荡频率. 终态波函数的实部和虚部完全由 (8) 式描述, 二者之间形成考纽螺线曲线^[5], 它们与时间的关系构成一个三维的图像^[4].

同等条件下与单光子激发的情况对比发现, 双光子终态布居概率要弱得多. 这是由于在微扰光场作用下, 光场强度是个小量. 双光子激发的布居概率强度与光场强度的平方成正比, 而单光子激发的布居概率的强度正比于光场的强度. 另外一个区别是双光子激发的布居概率是由两个光子共同激发的, 其振荡频率是单光子激发的二倍. 失谐量引起的相位对于双光子激发的终态布居概率具有衰减效应. 脉冲宽度对于布居概率的影响和单光子终态

布居概率类似. 综上, 利用二阶微扰理论获得了薛定谔方程组的近似解析解. 这个解析解可以利用菲涅耳积分表示, 并且可以进一步利用级数展开.

利用 (8) 式可以计算双光子激发的布居概率在时域随着啁啾因子的分布情况, 如图 2(a) 所示. 本文讨论 $\delta = 0$ 的情况. 当 $\alpha \neq 0$ 时终态布居概率随着时间的演化, 先增大达到最大值, 然后振荡并趋于一个稳定值. 该结果也类似于文献 [4–6] 所描述的情况, 但相比单光子跃迁过程振荡频率稍快, 如图 2(b) 所示. 这是由于双光子跃迁过程具有相位累积和调制的结果. 当 $\alpha = 0$ 时, 即 $\phi_d = 0$ 时原子-场相位变为啁啾相位, 见方程 (2). 啁啾相位将主导布居概率、波函数实部和虚部的分布. 啁啾脉冲变为变换受限脉冲, 终态布居概率随着时间增大, 但没有振荡过程, 如图 2(c) 所示. $\alpha = 0$ 时波函数实部和虚部都是逐渐增大的过程, 只是增大的速率有差异, 如图 2(f), (i) 所示. 图 2(d), (g) 描述的是终态波函数实部和虚部随时间和啁啾因子的变化. 终态实部和虚部的分布相互补偿, 构成了布居概率的分布. 布居概率、波函数实部和虚部都关

于 $\alpha = 0$ 呈对称分布. 其中, 波函数实部沿着时间方向的分布类似于“鱼尾”形状. 波函数的虚部对称地分居 $\alpha = 0$ 的两侧, 呈“扇叶”状沿着时间轴依次排列. 类似于终态布居概率随着时间的变化, 波函数实部和虚部都具有振荡过程, 如图 2(e), (h) 所示. 该计算结果和利用四阶龙格库塔法的数值模拟结果一致. 微扰理论可以研究在弱场扰动的情况下终态波函数随着时间的演化过程. 非微扰计算 (数值模拟) 不仅可以验证微扰计算结果, 而且可以研究一般情况下基态和终态波函数的时域演化.

利用 (8) 式也可以得到终态布居概率以及波函数实部和虚部随着时间和失谐量变化而演化的结果, 如图 3 所示. 从图 3(a) 可以看出, 当失谐量 $\delta \approx -600$ THz 时布居转移效率最高. 这是由于我们计算时取了正的啁啾因子的缘故, 负失谐量补偿正啁啾频率才能达到变换受限脉冲激发的极值. $\delta \approx -600$ THz 的两侧, 布居概率尽管都随时间有振荡现象出现, 但转移效率逐渐降低, 如图 3(b) 所示. 图 3(c) 给出了终态波函数随着时间与失谐量的演化. 类似于图 3(b), 图 3(d) 描述的是同样的

