

飞秒激光与原子多光子相互作用过程中的光力学性质研究*

谢沅昊¹⁾ 袁瑞¹⁾ 王翦²⁾ 袁烁²⁾ 张曼¹⁾ 李腾飞²⁾ 常亚杰¹⁾ 王健³⁾ 刘

纪彩^{1)4)†}

1) (华北电力大学数理学院, 北京 102206)

2) (华北电力大学核科学与工程学院, 北京 102206)

3) (华北电力大学电气与电子工程学院, 北京 102206)

4) (河北省物理学与能源技术重点实验室, 保定 071000)

摘要

本文基于光学布洛赫方程理论, 研究了飞秒激光场与原子多光子相互作用的光力学行为, 系统分析了光力的演化特性及其调控机制. 研究发现, 横向光力和纵向光力均以两倍的光场载波频率快速振荡, 但冲量积累方式不同. 在较低光强范围内, 横向冲量随激光脉冲作用时间或电场强度的增加持续累积, 表现为指向光轴的聚焦作用或者远离光轴的散焦作用; 纵向冲量则呈周期性振荡趋势, 并与能级粒子数布居的演化相一致. 在强场条件下, 横向冲量积累不再保持单调变化, 而是同纵向冲量类似, 出现与能级粒子数布居变化相关的复杂起伏和振荡. 对初始处于基态的原子, 所受纵向冲量始终为正; 横向冲量则随多光子相互作用条件的不同, 表现出不同的方向和幅值. 载波频率失谐可进一步调控横向冲量大小和方向, 使横向作用在聚焦与散焦之间转换. 通过对载波频率与光场强度的调控, 可实现光力大小和方向的有效调控, 为飞秒激光在量子调控、冷原子物理及超快精密操控等领域的应用提供理论指导和参数设计参考.

关键词: 原子光学; 光学偶极力; 多光子相互作用; 级联三能级原子体系

PACS: 37.10.Vz, 32.80.Qk, 42.65.Re, 42.50.Hz

1 引言

光镊是一种基于强聚焦激光束对微纳粒子进行非接触、低损伤操控的光学技

* 基金: 国家自然科学基金(批准号: 12541505, 12211530044), 中央高校基本科研业务费专项资金(批准号: 2026JC012)资助的课题.

† 通信作者.E-mail: jicailiu@ncepu.edu.cn

术^[1]. 传统光源因光强较弱, 其作用于物质所产生的力学效应通常可忽略不计. 随着激光器的问世, 高能量激光光束得以产生, 其与微粒之间的相互作用变得显著, 加之激光良好的方向性, 使得利用光束对微粒进行精确操控成为可能. 自 1970 年 Ashkin 首次利用辐射压力实现微粒的空间固定^[2], 并于 1986 年成功利用单束激光完成对电介质微粒的三维捕获以来^[3], 光镊技术凭借其非接触、低损伤、高精度及快速响应等特点, 已发展成为物理学^[4-9]、生物学^[10-14]、化学及材料科学^[15-17]等多个交叉领域的关键研究工具. 近年来, 超短脉冲激光技术尤其是飞秒激光的发展^[18-21], 进一步推动了光操控技术的进步. 飞秒激光具有极短的脉冲宽度与极高的峰值功率, 可在飞秒时间尺度上与物质相互作用, 显著提升了操控的时间分辨率与动态调控能力, 为微纳粒子的超快操控开辟了新的技术路径.

光场对原子的操控源于原子与光场相互作用所产生的光力^[22-28]. 在空间不均匀光场中, 原子因偶极相互作用会受到源于光场梯度的光学偶极力; 光场与原子通过光子进行动量交换则会产生纵向散射的辐射压力. Kumar 等^[24]研究了中性两能级原子在飞秒脉冲激光场中的光学偶极力行为, 发现纵向光力的平均值与拉比频率有关; Liu 等^[25,26]进一步研究发现在飞秒激光的单光子共振作用下, 施加在原子上的横向梯度力和纵向辐射压力的动量积累均随着拉比频率的增加呈现振荡分布特性; 采用高阶拉盖尔—高斯光束还可以将粒子束缚在更窄的光学势场内, 更有利于对粒子的俘获和精准操控. Singh 等^[27]提出了一种基于 kHz 放大飞秒激光的单束光微粒约束方法, 其结果表明, 在强瞬时梯度力与散射力的共同作用下, 粒子可在焦点附近形成持续往返振荡的动态约束状态. Yadav 等^[28]研究发现金属-介质核壳结构中的 Fano 共振可显著影响颗粒的光学力分布及束缚行为, 并有助于提升纳米颗粒的捕获效率与稳定性.

强激光脉冲与物质相互作用会诱发多种非线性光学效应, 如自聚焦^[29,30]、光

学克尔效应^[31,32]、双光子吸收 (Two-Photon Absorption, TPA) ^[33-36]等效应。在中高功率飞秒激光激发下, 这些非线性效应有望显著增强光力幅值, 甚至诱导出非对称势阱、光力双稳态或粒子间非线性耦合等新的物理行为^[37-41]。例如, Zhu 等^[40]研究发现金纳米颗粒在反饱和吸收过程中会出现光力方向反转, 形成复合捕获态。Zhang 等^[41]利用双光子光力系统实现了对微液滴长达 40 cm 的超长程光学牵引, 表明通过光子动量调控可实现粒子的远程操控。

多光子过程是指量子系统通过同时吸收或发射多个光子, 实现能级跃迁的非线性光学过程。这类过程通常具有极高的光强依赖性, 能突破传统光学衍射极限, 实现深层穿透和低损伤, 因此在激光操控^[42]、生物医学成像^[43]、微纳加工^[44,45]、量子信息科学^[46]等领域具有重要的应用价值。以 TPA 为例, 作为一种典型的三阶非线性光学过程, 其跃迁概率与光强的平方成正比, 表现出显著的非线性光学响应。凭借穿透深度大、空间分辨率高、热损伤小等优势, TPA 过程在生物组织内部操控、深层成像及精准治疗等领域展现出广阔应用前景^[47-49]。然而, 受限于激发效率较低、非线性响应复杂等因素, 多光子过程在光力学操控方面的能力和特性还有待进一步探索。

本文基于光学布洛赫方程理论框架, 对飞秒激光场与原子多光子相互作用过程中的光力学行为进行研究。采用级联三能级原子模型, 通过数值求解非旋波近似下的光学布洛赫方程, 计算不同电场强度及失谐量条件下飞秒激光场对原子的横向梯度光力和纵向辐射压力作用, 并分析光力的时域演化规律及其与各能级粒子数布居演化之间的关联特性, 从而为多光子光力操控提供理论依据。

2 基本原理

2.1 密度矩阵理论

在半经典理论框架下研究光场与原子、分子等微观粒子相互作用时, 通常采

用经典电磁场理论描述光场，用量子力学描述微观粒子的动力学过程。具体而言，采用密度矩阵理论来处理原子体系，并将激光场视为经典麦克斯韦电磁场。在电偶极相互作用和非旋波近似下，级联三能级原子体系与激光场的相互作用的哈密顿量可表示为：

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + V(\mathbf{r}, t), \quad (1)$$

式中 $\hat{H}_0$ 是原子的自由哈密顿量， $V(\mathbf{r}, t) = -\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ 为原子与激光场的电偶极相互作用哈密顿量， $\boldsymbol{\mu}$ 为原子偶极矩算符， $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ 是在原子位置处激光场的电场强度。设光场沿 z 方向传播， r 是到光轴的距离， t 为时间，高斯型激光脉冲的表达式为：

$$E(r, z, t) = E_0 f(r, t) \cos[\omega(t - t_0) - kz], \quad (2)$$

式中 E_0 为光束的峰值电场振幅； $f(r, t)$ 是脉冲的包络函数，对具有高斯型时空分布的激光场 $f(r, t) = \exp\left(-\frac{r^2}{\omega_0^2} - 2 \ln 2 \frac{(t - t_0)^2}{\tau_p^2}\right)$ ， $r = \sqrt{x^2 + y^2}$ 是与光轴间的横向距离； ω_0 为高斯光束的束腰半径； t_0 为脉冲峰值时刻； τ_p 为光场时间包络的半高全宽； ω 为激光场的载波频率。