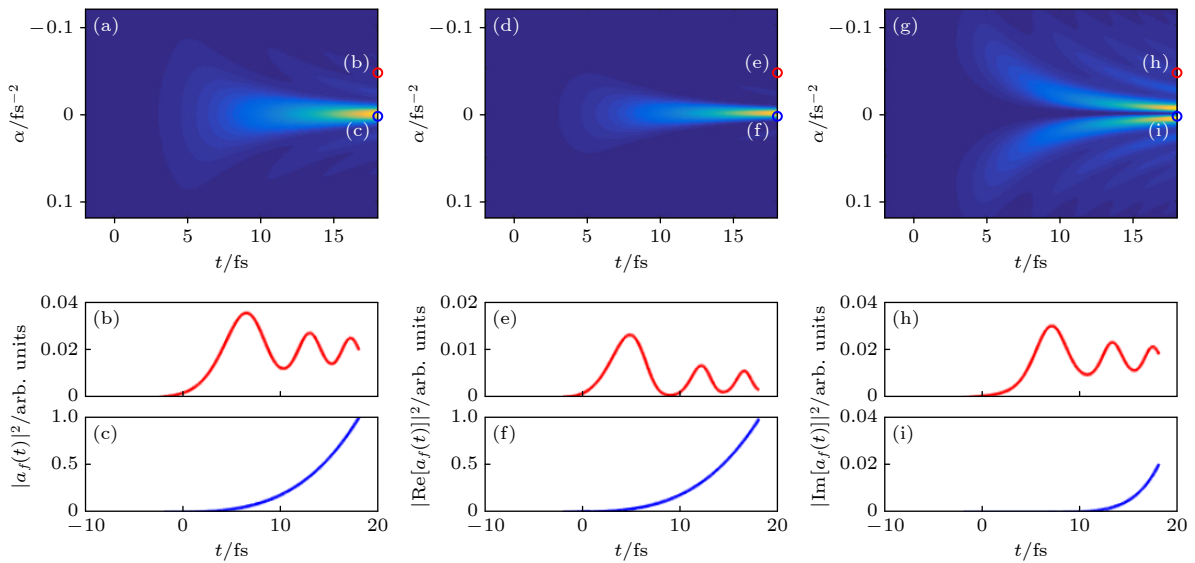


图 2 弱场激发时终态布居概率以及波函数实部和虚部随着时间和啁啾因子的变化 (a) 终态布居概率随着时间和啁啾因子的变化; (b), (c) 图 (a) 中两个不同啁啾因子值 (红色 $\alpha = -0.05 \text{ fs}^{-2}$ 和蓝色圆圈 $\alpha = 0$) 条件下终态布居概率随着时间的演化; (d) 终态波函数实部随着时间和啁啾因子的变化; (e), (f) 图 (d) 中两个不同啁啾因子值 (红色和蓝色圆圈) 条件下终态波函数实部随着时间的演化; (g) 终态波函数虚部随着时间和啁啾因子的变化; (h), (i) 图 (g) 中两个不同啁啾因子值 (红色和蓝色圆圈) 条件下终态波函数虚部随着时间的演化

Fig. 2. Evolution of the population probability of the final-state and the real-imaginary part of the wave-function with time and chirp factor under a weak field excitation: (a) The population probability of the final-state versus time and detuning; (b), (c) the population probability at two different chirp factors (red and blue circles) in panel (a); (d) the real part of the wave-function of the final-state versus time and the chirp factor; (e), (f) the real part of the wave-function at two different chirp factors (red and blue circles) in panel (d); (g) the imaginary part of the wave-function of the final-state versus time and the chirp factor; (h), (i) the imaginary part of the wave-function at two different chirp factors (red and blue circles) in panel (g).

3 个失谐量值对应的波函数实部随着时间的演化, 其变化规律与布居概率随着时间变化的规律近似相同. 而波函数虚部的分布则不同于波函数的实部以及布居概率的演化, 如图 3(e) 所示. 对于同样的 3 个失谐量值对应的波函数虚部随着时间的演化对于布居概率的贡献相对较小, 如图 3(f) 所示. 对于波函数虚部可以忽略不计的情况, 波函数实部即是整个波函数. 波函数实部大小就是跃迁概率. 换言之, 测量了跃迁概率就等于测量了波函数或波函数的实部. 总之, 由于线性啁啾引入的频率漂移使得布居概率及波函数实部和虚部随着时间演化关系不再具有对称性, 即正负失谐量对应的情况不一致.

3.2 强场驱动时的理论计算

随着光场强度的增强, $\delta_\omega^{(s)}$ 的值不能被忽略不计, 则需要用强场激发的非微扰理论来描述. 为了实现双光子吸收过程的有效布居转移, Trallero-Herrero 等 [22] 研究发现可以通过相位匹配相互作用, 即选择一个可以消除斯塔克移动引起的内部有效时间有关的失谐量. 如果控制光场的啁啾相位使

得 $\phi(t)$ 在光场演化范围内变化最小时, 可以实现最大布居转移.

更一般地, 方程 (1) 中优化终态布居概率的条件就是得到下式的最大值 [22]:

$$\int_{-\infty}^t \chi(t') \exp[i\phi(t')] dt', \quad (13)$$

式中, $\phi(t)$ 随着时间 t 迅速变化. 以 t/τ 为参量可以将 $\phi(t)$ 展开为 [19]

$$\phi(t) \simeq \sqrt{\pi} \delta_\omega^{(s)}(t) \tau [1 + (t/\tau) - (t/\tau)^3/3 + \dots] - \delta t + \alpha t^2. \quad (14)$$

光场在 $t = 0$ 附近最强, 因而这部分光场及相应的斯塔克相位是终态布居概率的主要贡献部分. 为了定性地描述斯塔克效应对终态布居概率的贡献, 我们考虑斯塔克相位的极大值, 即 $\delta_\omega^{(s)}(t) = \delta_\omega^{(s)}(0)$. $|t| < \tau$ 时, (14) 式的第 1 项近似为线性函数, t/τ 的三阶以上都可以忽略. 因此, (14) 式近似表示为

$$\phi(t) \approx \sqrt{\pi} \delta_\omega^{(s)}(0) \tau [1 + (t/\tau)] - \delta t + \alpha t^2. \quad (15)$$

将 (15) 式代入 (13) 式可得终态布居概率为

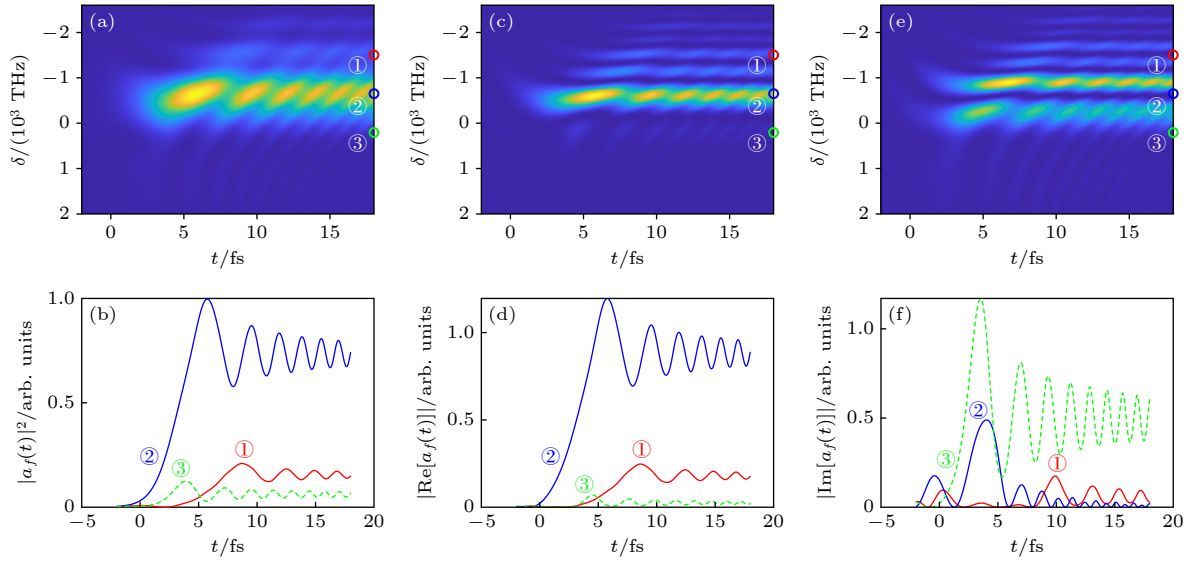


图 3 弱场作用下终态布居概率及波函数实部和虚部随着时间和失谐量的变化 (a) 终态布居概率随着时间和失谐量的变化; (b) 图 (a) 中 3 个不同失谐量值 (-1500 THz, -600 THz, 200 THz) 条件下终态布居概率随着时间的演化; (c) 终态波函数实部随着时间和失谐量的变化; (d) 图 (c) 中 3 个不同失谐量值 (-1500 THz, -600 THz, 200 THz) 条件下终态波函数实部随着时间的变化; (e) 终态波函数虚部随着时间和失谐量的变化; (f) 图 (e) 中 3 个不同失谐量值 (-1500 THz, -600 THz, 200 THz) 条件下终态波函数虚部随着时间的变化