根据密度矩阵理论，将级联三能级原子体系各密度矩阵元的实部和虚部分开，并且定义布洛赫变量列向量：

$$\mathbf{X} = (u_0, v_0, u_1, v_1, u_2, v_2, \rho_{00}, \rho_{11}, \rho_{22})^T \quad (3)$$

则光学布洛赫方程可写成矩阵形式^[36]：

$$\frac{d\mathbf{X}}{dt} = \mathbf{M}(r, z, t) \mathbf{X} \quad (4)$$

其中 $\mathbf{M}(r, z, t)$ 为由外场 $E(r, z, t)$ 、跃迁频率 ω_{mn} 、跃迁偶极矩 μ_{mn} 及衰减速率 γ_{mn} 决定的系数矩阵，具体如下：

$$\begin{pmatrix}
-\gamma_{01} & -\omega_{10} & 0 & 0 & 0 & \frac{E\mu_{12}}{\hbar} & 0 & 0 & 0 \\
\omega_{10} & -\gamma_{01} & 0 & 0 & -\frac{E\mu_{12}}{\hbar} & 0 & -\frac{2E\mu_{01}}{\hbar} & \frac{2E\mu_{01}}{\hbar} & 0 \\
0 & 0 & -\gamma_{12} & -\omega_{21} & 0 & -\frac{E\mu_{01}}{\hbar} & 0 & 0 & 0 \\
0 & 0 & \omega_{21} & -\gamma_{12} & \frac{E\mu_{01}}{\hbar} & 0 & 0 & -\frac{2E\mu_{12}}{\hbar} & \frac{2E\mu_{12}}{\hbar} \\
0 & \frac{E\mu_{12}}{\hbar} & 0 & -\frac{E\mu_{01}}{\hbar} & -\gamma_{02} & -\omega_{20} & 0 & 0 & 0 \\
-\frac{E\mu_{12}}{\hbar} & 0 & \frac{E\mu_{01}}{\hbar} & 0 & \omega_{20} & -\gamma_{02} & 0 & 0 & 0 \\
0 & \frac{E\mu_{01}}{\hbar} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \gamma_{11} & 0 \\
0 & -\frac{E\mu_{01}}{\hbar} & 0 & \frac{E\mu_{12}}{\hbar} & 0 & 0 & 0 & -\gamma_{11} & \gamma_{22} \\
0 & 0 & 0 & -\frac{E\mu_{12}}{\hbar} & 0 & 0 & 0 & 0 & -\gamma_{22}
\end{pmatrix}
\tag{5}$$

式中 ρ_{00} 、 ρ_{11} 、 ρ_{22} 分别为密度矩阵的对角元，对应着 0、1、2 能级上的粒子数布居； $u_0(v_0)$ 、 $u_1(v_1)$ 、 $u_2(v_2)$ 分别为能级 0 和 1、1 和 2、0 和 2 之间的密度矩阵非对角元的实部（虚部）； γ_{mn} 是相应密度矩阵元的衰减速率； ω_{mn} 为相应能级之间的共振跃迁频率； μ_{mn} 为相应能级之间的跃迁电偶极矩。需要指出的是，虽然 $|0\rangle \leftrightarrow |2\rangle$ 之间不存在直接的电偶极耦合，即 $\mu_{02} = \mu_{20} = 0$ ，但 $|0\rangle$ 与 $|2\rangle$ 之间的相干性仍包含在光学布洛赫方程中。由于光学布洛赫方程各个矩阵元之间是相互耦合的，该方程本身涵盖了多光子过程在内的所有基于电偶极相互作用的高阶非线性效应。

由密度矩阵可以得到级联三能级原子体系的电偶极矩平均值：

$$\langle \mu \rangle = u_0 \mu_{10} + u_1 \mu_{21} .
\tag{6}$$

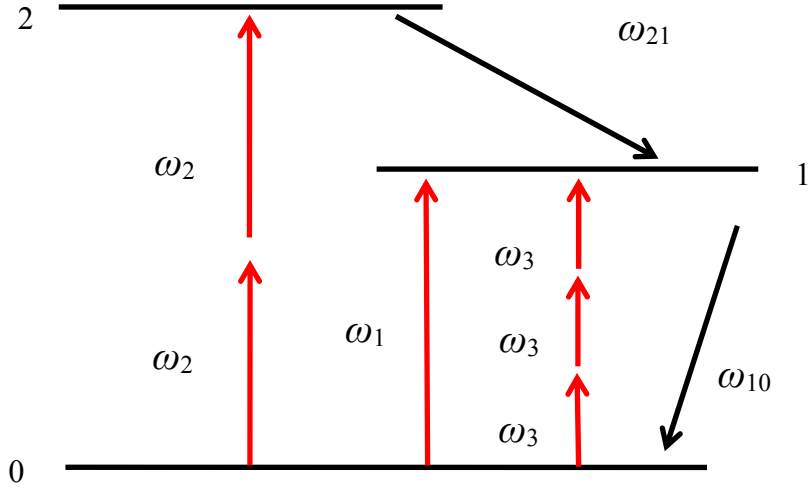


图1 （网刊彩色）级联三能级体系中多光子跃迁示意图

Fig. 1. Scheme of n-photon transitions in the cascade three-level system.

2.2 脉冲面积

在单光子共振条件下，距离光轴 r 处的脉冲单光子面积 $\theta_1(r, t)$ 定义为：

$$\theta_1(r, t) = \frac{\mu_{nm}}{\hbar} \int_{-\infty}^t f(r, t) dt', \quad (7)$$

对高斯脉冲（2），在整个脉冲持续时间内积分得到

$$\theta_1(r, t \rightarrow \infty) = \sqrt{\frac{\pi}{2 \ln 2}} \exp\left(-\frac{r^2}{w_0^2}\right) \frac{\mu_{nm} E_0}{\hbar} \tau_p.$$

对级联三能级原子，在近双光子共振条件下，距离光轴 r 处的脉冲双光子面积 $\theta_2(r, t)$ 定义为^[34,35]：

$$\theta_2(r, t) = 2\sqrt{1 + \kappa_-^2} \int_{-\infty}^t |\Delta_{20}(r, t_1)| dt', \quad (8)$$

其中，

$$\Delta_i(r, t) = \frac{1}{2} \frac{|G_{1i}|^2 \omega_{1i}}{\omega^2 - \omega_{1i}^2}, \quad i = 0, 2,$$

$$\Delta_{02}(r, t) = \frac{G_{01} G_{12}}{4(\omega - \omega_{10})},$$

$$\kappa_- = \frac{\Delta_2(r, t) - \Delta_0(r, t)}{2|\Delta_{02}(r, t)|},$$

$$G_{mn}(r, t) = \frac{f(r, t)\mu_{mn}}{\hbar}, \quad (9)$$

式中 $G_{mn}(r, t)$ 是 m 、 n 能级之间的拉比频率. 对高斯脉冲 (2), 在整个脉冲持续

$$\text{时间内积分得到 } \theta_2(r, t \rightarrow \infty) = \frac{1}{4|\omega - \omega_{10}|} \sqrt{\frac{\pi}{\ln 2} (1 + \kappa_-^2)} \exp\left(\frac{-2r^2}{\varpi_0^2}\right) \tau_p \frac{\mu_{21}\mu_{10}E_0^2}{\hbar^2}.$$

2.3 光学势和光学偶极力

假设原子电偶极矩和电场极化方向相同, 可得到原子受到的光学势作用为:

$$\begin{aligned} U(r, z, t) &= -\langle \boldsymbol{\mu} \rangle \cdot \mathbf{E}(r, z, t) \\ &= -(u_0\mu_{10} + u_1\mu_{21})E_0 \exp\left(-\frac{r^2}{\varpi_0^2} - 2\ln 2 \frac{(t-t_0)^2}{\tau_p}\right) \cos[\omega(t-t_0) - kz]. \end{aligned} \quad (10)$$

原子在激光场中受到的平均光学偶极力可表示为:

$$\mathbf{F}(r, t) = -\nabla U(r, t) = \langle \nabla [\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E}(r, t)] \rangle. \quad (11)$$