Fig. 3. Evolution of the population probability and the real-imaginary part of the final-state with time and detuning under a weak field excitation: (a) The population probability of the final-state versus time and detuning; (b) the population probability of the final-state versus time at three different detunings (-1500 THz, -600 THz, 200 THz) in panel (a); (c) the real part of the wave-function of the final-state versus time and the detuning; (d) the real part of the wave-function of the final-state versus time at three different detunings (-1500 THz, -600 THz, 200 THz) in panel (c); (e) the imaginary part of the wave-function of the final-state versus time and the detuning; (f) the imaginary part of the wave-function of the final-state versus time at three different detunings (-1500 THz, -600 THz, 200 THz) in panel (e).

$$p_f(t) \propto \eta \left| \int_{-\infty}^t \chi(t') \exp\{i[\sqrt{\pi}\delta_{\omega}^{(s)}(0) - \delta + \alpha t']t'\} dt' \right|^2, \quad (16)$$

其中 η 与光场强度有关. 与 (7) 式类似, (16) 式也可以用菲涅耳积分表示, 其图线如图 4 所示, 可见经过一段初始上升振荡的暂态过程, 终态布居概率最终稳定. 强场激发的终态布居概率与弱场情况的区别之处不仅在于布居概率的提升, 而且在于斯塔克相位对于失谐量的调制, 即 $\sqrt{\pi}\delta_{\omega}^{(s)}(0)$ 的贡献.

为了进一步验证我们的理论计算结果, 采用四阶龙格库塔法对 (1) 式进行数值模拟. 假定基态和终态的概率振幅分别表示为 $a_g(t)$, $a_f(t)$, 则基态和终态的布居概率 $|a_g(t)|^2$ 和 $|a_f(t)|^2$ 如图 5 所示. 图 5 中终态布居概率随时间的演化规律类似于光场的

菲涅耳直边衍射, 如图中橙色曲线所示. 这与我们用近似的理论计算得到的结果 (图 4) 基本一致.

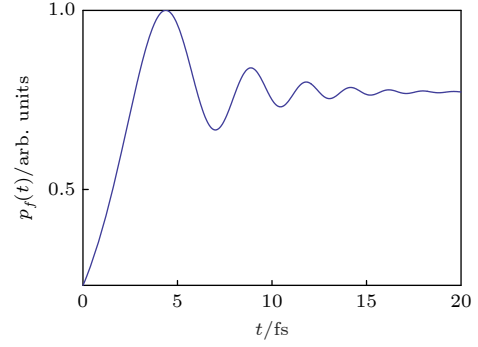


图 4 基于 (16) 式, 斯塔克效应下双光子跃迁终态布居率随着时间的演化

Fig. 4. Temporal evolution of final-state population in two-photon transition under Stark effect based on Eq. (16).

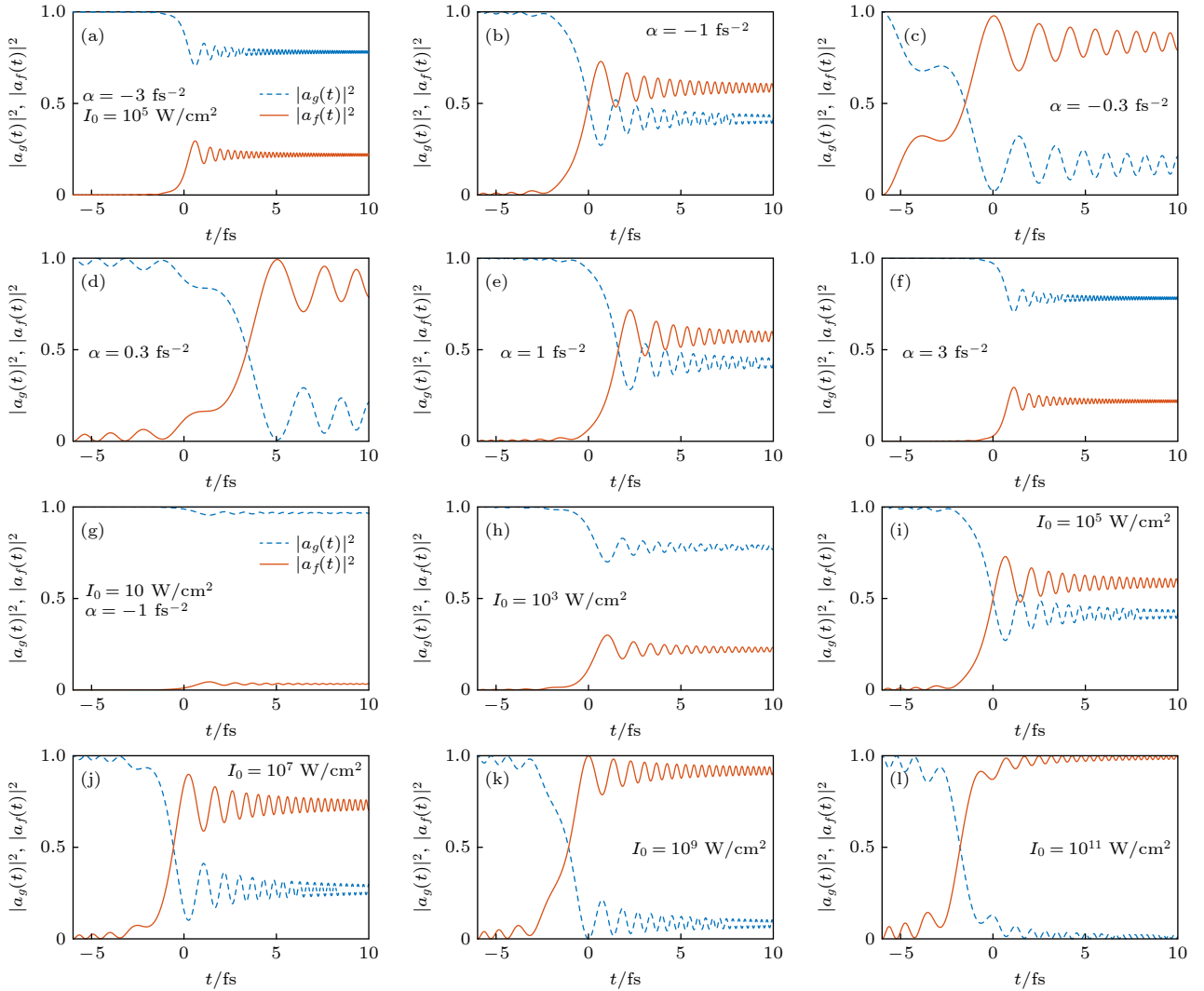


图 5 强场作用下基态与终态布居概率随着时间的变化 (a)–(f) 分别对应不同啁啾因子情况; (g)–(l) 分别对应不同光强情况

Fig. 5. Evolution of the population probability of the ground-state and final-state with time under a strong field excitation: (a)–(f) Under different chirp factor; (g)–(l) under different intensity of laser field.

由图 5 第 1 列得出, 时域啁啾因子的绝对值越大, 则原子-光场相位变化越快, 布居转移效率越差, 如图 5(a), (f) 所示. 反之, 时域啁啾因子绝对值越小, 原子-光场相位在光场演化范围变化越小, 即可以实现光场与原子的相位匹配, 布居转移效率越高 (如图 5(c), (d) 所示). 另外, 时域啁啾因子的绝对值大小还决定着布居概率在时域振荡的频率大小. 不仅如此, 啁啾因子也决定了布居概率最大值的时间位置. 例如, 图 5(b), (e) 中终态布居概率最大值分别在 0.67 fs 和 2.24 fs, 而图 5(c), (d) 中终态布居概率最大值则分别在 0 fs 和 5 fs 处. 对比图 4 解析计算结果与图 5(d) 数值计算结果发现, 二者在 $t > 3$ fs 后极大值点的时间位置和变化趋势基本一致, 这进一步验证了本文解析解的可靠性. 图 5 第 2 列描述的是在时域啁啾因子给定的情况下布居概率与激发光场强度的关系. 在啁啾因子 $\alpha = -1 \text{ fs}^{-2}$ 时, 光场强度决定了布居转移效率. 也就是说, 光场越弱, 布居转移效率越低, 如图 5(g) 所示. 光场越强, 布居转移效率越高, 如图 5(l) 所示. 由于斯塔克移动引起的失谐量大小是与光场强度有关的量, 因此, 不同光场强度激发时, 终态布居概率最大值的时间位置也会不同. 但由于啁啾因子

决定了布居概率振荡的频率, 因此, 不同光场强度不会改变布居概率振荡的频率, 但能决定布居转移效率.