将激光场 (2) 和电偶极矩平均值 (6) 代入 (11) 得到三能级原子光学偶极力的

横向分量 $F_r(r, t)$ 和纵向分量 $F_z(r, t)$ 分别为:

$$\begin{aligned} F_r(r, z, t) &= (u_0\mu_{10} + u_1\mu_{21})E_0 \\ &\quad \times \exp\left(-\frac{r^2}{\varpi_0^2} - 2\ln 2 \frac{(t-t_0)^2}{\tau_p}\right) \cos[\omega(t-t_0) - kz] \left(-\frac{2r}{\varpi_0^2}\right), \\ F_z(r, z, t) &= (u_0\mu_{10} + u_1\mu_{21})E_0 \\ &\quad \times \exp\left(-\frac{r^2}{\varpi_0^2} - 2\ln 2 \frac{(t-t_0)^2}{\tau_p}\right) \sin[\omega(t-t_0) - kz] k, \end{aligned} \quad (12)$$

式中 $F_r(r, z, t)$ 为光力沿垂直于光场传播方向的横向分量, 由电场振幅梯度决定;

$F_z(r, z, t)$ 为沿脉冲传播方向的纵向分量, 由电场相位梯度决定; 波矢 $k = \frac{\omega}{c}$, c 为

光速. 将光力分量分别对时间积分, 可以得到脉冲时间内原子横向和纵向偶极力产生的冲量:

$$\begin{aligned} I_r(r, z, t) &= \int_0^t F_r(r, z, t') dt', \\ I_z(r, z, t) &= \int_0^t F_z(r, z, t') dt'. \end{aligned} \quad (13)$$

3 计算结果与讨论

本文采用四阶龙格—库塔算法对非旋波近似下的光学布洛赫方程(3)-(5)进行数值求解，在求解过程中空间坐标作为外场 $E(r, z, t)$ 参数代入系数矩阵。对于三能级原子体系，参照钠原子3S、3P和4S能级结构^[50-51]，由于钠原子3P精细结构能级间隔远小于飞秒激光脉冲能谱展宽，因此为突出主要物理机制并保持模型简洁，忽略其精细结构影响。具体物理参数设定如下： $|0\rangle \rightarrow |1\rangle$ 共振跃迁频率 $\omega_{10} = 3.19 \text{ rad/fs}$ ， $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$ 共振跃迁频率 $\omega_{21} = 1.65 \text{ rad/fs}$ ，跃迁电偶极矩为 $\mu_{10} = \mu_{21} = 1.85 \times 10^{-29} \text{ C} \cdot \text{m}$ ^[24,50,51]。初始时刻所有原子都处于基态，即 $\rho_{00} = 1$ ， $\rho_{11} = 0$ ， $\rho_{22} = 0$ 。原子激发态衰减速率 $\gamma_{11} = 10^9 \text{ s}^{-1}$ 、 $\gamma_{22} = 10^{12} \text{ s}^{-1}$ ，非对角元的弛豫速率 $\gamma_{mn} = 10^{13} \text{ s}^{-1}$ 。高斯光束的束腰半径 $\omega_0 = 1 \mu\text{m}$ ；脉冲峰值时刻 $t_0 = 50 \text{ fs}$ ；脉冲宽度 $\tau_p = 23.5 \text{ fs}$ 。不同共振条件对应的激光载波振荡频率：单光子共振 $\omega = \omega_1 = \omega_{10} = 3.19 \text{ rad/fs}$ ；双光子共振 $\omega = \omega_2 = (\omega_{21} + \omega_{10}) / 2 = 2.42 \text{ rad/fs}$ ；三光子共振 $\omega = \omega_3 = \omega_{10} / 3 = 1.063 \text{ rad/fs}$ 。下面对束腰平面内 $z=0$ ，距离光轴 $r = 0.7 \mu\text{m}$ 处的光力、冲量及各能级粒子数布居的时间演化进行详细分析。

3.1 多光子共振条件下的光力、冲量与粒子数布居

为了比较不同多光子共振通道对原子内部动力学及外部光力响应的影响，图2给出了相同光场强度条件下，单光子 $\omega = \omega_1$ 、双光子 $\omega = \omega_2$ 和三光子 $\omega = \omega_3$ 共振时，原子所受光力、光冲量及各能级粒子数布居的时间演化规律。

图2(a1)-(c1)显示，不同共振条件下，瞬时横向光力 F_r 均以两倍的载波频率振荡；单光子共振条件下，横向光力 F_r 在脉冲作用区间内围绕零值快速振荡，但其正向贡献占优，使横向冲量 I_r 最终累积为正值。在双光子和三光子共振条件下，负向光力贡献更为明显，横向冲量随时间持续向负值累积。由此可见，不同多光子共振条件不仅改变横向光力的瞬时振荡特征，更直接决定横向冲量的累积方向，从而使原子横向运动表现为散焦或聚焦。

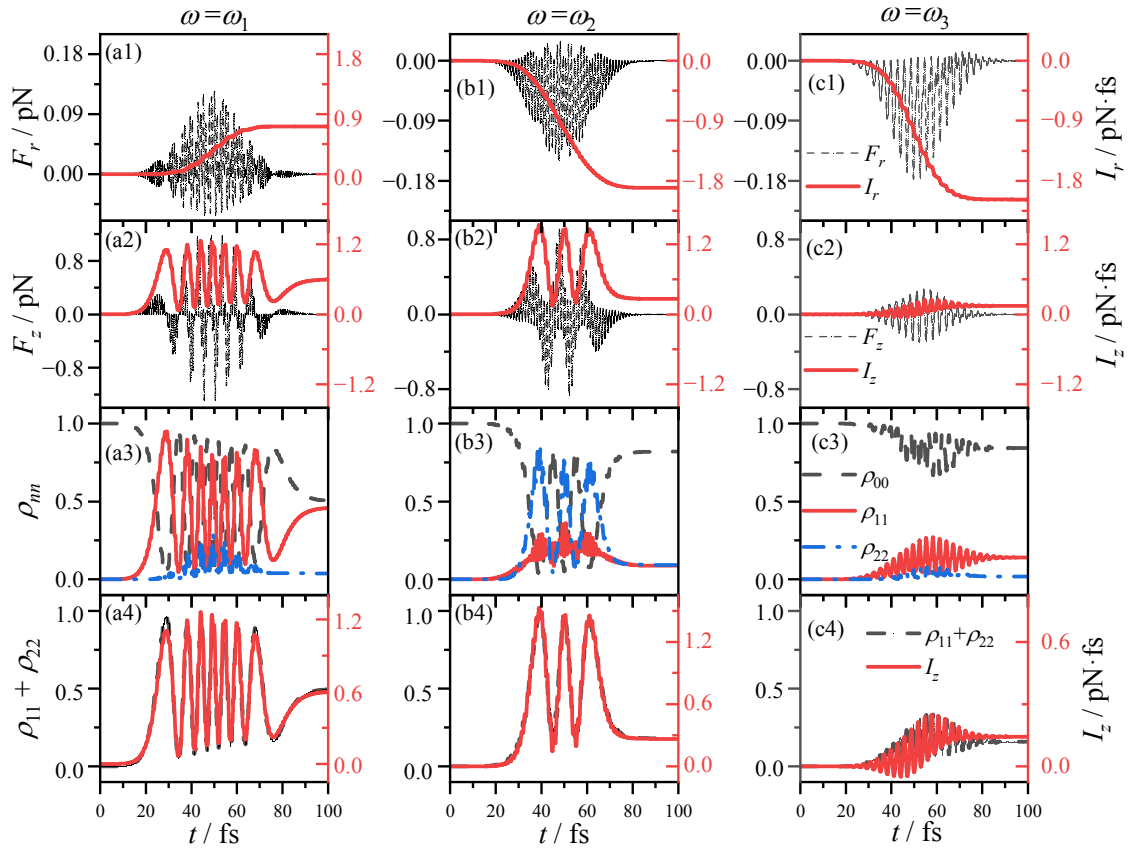


图2 （网刊彩色）不同多光子共振条件下，光力、冲量和粒子数布居的时间演

化. $E_0 = 1.245 \times 10^{10}$ V/m. (a1)-(a4) 单光子共振 $\omega = \omega_1$; (b1)-(b4) 双光子共振 $\omega = \omega_2$; (c1)-(c4)

三光子共振 $\omega = \omega_3$. (a1)-(c1)为横向光力 F_r 和横向冲量 I_r ; (a2)-(c2)为纵向光力 F_z 和纵向冲

量 I_z ; (a3)-(c3)为粒子数布居 ρ_{00} 、 ρ_{11} 、 ρ_{22} ; (a4)-(c4)为 $(\rho_{11} + \rho_{22})$ 以及纵向冲量 I_z .

Fig. 2. Time-dependence of optical force, impulse and population under different multiphoton resonance conditions. $E_0 = 1.245 \times 10^{10}$ V/m. (a1)-(a4) Single-photon resonance, $\omega = \omega_1$; (b1)-(b4) Two-photon resonance, $\omega = \omega_2$; (c1)-(c4) Three-photon resonance, $\omega = \omega_3$. (a1)-(c1) Transverse optical force F_r and transverse impulse I_r ; (a2)-(c2) Longitudinal optical force F_z and longitudinal impulse I_z ; (a3)-(c3) Population ρ_{00} , ρ_{11} , ρ_{22} ; (a4)-(c4) $\rho_{11} + \rho_{22}$ and longitudinal impulse I_z .

纵向光力和纵向冲量的演化如图2(a2)-(c2)，不同共振条件下，瞬时纵向光力 F_z 同样以两倍的载波频率振荡，但其方向伴随能级粒子数布居变化发生正负交替

振荡（图2(a3)-(c3)）。因此，虽然纵向冲量 I_z 的方向保持不变，其幅值 $|I_z|$ 却具有与能级粒子数布居 $(\rho_{11} + \rho_{22})$ 或基态粒子数 ρ_{00} 相同的变化周期（图2(a4)-(c4)）。这表明纵向光力主要来源于光场的辐射压力：当原子从光场吸收能量发生受激吸收时，基态布居逐渐减少，上能级布居逐渐增加，直至粒子数最大反转；随后，原子通过受激辐射向光场释放能量，使上能级布居不断减少，至极小值后开始下一个变化周期。

由此可见，瞬时光力的大小并不能直接决定最终冲量的大小。虽然横向光力的瞬时幅值较小，但由于横向冲量持续同向积累，最终可形成较明显的横向聚焦或者散焦作用；纵向光力虽然瞬时幅值较大，但其正负交替振荡会使部分动量转移相互抵消，从而使纵向冲量发生周期性振荡。通过调节光场参数，可使横向冲量显著占优，发挥不同共振条件下横向光力对原子的聚散焦和导引作用。

3.2 电场强度对光力的调控

在上述光力时域演化分析的基础上，进一步分析多光子共振条件下，电场强度对光场冲量及各能级粒子数布居的影响。图3给出了在激光脉冲作用结束后（至 $t = 100 \text{ fs}$ ），三种共振条件下的光场横向冲量 I_r 和纵向冲量 I_z 随电场峰值强度 E_0 的变化。当光场较弱时，各共振条件下的横向冲量幅值 $|I_r|$ 均随 E_0 增大而增强（图3(a)）。在单光子共振（ $\omega = \omega_1$ ）下 $I_r > 0$ ，表现为远离光轴方向的横向散焦作用；在双光子（ $\omega = \omega_2$ ）与三光子（ $\omega = \omega_3$ ）共振下的 $I_r < 0$ ，说明光场对原子产生指向光轴的横向聚焦作用；其中三光子共振条件下的横向冲量幅值更大，表明三光子共振具有更为明显的聚焦作用。随着 E_0 继续增大，横向冲量不再保持单调变化，而是出现局部起伏和振荡特征，说明强场条件下的多通道激发和高阶非线性效应开始影响横向光力的累积结果（图4）。

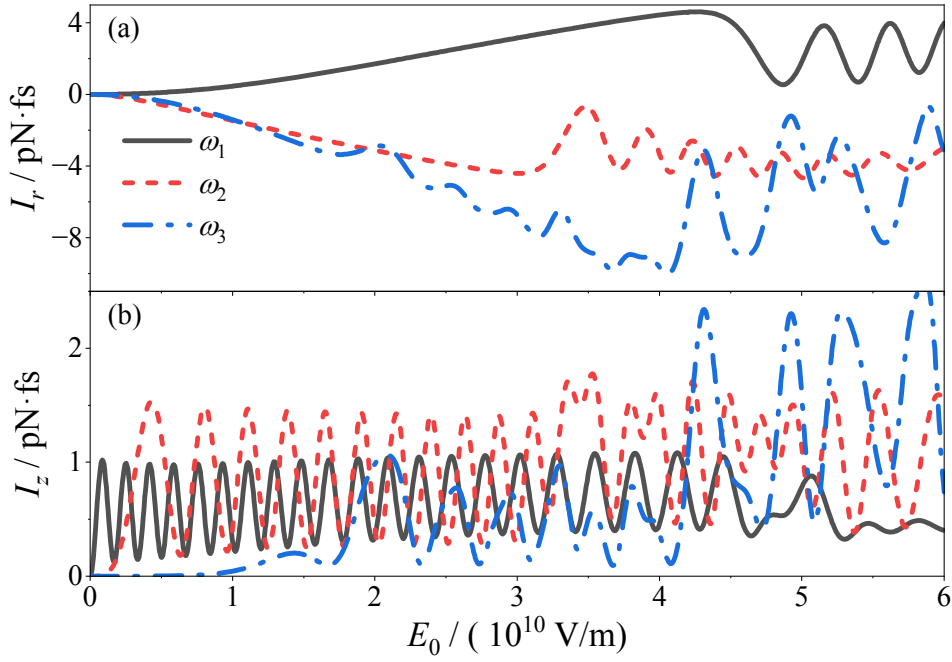


图3 （网刊彩色）不同共振条件下，冲量随电场强度 E_0 的变化 (a) 横向冲量 I_r ；(b) 纵向冲量 I_z

Fig. 3. Dependence of the impulses on the electric field amplitude E_0 under different resonance conditions: (a) Transverse impulse I_r ; (b) Longitudinal impulse I_z .

纵向冲量 I_z 均为正值，表明在初始基态条件下，脉冲作用后原子沿传播方向获得的净动量转移总体保持正向；与横向冲量相比，纵向冲量随 E_0 的变化，呈现饱和振荡特性（图3(b)），且表现出与能级粒子数分布相同的振荡行为（图4），且振荡特性因共振模式而异。

为解释上述冲量差异，图4给出了对应共振条件下各能级粒子数布居随 E_0 的演化规律。单光子共振条件 ($\omega = \omega_1$) 下，系统以 $|0\rangle \leftrightarrow |1\rangle$ 之间的单光子跃迁为主，动力学行为与典型二能级体系类似， ρ_{00} 、 ρ_{11} 随 E_0 改变呈现快速周期性振荡，而 ρ_{22} 缓慢上升（图4(a)）。双光子共振条件 ($\omega = \omega_2$) 下，系统以 $|0\rangle \leftrightarrow |2\rangle$ 之间的双光子跃迁为主，粒子数布居振荡主要发生在 ρ_{00} 和 ρ_{22} 之间，中间态 ρ_{11} 维持较低水平且平缓增加（图4(b)）。这表明中间态虽然不占据主要布居，但仍通过相干耦合参与双光子跃迁过程，从而使双光子共振下的冲量变化不同于单光子共振。