图 6 描述的是强场作用下通过求解方程 (1) 得到的终态布居概率随着时间和失谐量的演化过程. 图 6(a)—(c) 描述的是正啁啾因子增大时布居概率时频空间的分布规律, 而图 6(d)—(f) 描述的是负啁啾因子的情况. 从图 6 可以看出, 在啁啾因子绝对值较小时, 布居概率分布不均匀. 随着啁啾因子绝对值的增大, 正负啁啾因子对于布居概率时频分布的调制影响差异变大. 相比弱场激发的情况, 强场激发时布居概率时频分布变得更加复杂. 这是由斯塔克移动引起的能级分裂造成的, 见方程 (3)—(5). 因为这时的失谐量除了常失谐量以外, 还随着光场强度的变化而发生变化. 而且, 对于啁啾因子绝对值较大的情况下, 在同一时刻, 布居概率随着失谐量的演化将呈现出类似于“双缝干涉”的现象. 干涉条纹明暗取决于总的相干相位因子的大小, 这是因为总相位因子决定着干涉的性质, 即干涉相消或干涉相长. 总之, 强场作用下, 布居概率随着时间的演化受到各相位因子的综合影响呈现出复杂的变化规律.

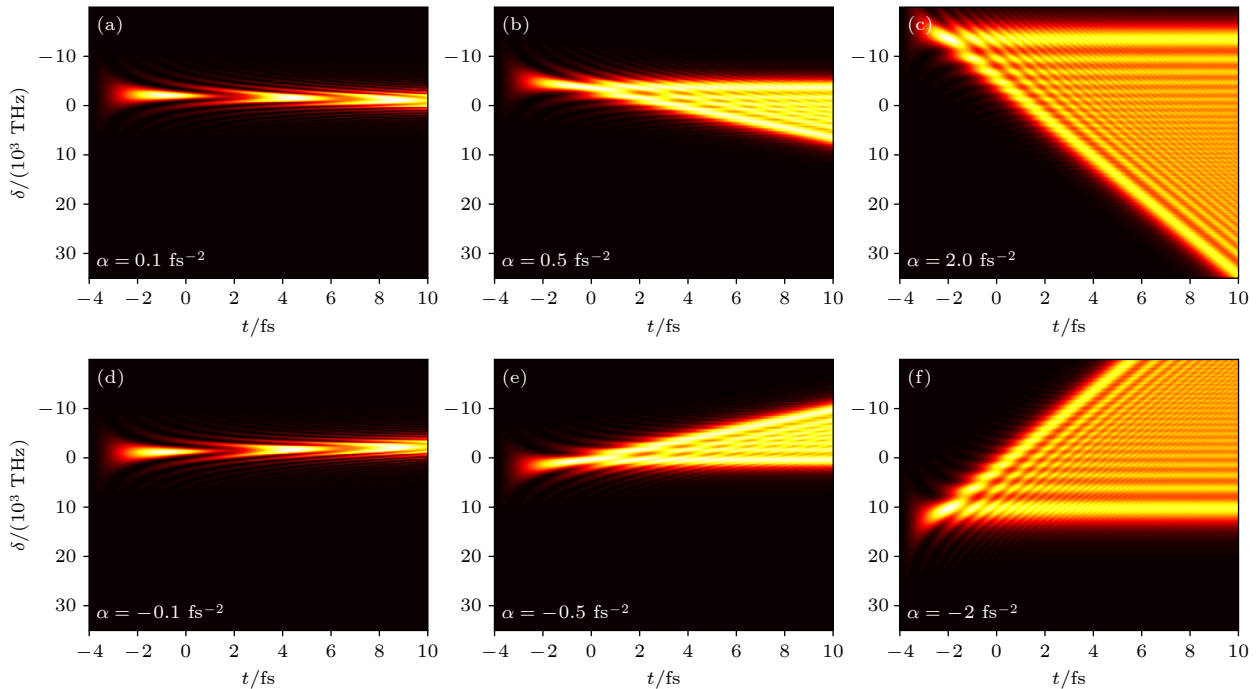


图 6 强场作用下终态布居概率随着时间和失谐量的变化 (a)—(c) 正啁啾因子情况; (d)—(f) 负啁啾因子情况

Fig. 6. Evolution of the population probability of the final-state with time and detuning under a strong field excitation: (a)–(c) With positive chirp factors; (d)–(f) with negative chirp factors.

4 结果与讨论

超短激光脉冲驱动下多能级原子系统跃迁瞬态过程会有许多有趣的现象, 诸如斯塔克移动引起的能级分裂、布居完全转移, 以及类似于经典物理中的“菲涅耳直边衍射”、“双缝干涉”等. 为了实现预期的效果, 研究者们通过对超短脉冲进行整形以控制入射激光相位和振幅, 从而实现对预期终态波函数或布居概率的有效操控. 关于这些问题的研究, 微扰理论是研究弱场激发情况下的有效方法. 对于强场激发的情况, 理论计算遇到了挑战, 通常借助于数值模拟. 总之, 微扰理论与数值模拟结合起来可以有效地描述超短脉冲驱动下多能级原子系统中跃迁过程的瞬态效应.

本文采用飞秒啁啾脉冲激发二能级原子系统, 采用微扰理论和数值计算相结合的方法, 研究了双光子跃迁的时域瞬态效应. 在弱场激发的情况下, 啁啾频率漂移引起的相位变化使得终态布居概率随着时间的演化展现出类似于“菲涅耳直边衍射”的效应. 当啁啾因子等于零时, 振荡效应消失. 二阶微扰理论很好地描述了弱场激发下双光子跃迁的瞬态过程, 与数值模拟吻合得很好. 在失谐量为定值的时候, 终态布居概率及波函数的时频分布展现出完美对称性.

强场作用下, 斯塔克效应引起的能级分裂使得终态波函数和布居概率的时频对称性分布遭到了破坏. 这时的微扰理论很难描述双光子跃迁的瞬态效应. 通过大量数值模拟, 本文分析了同一光强条件下不同啁啾因子对布居转移效率、布居转移时间位置、布居概率时域振荡频率及幅度的影响, 并且分析了同一啁啾因子条件下不同光强对布居概率时域演化过程、布居概率转移效率的影响. 正负啁啾因子对布居概率时频分布产生了重要影响. 终态布居概率在瞬时呈现类似于“双缝干涉”现象.

5 结论

综上, 采用二阶微扰理论和数值模拟相结合的方法, 系统研究了斯塔克效应与啁啾相位影响下二能级原子系统中双光子跃迁瞬态过程, 弱场激发条件下终态布居概率随着时间的演化显示出类似于“菲涅耳直边衍射”的效应, 强场激发条件下布居概率时域演化仍然类似于菲涅耳直边衍射, 频域的变

化规律则展示出“双缝干涉”的效应. 斯塔克效应对布居概率转移影响主要体现在对光与二能级系统匹配相位的改变或调制. 斯塔克效应引起的能级分裂破坏了终态布居概率时频对称性, 研究结果为双光子荧光成像研究提供参考, 为强场作用下双光子跃迁瞬态描述提供新思路.

数据可用性声明

本篇论文的关联数据可在科学数据银行 <https://doi.org/10.57760/sciencedb.29251> 中访问获取.