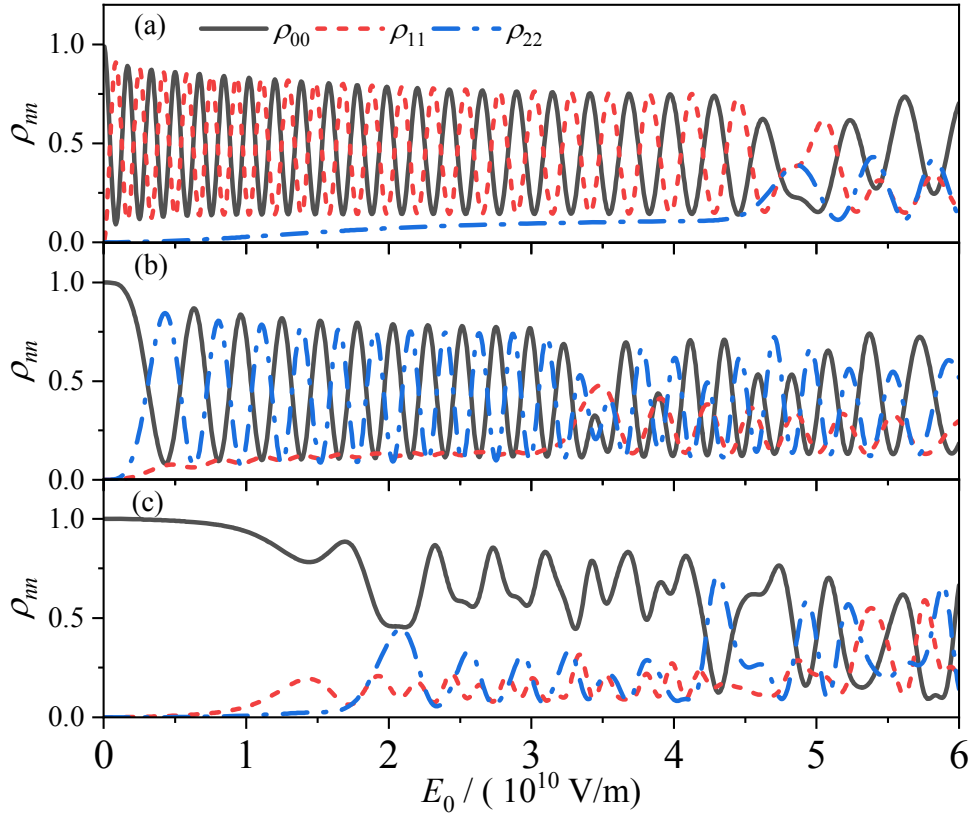


图4 （网刊彩色）各能级粒子数布居 ρ_{mn} 随电场强度 E_0 的演化 (a) 单光子共振 $\omega = \omega_1$; (b) 双光子共振 $\omega = \omega_2$; (c) 三光子共振 $\omega = \omega_3$

Fig. 4. Population distributions ρ_{mn} as functions of the field amplitude under different resonance

conditions: (a) Single-photon resonance, $\omega = \omega_1$; (b) Two-photon resonance, $\omega = \omega_2$; (c)

Three-photon resonance, $\omega = \omega_3$.

由于高阶多光子跃迁对光场强度要求更高，在三光子共振条件 ($\omega = \omega_3$) 下，在低 E_0 区间内非线性激发过程尚未显著发生，未观察到明显的粒子数布居振荡，随着 E_0 增大，中间态 ρ_{11} 布居数开始增加，之后 ρ_{22} 布居数也达到较高的占有率水平，各能级布居均出现较复杂的振荡。电场强度的变化不仅能够改变光力幅值，还通过调节耦合强度、布居转移程度，进一步改变冲量的方向、幅值和振荡规律。

为进一步探究纵向冲量的振荡特性，图5给出了单光子和双光子共振条件下，纵向冲量 I_z 随相应的脉冲面积 $\theta_1(r, t)$ 和 $\theta_2(r, t)$ 的变化情况。在单光子共振 ($\omega = \omega_1$) 下， I_z 随脉冲单光子脉冲面积 θ_1 的增加呈现以 2π 为周期的振荡分布^[25],

表明该区域光力动力学主要受单光子拉比振荡支配。在双光子共振($\omega = \omega_2$)下, 图5(b)中 I_z 虽然随双光子脉冲面积 θ_2 的变化表现出振荡特性, 但是其峰值位置、振荡幅度和相邻极值间隔不再满足简单固定周期关系。这说明双光子共振条件下的纵向冲量不再只由单一有效脉冲面积决定, 而是受到中间态参与、多能级相干耦合、四波混频以及强场条件下有效失谐变化等多种因素的共同影响^[34-36]。此外, 如图3、图4所示, 在三光子共振频率条件($\omega = \omega_3$)下, 能级粒子数布居和光力响应均不再呈现简单的周期振荡规律, 表明在高阶多光子过程中, 系统的动力学行为为进一步复杂化, 难以用单一脉冲面积参数刻画。

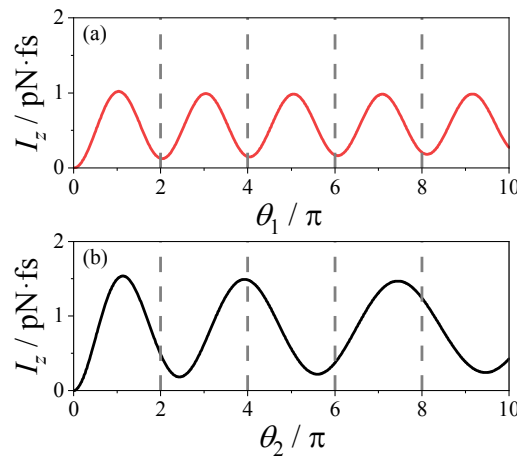


图5 (网刊彩色)纵向冲量 I_z 分别随单光子脉冲面积 $\theta_1(r, t)$ 和双光子脉冲面积 $\theta_2(r, t)$ 的演化情况 (a) 单光子共振 $\omega = \omega_1$; (b) 双光子共振 $\omega = \omega_2$

Fig. 5. Longitudinal impulses I_z as functions of the single-photon area $\theta_1(r, t)$ and the two-photon area $\theta_2(r, t)$ respectively under different resonance conditions: (a) Single-photon resonance $\omega = \omega_1$; (b) Two-photon resonance $\omega = \omega_2$.

3.3 载波频率对光力的调控

在近共振频率处, 光力对频率失谐量较为敏感。当载波频率在共振点附近发生红移或蓝移时, 失谐量会进一步改变有效耦合强度, 从而影响横向与纵向冲量变化规律。图6展示了在多光子共振频率附近, 光场冲量随峰值电场强度 E_0 的变

化规律. 这里载波频率分别取 $\omega = 0.95\omega_i$ 、 $0.98\omega_i$ 、 ω_i 、 $1.02\omega_i$ 和 $1.05\omega_i$, 其中 $i=1,2,3$ 分别对应单光子、双光子和三光子共振频率, 低于共振频率的情况对应红移失谐, 高于共振频率的情况对应蓝移失谐.

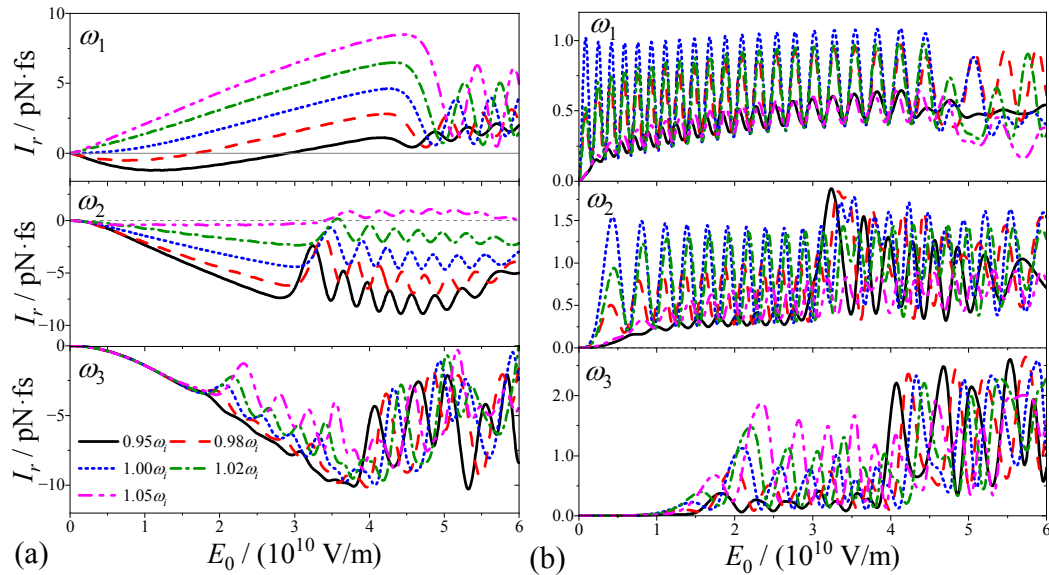


图6 (网刊彩色) 近多光子共振条件下, (a)横向冲量 I_r 和(b)纵向冲量 I_z 随电场强度 E_0 的变化

Fig. 6. Dependence of (a) the transverse impulse I_r and (b) the longitudinal impulse I_z on the electric field amplitude E_0 near different multiphoton resonance regions.

图6(a)可以看出, 在近单光子共振区域, 当载波频率略低于或接近 ω_1 时, 横向冲量 I_r 随 E_0 增加会出现由负到正的变化, 即此时随光强增加横向聚焦效应逐渐转变为横向散焦效应; 且载波频率越高, I_r 零点对应的 E_0 值越小. 在近双光子共振情况下, I_r 整体以负向累积为主, 但是随着蓝移程度增大, 相同光强下 $|I_r|$ 减少, 甚至在 $\omega = 1.05\omega_2$ 的强场高度非线性区, 出现方向改变; 这说明在双光子共振蓝移一侧, 系统可能同时受到双光子和邻近单光子耦合通道的影响, 使横向冲量对载波频率更加敏感. 如果载波频率进一步蓝移, 会逐渐接近单光子共振情况. 在近三光子共振情况, I_r 没有出现正负变化, 始终为负值; 但在强场区, 曲线出现明显起伏, 在更宽频率范围内可能存在局部符号变化 (见图7). 对于初

始状态为基态的原子，在所考察的光场参数范围内，纵向冲量 I_z 始终保持正值（图 6(b)），不同失谐条件主要改变振荡幅值，而对整体振荡周期的影响相对较小。

通常，实际光力调控并不局限于共振条件，为了进一步研究在更宽频率范围内的光力特性，图 7 给出了横向冲量 I_r 、纵向冲量 I_z 及各能级粒子数布居 ρ_{mn} 随载波频率及电场强度 (ω, E_0) 的二维分布。可以看出，纵向冲量 I_z （图 7(a)）具有与基态粒子数 ρ_{00} （图 7(c)）相一致的变化规律，说明纵向冲量源于原子受到的辐射压力，是原子在激光场中受激吸收和受激辐射作用的结果。 I_z 主要分布在能够使能级粒子数布居发生明显变化的近多光子共振区域，在远离共振区域 I_z 较小。

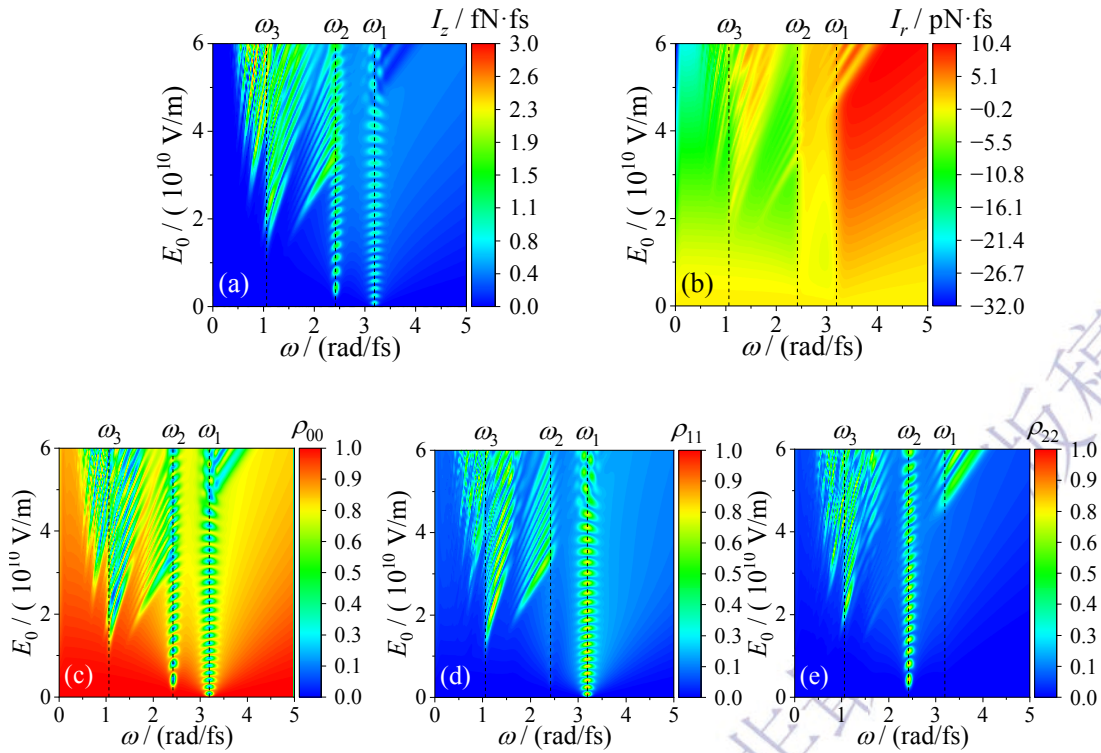


图 7（网刊彩色）横向和纵向冲量及粒子数布居的 (ω, E_0) 二维分布 (a) 纵向冲量 I_z ；(b) 横向冲量 I_r ；(c) 能级 $|0\rangle$ 粒子数布居 ρ_{00} ；(d) 能级 $|1\rangle$ 粒子数布居 ρ_{11} ；(e) 能级 $|2\rangle$ 粒子数布

居 ρ_{22}

Fig. 7. Distribution of impulse and population as functions of (ω, E_0) after the interaction: (a) Longitudinal impulse I_z ；(b) Transverse impulse I_r ；(c) Population ρ_{00} in $|0\rangle$ ；(d) Population ρ_{11} in $|1\rangle$ ；(e) Population ρ_{22} in $|2\rangle$.

横向冲量 I_r 的方向与幅值随频率变化呈现分段分布特征（图 7(b)）。当载波频率在远离单光子共振的高频区域时（ $\omega > \omega_1$ ），原子被激发的概率较低，主要处于基态，此时横向冲量 $I_r > 0$ ，激光场对原子表现为横向散焦作用，且其幅值随 E_0 的增大总体增强；当载波频率在低于三光子共振的低频区时（ $\omega < \omega_3$ ），原子发生多光子激发概率也较低，此时横向冲量 $I_r < 0$ ，表现为横向聚焦作用，且其幅值随 E_0 增大而增大。

当载波频率介于单光子和三光子共振频率之间时，受到粒子数布居变化的影响，光力情况较为复杂。当载波频率介于单光子与双光子共振频率之间（ $\omega_2 < \omega < \omega_1$ ）时，横向冲量 I_r 幅值较小；同时，随着 E_0 增大，原子在不同能级间发生振荡激发，使得 I_r 的大小和方向也相应发生正负变化；当载波频率介于双光子与三光子共振频率之间（ $\omega_3 < \omega < \omega_2$ ）时，在电场强度较低时且远离多光子共振的区域， I_r 分布与 $\omega < \omega_3$ 情况类似，主要表现为具有聚焦作用的负向横向冲量。

随着电场强度的增大， $|0\rangle \rightarrow |1\rangle$ 能级间的三光子跃迁，甚至 $|0\rangle \rightarrow |1\rangle \rightarrow |2\rangle$ 能级间的四光子跃迁增强， I_r 出现具有散焦作用的正向冲量区域。由此可见，横向冲量的方向和幅值具有明显的载波频率依赖性，红移和蓝移不仅会改变 I_r 的大小，还会改变其方向，从而使原子的横向光力响应在聚焦和散焦之间转变。随着 E_0 增大，横向冲量 I_r 的变化逐渐偏离弱场区的增长规律，表现出局部振荡特征。

为了能够更加清晰直观的说明不同频率条件下，光力的散焦或聚焦作用，图 8 给出了不同载波频率光场在脉冲峰值时刻形成的束腰平面内的光学势分布。当光场载波频率高于单光子共振频率（正失谐情况下），光学势表现为 $U(r) > 0$ 的排斥势，且随着距光轴距离 r 的增加逐渐减小，相应的横向冲量 $I(r) > 0$ ，此时原子受到背离光轴向外的冲量作用，发生横向散焦；当光场载波频率低于单光子共振频率（负失谐情况下），光学势表现为 $U(r) < 0$ 的吸引势，且随着 r 的增加绝对值

$|U(r)|$ 逐渐减小, 相应的横向冲量 $I(r)<0$, 原子受到指向光轴的冲量作用, 发生横向聚焦。在远离共振区域, 光学势分布和光力性质具有非常好的稳定性。但是, 在多光子共振频率附近, 由于受到强烈粒子数布局变化的影响, 光学势分布发生明显振荡。在从单光子共振到双光子共振的过渡频率区域, 光学势逐渐由正值变为负值, 对原子的作用也由散焦变为聚焦。