参考文献

- [1] Boutabba N, Eleuch H 2020 *Results Phys.* **19** 103421
- [2] Shapiro M, Brumer P 2003 *Principles of the Quantum Control of Molecular Processes* (New York: Wiley Press)
- [3] Warren W S, Rabitz H, Mahle D 1993 *Science* **259** 1581
- [4] Li Y G, Ren L Q, Ma R Q, Qiu X, Liu J, Fan R, Fu Z X 2009 *Sci. China G* **39** 600 (in Chinese) [李永放, 任立庆, 马瑞琼, 仇旭, 刘娟, 樊荣, 付振兴 2009 *中国科学 G* **39** 600]
- [5] Li Y F, Ren L Q, Ma R Q, Fan R, Liu J 2010 *Acta phys. Sin.* **59** 1671 (in Chinese) [李永放, 任立庆, 马瑞琼, 樊荣, 刘娟 2010 *物理学报* **59** 1671]
- [6] Ren L Q, Li Y F, Zhang M H, Xu K, Wumai A 2011 *Sci. Sin. Phys. Mech. Astron.* **41** 756 (in Chinese) [任立庆, 李永放, 张敏华, 许康, 阿布力米提·吾买 2011 *中国科学: 物理学 力学 天文学* **41** 756]
- [7] Goswami D 2003 *Phys. Rep.* **374** 385
- [8] Rabitz H, Vivie-Riedle R D, Motzkus M, Kompa K 2000 *Science* **288** 824
- [9] Assion A, Baumert T, Bergt M, Brixner T, Kiefer B, Seyfried V, Strehle M, Gerber G 1998 *Science* **282** 919
- [10] Clow S D, Trallero-Herrero C, Bergeman T, Weinacht T 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 233603
- [11] Silberberg Y 2009 *Annu. Rev. Phys. Chem.* **60** 277
- [12] Lim J, Lee H, Kim J, Lee S, Ahn J 2011 *Phys. Rev. A* **83** 053429
- [13] Allgaier M, Ansari V, Donohue J M, et al. 2020 *Phys. Rev. A* **101** 043819
- [14] Ding X, Heberle D, Harrington K, Flemens N, Chang W, Birks T A, Moses J 2020 *Phys. Rev. Lett.* **124** 153902
- [15] Li Y, Seddighi F, Porat G 2024 *Phys. Rev. Appl.* **22** 014026
- [16] Dutt A, Mohanty A, Gaeta A L, Lipson M 2024 *Nat. Rev. Mater.* **9** 321
- [17] Meshulach D, Silberberg Y 1998 *Nature* **396** 239
- [18] Dudovich N 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 083002
- [19] Lee S, Lim J, Park C Y, Ahn J 2009 *Opt. Express* **17** 7648
- [20] Chatel B, Degert J, Girard B 2004 *Phys. Rev. A* **70** 053414
- [21] Tagliamonti V, Kaufman B, Zhao A, Rozgonyi T, Marquetand P, Weinacht T 2017 *Phys. Rev. A* **96** 021401
- [22] Trallero-Herrero C, Cardza D, Cohen J, Weinacht T 2005 *Phys. Rev. A* **71** 013423
- [23] Trallero-Herrero C, Spanner M, Weinacht T 2006 *Phys. Rev. A* **74** 051403
- [24] Trallero-Herrero C, Cohen J, Weinacht T C 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 063603
- [25] Gandman A, Chuntanov L, Rybak L, Amitay Z 2007 *Phys. Rev. A* **75** 031401

Transient two-photon transitions excited by chirped pulse^{*}

REN Liqing[†] YANG Yida WEI Yingchun

(School of Energy Engineering, Yulin University, Yulin 719000, China)

(Received 5 July 2025; revised manuscript received 20 July 2025)

Abstract

In general cases of strong field excitation, the Stark effect has a significant influence on transient two-photon transitions, and the analytic description of this process is quite challenging. By combining analytical solutions and numerical simulations, the transient two-photon transition processes excited by weak and strong chirped pulses are systematically investigated, showing the important influences of parameters such as light field intensity, chirp factor, and detuning on the time-domain evolution of two-photon transition probabilities. Firstly, an approximate analytical expression is derived for the amplitude of the time-domain two-photon transition probability by using the second-order perturbation theory. This analytical solution indicates that the transient two-photon transition process under weak field excitation is similar to the Fresnel rectangular edge diffraction effect. As the light field intensity increases, the influence of the Stark effect on two-photon transitions also intensifies. Secondly, through a series of approximations, the approximate analytical solutions of the Schrödinger equation under strong field interactions are obtained. The analytical solutions show that the strong field Stark effect induces energy level to split, which disrupts the symmetry of the time-domain two-photon transition probability distribution, and its frequency domain process is similar to the “double-slit interference” effect. The research results indicate that the efficiency of population transfer during strong field excitation is closely related to the light field intensity, while the chirp factor can not only regulate the efficiency and time position of population transfer but also change the oscillation frequency of the population probability in the time domain. This work offers new insights into describing the time-domain evolution of the population probability under strong field excitation and lays a scientific basis for research on two-photon microscopy imaging.

Keywords: two-photon transition, transient process, perturbation theory, chirp factor

PACS: 42.65.-k, 42.50.Ct, 42.50.Hz, 42.65.Re

DOI: [10.7498/aps.74.20250879](https://doi.org/10.7498/aps.74.20250879)

CSTR: [32037.14.aps.74.20250879](https://cstr.cn/32037.14.aps.74.20250879)

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 12464047, 12064046), the Science and Technology Resource Sharing Platform Program of Shaanxi Province, China (Grant No. 2023-CX-PT-16), the “Three Reforms-Acting as Evaluation” Program of Shaanxi Province, China (Grant No. 2024-ZC-YYDP-63), the Young and Middle aged Science and Technology Leading Talent Program of Yulin, China (Grant No. 2024-KJZG-ZQNLJ-005), and the Science and Technology Bureau Industry University Research Program of Yulin, China (Grant No. 2024-CXY-068).

[†] Corresponding author. E-mail: liqing_ren@yulinu.edu.cn