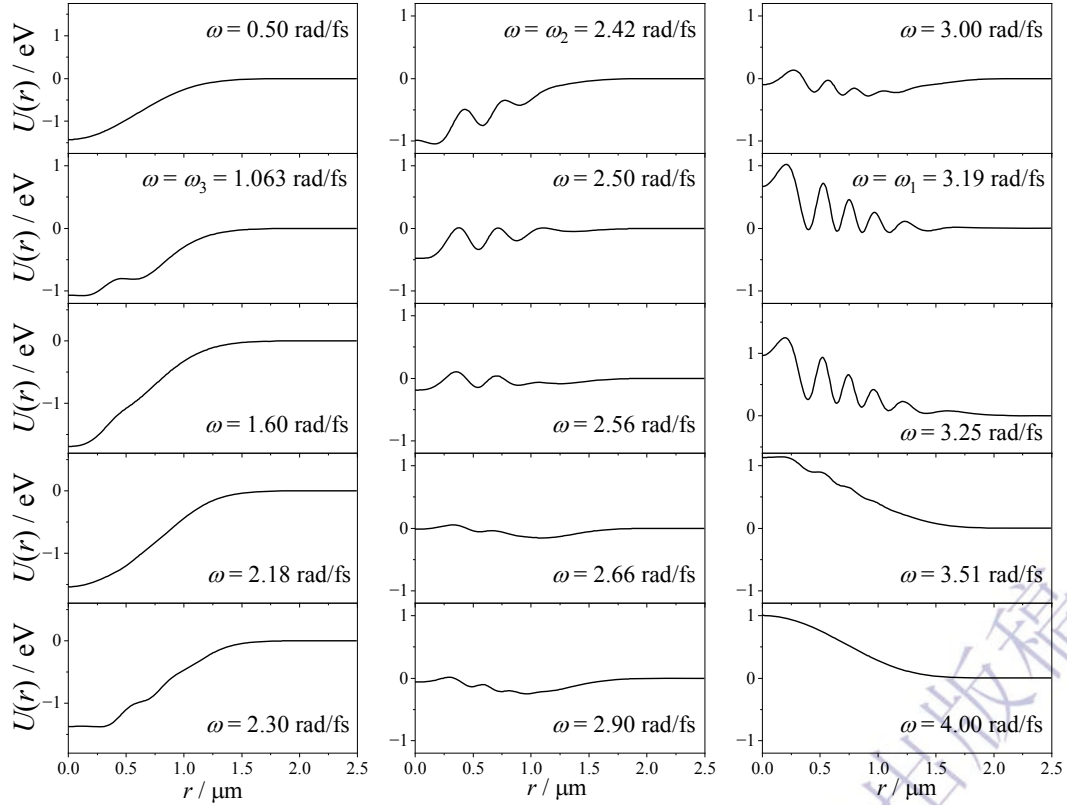


图 8 (网刊彩色) 不同光场载波频率情况下, 在光脉冲强度最强时刻, 束腰所在平面内

光学势 U 随径向距离 r 的分布情况. $E_0 = 1.245 \times 10^{10}$ V/m

Fig. 8. Distribution of the optical potential U along the transverse radius r at the central time of

the laser pulse with different carrier frequencies, $E_0 = 1.245 \times 10^{10}$ V/m .

最后, 需要说明的是本文采用的级联三能级模型是一种近似, 主要用于分析飞秒激光与原子体系的多光子相互作用光力响应特性。对于分子体系, 通常具有复杂的振动和转动能级结构, 其光力学响应还同时受到光场强度、频率、脉宽等因素的影响, 特别是在外场波长较长的情况下, 不仅要考虑分子的电子态响应,

还需要考虑其振动和转动响应，情况较为复杂，有待进一步研究。

4 结 论

本文基于非旋波近似下的光学布洛赫方程，系统研究了飞秒高斯激光束与级联三能级原子相互作用过程中的光力学响应，分析了不同多光子共振条件下光力、冲量与布居的时间演化行为，以及电场强度和载波频率对冲量的调控作用。发现横向光力和纵向光力均以两倍的载波频率快速振荡，但二者的冲量积累机制和方式截然不同。纵向冲量 I_z 源于原子在激光场中受到的辐射压力，是受激吸收和受激辐射共同作用的结果，其演化规律与能级粒子数布居变化趋势一致，且在近多光子共振区具有较大的 I_z 幅值。横向冲量 I_r 源于光场横向不均匀分布引起的梯度力。在场强较低时，横向冲量 I_r 随脉冲作用时间和电场强度的增加呈现单调积累趋势，且其方向具有明显的频率区域依赖特性：在蓝移失谐的高频区表现为背离光轴的正向力，具有散焦作用；在红移失谐的低频区表现为指向光轴的负向力，具有聚焦作用。在强场区域， I_r 展现出显著的非线性响应及更加复杂的振荡行为。综上，通过联合调节载波频率和电场强度，可以有效调控光场对原子的横向聚焦或散焦作用，并控制沿传播方向的动量交换过程。本文研究结果为飞秒激光与原子多光子相互作用中的光力调控提供了理论依据与参数设计指导。

参考文献

- [1] Gao D L, Ding W Q, Nieto-Vesperinas M, Ding X M, Rahman M, Zhang T H, Lim C T, Qiu C W 2017 *Light Sci. Appl.* **6** e17039
- [2] Ashkin A 1970 *Phys. Rev. Lett.* **24** 156
- [3] Ashkin A, Dziedzic J M, Yamane T 1987 *Nature* **330** 769
- [4] Spar B M, Guardado-Sanchez E, Chi S, Yan Z Z, Bakr W S 2022 *Phys. Rev. Lett.* **128** 223202

- [5] Arias Espinoza J D, Mazzanti M, Fouka K, Schüssler R X, Wu Z, Corboz P, Gerritsma R, Safavi-Naini A 2021 *Phys. Rev. A* **104** 013302
- [6] Li Y Z, Valenton E, Nagasamudram S, Parker J, Perez M, Manna U, Biswas M, Rice S A, Scherer N F 2025 *Nat. Commun.* **16** 10397
- [7] Zhang T G, Zhang F C, Shan X C, Haro-González P, Jaque D, Wang F 2026 *Nat. Protoc.* **21** 1985
- [8] Delić U, Reisenbauer M, Dare K, Grass D, Vuletić V, Kiesel N, Aspelmeyer M 2020 *Science* **367** 892
- [9] Magrini L, Rosenzweig P, Bach C, Deutschmann-Olek A, Hofer S G, Hong S, Kiesel N, Kugi A, Aspelmeyer M 2021 *Nature* **595** 373
- [10] Liang Y, Liang G, Xiang Y, Lamstein J, Gautam R, Bezryadina A, Chen Z 2019 *Phys. Rev. Appl.* **12** 064060
- [11] Puerto A, Méndez A, Arizmendi L, García-Cabañes A, Carrascosa M 2020 *Phys. Rev. Appl.* **14** 024046
- [12] Zhang Y, Zhao H, Chen Z, Liu Z, Huang H, Qu Y, Liu Y, Sun M, Sun D, Zhao X 2024 *Lab Chip* **24** 5215
- [13] Bustamante C J, Chemla Y R, Liu S X, Wang M D 2021 *Nat. Rev. Methods Primers* **1** 25
- [14] Sánchez W N, Robeson L, Carrasco V, Figueroa N L, Burgos-Bravo F, Wilson C A M, Casanova-Morales N 2022 *Q. Rev. Biophys.* **55** e8
- [15] Bao Y, Yan Z J, Scherer N F 2014 *J. Phys. Chem. C* **118** 19315
- [16] Chiappini A, Trejo-García P M, Carpentiero A, Armellini C 2020 *Opt. Mater.* **110** 110507

- [17] Kudo T, Louis B, Sotome H, Chen J K, Ito S, Miyasaka H, Masuhara H, Hofkens J, Bresolí-Obach R 2023 *Chem. Sci.* **14** 10087
- [18] Li Y, Guo Z Y, Qu S L 2014 *Opt. Lasers Eng.* **55** 150
- [19] Yu M J, Barton D, Cheng R, Reimer C, Kharel P, He L Y, Shao L B, Zhu D, Hu Y W, Grant H R, Johansson L, Okawachi Y, Gaeta A L, Zhang M, Lončar M 2022 *Nature* **612** 252
- [20] Stoliarov D, Koviakov A, Galiakhmetova D, Rafailov E 2025 *Sci. Rep.* **15** 18867
- [21] Gaafar M A, Ludwig M, Wang K, Wildi T, Voumard T, Sinobad M, Lorenzen J, Francis H, Carreira J, Zhang S, Bi T, Del'Haye P, Geiselmann M, Singh N, Kärtner F X, Garcia-Blanco S M, Herr T 2024 *Nat. Commun.* **15** 8109
- [22] Wu Z, Lin Y X, Zhu B F, Li D K, Zhang B Z, Chin L, Zhang M 2025 *Opt. Laser Technol.* **189** 112998
- [23] Ait-Ameur K, Hasnaoui A 2024 *Opt. Commun.* **551** 130033
- [24] Kumar P, Sarma A K 2011 *Phys. Rev. A* **84** 043402
- [25] Liu J C, Cheng F, Zhao Y N, Guo F F 2019 *Acta Phys. Sin.* **68** 033701 (in Chinese) [刘纪彩, 成飞, 赵亚男, 郭芬芬 2019 物理学报 **68** 033701]
- [26] Guan W H, Wang J, Yuan S, Abdul G A R, Guo F F, Liu J C 2023 *Acta Opt. Sin.* **43** 1927001 (in Chinese) [管文慧, 王翦, 袁烁, Abdul Gheyas Abdul Rashid, 郭芬芬, 刘纪彩 2023 光学学报 **43** 1927001]
- [27] Singh K K, Singh A, Kumar D, Goswami D 2025 *J. Chem. Phys.* **163** 104202
- [28] Yadav S, Singh A, De A K 2025 *J. Chem. Phys.* **163** 124106
- [29] Gong L P, Gu B, Rui G H, Cui Y P, Zhu Z Q, Zhan Q W 2018 *Photonics Res.* **6** 138

- [30] Zhu J, Wang T F, Su Q 2025 *Opt. Laser Technol.* **181** 112039
- [31] Jiang Y Q, Narushima T, Okamoto H 2010 *Nat. Phys.* **6** 1005
- [32] Huang X T, Yi X W, Tang W, Hu S H, Zhu M Y, Zhang J, Xu B, Qiu K 2019 *Opt. Commun.* **436** 243
- [33] Guinart A, Doellerer D, Pooler D R S, de Boer J Y, Doria S, Bussotti L, Di Donato M, Feringa B L 2024 *J. Photochem. Photobiol. A: Chem.* **453** 115649
- [34] Liu J C, Wang C K, Gel'mukhanov F 2007 *Phys. Rev. A* **76** 043422
- [35] Liu J C, Felicissimo V C, Guimarães F F, Wang C K, Gel'mukhanov F 2008 *J. Phys. B* **41** 074016
- [36] Liu J C, Guo F F, Zhao Y N, Zhang Y Q 2019 *Opt. Commun.* **438** 25
- [37] Huang R H, Hu H X, Li X F, Zhang Z W 2025 *Int. J. Mech. Sci.* **305** 110798
- [38] Long L W, Zhao W H, Li J B, He M D 2023 *Results Phys.* **54** 107034
- [39] Litvinenko K L, Le N H, Redlich B, Pidgeon C R, Abrosimov N V, Andreev Y, Huang Z, Mordin B N 2021 *Nat. Commun.* **12** 454
- [40] Zhu Z, Zhang Y Q, Zhang S S, Adam A J L, Min C J, Urbach H P, Yuan X C 2023 *Adv. Photonics* **5** 046006
- [41] Zhang J B, Liu K Y, Wang P, Tong L M, Guo X 2025 *Nat. Commun.* **16** 7424
- [42] Nishiyama H, Umetsu K, Kimura K 2019 *Sci. Rep.* **9** 14310
- [43] James M E, Reick C, Qaed M M, Ceeney G A, Rimgailaite K, Blore R G, Majewska Z X, Ghrieb D, Gallio A E, Marson N A, Basran J, Rosato E, Kyriacou C P, Raven E L, Hudson A J 2026 *J. Inorg. Biochem.* **274** 113082
- [44] Guan L L, Cao C, Liu X, Liu Q L, Qiu Y W, Wang X B, Yang Z Y, Lai H Y, Sun Q Y, Ding C L, Zhu D Z, Kuang C F, Liu X 2024 *Nat. Commun.* **15** 2387

- [45] Hong Z H, Zhang Z, You R L, Chen J B, Li S B, Wang Y H, Sun Y Y, Song B F, Ji Z Y, Loy D A, Liang R G 2025 *Addit. Manuf.* **103** 104772
- [46] Nielsen K H, Wang Y, Deacon E C R, Sund P I, Liu Z, Scholz S, Wieck A D, Ludwig A, Midolo L, Sørensen A S, Paesani S, Lodahl P 2025 *Nat. Commun.* **16** 11397
- [47] Do T N, Menendez D, Bizhga D, Stojković E A, Kennis J T M 2024 *J. Mol. Biol.* **436** 168357
- [48] Kong L, Yang L, Xin C Q, Zhu S J, Zhang H H, Zhang M Z, Yang J X, Li L, Zhou H P, Tian Y P 2018 *Biosens. Bioelectron.* **108** 14
- [49] Jin F, Cai Z B, Huang J Q, Li S L, Tian Y P 2015 *J. Mol. Struct.* **1093** 33
- [50] Sansonetti J E 2008 *J. Phys. Chem. Ref. Data* **37** 1659
- [51] Safronova M S, Derevianko A, and Johnson W R 1998 *Phys Rev A* **58** 1016

Study of Optomechanical Properties in the Multiphoton Interaction between Femtosecond Laser Fields and Atoms^{*}

Xie Yuan-Hao¹⁾ Yuan Rui¹⁾ Wang Jian²⁾ Yuan Shuo²⁾ Zhang Man¹⁾ Li Teng-Fei²⁾

Chang Ya-Jie¹⁾ Wang Jian³⁾ Liu Ji-Cai¹⁾⁴⁾[†]

1) (School of Mathematics and Physics, North China Electric Power University, Beijing 102206,
China)

2) (School of Nuclear Science and Engineering, North China Electric Power University, Beijing
102206, China)

3) (School of Electrical and Electronic Engineering, North China Electric Power University,
Beijing 102206, China)

4) (Hebei Key Laboratory of Physics and Energy Technology, Baoding 071000, Hebei, China)

Abstract

Femtosecond lasers, characterized by ultrashort pulse durations and extremely high peak power, facilitate strong nonlinear optical interactions with matter on femtosecond timescales. These features not only significantly enhance temporal resolution and dynamic control precision in the manipulation of micro and nanoparticles, but also provide new pathways for ultrafast non-contact precision manipulation.

Within the framework of the optical Bloch equation, the optomechanical behavior of a cascade three-level atom driven by a femtosecond laser field is investigated under multiphoton interaction processes, with particular attention paid to the evolution characteristics and control mechanism of the optical force. The results show that both the transverse and longitudinal optical forces exhibit rapid oscillations with approximately twice the carrier frequency, but their impulse accumulation mechanisms are different. In the lower-intensity region, the transverse impulse accumulates continuously with increasing pulse interaction time or electric-field amplitude, corresponding to either a

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 12541505, 12211530044), and the Fundamental Research Funds for the Central Universities (2026JC012).

[†] Corresponding author. E-mail: jicailiu@ncepu.edu.cn

focusing effect toward the optical axis or a defocusing effect away from the optical axis. In contrast, the longitudinal impulse shows periodic oscillations, and its evolution is consistent with the population dynamics of the atomic levels. For atoms initially prepared in the ground state, the longitudinal impulse remains positive. Different multiphoton resonance conditions correspond to different dominant transition pathways, leading to different directions and magnitudes of the transverse impulse. Under strong-field conditions, the transverse impulse no longer varies monotonically, but exhibits complex fluctuations and oscillations associated with population redistribution.

Carrier-frequency detuning can further regulate the magnitude and direction of the transverse impulse, causing the transverse optical action to switch between focusing and defocusing. Near the single-photon resonance region, the transverse impulse can change from negative to positive with increasing electric field amplitude, indicating a transition from focusing to defocusing. Near the two-photon resonance region, the transverse impulse is mainly accumulated in the negative direction, while blue detuning weakens the focusing effect and may even lead to a reversal of the impulse direction. Near the three-photon resonance region, the transverse impulse mainly remains negative and shows a relatively stable focusing feature.

The results indicate that effective control of both the magnitude and direction of the optical force can be achieved by tuning the carrier frequency and electric-field amplitude. This work provides theoretical guidance and parameter-design references for applications of femtosecond lasers in quantum control, cold-atom physics, and ultrafast precision manipulation.

Keywords: atomic optics; optical dipole force; multiphoton interaction; cascade

three-level atomic system