

二能级原子谐波产生过程的理论描述

屈卫星 胡素兴 徐至展

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

(1997 年 4 月 14 日收到; 1997 年 7 月 11 日收到修改稿)

从理论上研究了二能级原子的谐波产生过程, 利用非线性外力驱动的振子模型来模拟激光场中二能级原子的诱导极化, 并分析了在弱场和超强场条件下的二能级原子(高次)谐波谱的特性.

PACC: 3200; 4265K

1 引 言

近年来相干高次谐波的产生已成为多光子物理中的一个重要的研究领域^[1-4]. 实验发现, 当强激光脉冲与气体相互作用时会产生相干的电磁辐射, 其频率为驱动激光频率的奇数倍, 并且当激光频率远小于原子的电离能时, 产生的辐射光谱都具有一个共同的特性: 最初几次谐波的强度会随级次的增加迅速衰减, 随后出现一个较平展的区域, 在该区域各次谐波基本上具有相同的强度, 最后平台区在某一高频处被截止. 最新的报道表明实验上已观测到高达 100 多次的高次谐波, 其光子能量延伸到 135 eV 的范围^[1,4]. 因此, 高次谐波的产生有可能作为获得短波长激光的一个有效途径而引起人们的重视^[1-3].

对高次谐波产生的理论研究通常集中于对高次谐波谱的数值计算, 这种计算要涉及到含时 Schrödinger 方程的求解. 由于偏微分方程数值求解的计算量很大, 目前也只限于二维的含时 Schrödinger 方程的数值求解. 因此人们提出了各种简化模型来描述原子谐波产生的物理机制, 譬如非谐振子模型^[1]、三角势阱模型^[5]、二能级系统模型^[6]等. 根据这些模型计算出的谐波谱都有相应的平台区和截止频率. 实际上高次谐波产生的根源是激光与原子中电子的强非线性相互作用, 任何在强外场驱动下的非线性系统的运动频谱都会具有上述高次谐波的特性.

本文从理论上研究了与激光相互作用的二能级原子的谐波产生过程, 利用在非线性外力驱动下的受迫振子模型来模拟二能级原子的诱导极化, 并着重分析了在弱场和超强场两种情况下的二能级原子谐波谱的性质.

2 运动方程及其特定条件下的解

设 $|g\rangle$ 和 $|a\rangle$ 分别为二能级原子的基态和激发态, 能量分别为 E_g 和 E_a , 并假设 $\mu_{gg} = \mu_{aa} = 0$ (μ_{gg} 和 μ_{aa} 为二能级原子偶极矩算符 $\hat{\mu}$ 的对角矩阵元). 外场为线偏振的激光脉冲

$E(t) = E_0(t) \cos \omega_1 t$, 其中 $E_0(t)$ 和 ω_1 分别为激光脉冲的包络和激光场的频率, 并且 $\dot{E}_0 \ll \omega_1 E_0(t)$. 在偶极近似下系统(原子+原子与场相互作用)的哈密顿算符为

$$\hat{H} = E_a |a\rangle \langle a| + E_g |g\rangle \langle g| + E(t) \hat{\mu}. \quad (1)$$

系统在任一时刻的状态 $|\psi(t)\rangle$ 可按基本态 $|g\rangle$ 和 $|a\rangle$ 展开成

$$|\psi(t)\rangle = C_g(t) e^{-i\frac{E_g t}{\hbar}} |g\rangle + C_a(t) e^{-i\frac{E_a t}{\hbar}} |a\rangle. \quad (2)$$

将 $|\psi(t)\rangle$ 代入 Schrödinger 方程

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\psi(t)\rangle = \hat{H} |\psi(t)\rangle, \quad (3)$$

并利用基本态 $|g\rangle$ 和 $|a\rangle$ 的正交归一性, 可得到下列耦合方程组,

$$\dot{C}_g(t) = -i \frac{E(t) \mu_{ga}}{\hbar} e^{-i\omega_0 t} C_a(t), \quad (4a)$$

$$\dot{C}_a(t) = -i \frac{E(t) \mu_{ag}}{\hbar} e^{i\omega_0 t} C_g(t), \quad (4b)$$

其中 $\omega_0 = (E_a - E_g)/\hbar$ 为二能级的跃迁频率. 系统的诱导极化为

$$x(t) = \langle \psi(t) | \hat{\mu} | \psi(t) \rangle = \mu_{ga} C_g^*(t) C_a(t) e^{-i\omega_0 t} + \mu_{ag} C_g(t) C_a^*(t) e^{i\omega_0 t}. \quad (5)$$

通常将系统的高次谐波谱定义为

$$P(\omega) \propto |X(\omega)|^2 = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} x(t) e^{i\omega t} dt \right|^2. \quad (6)$$

所以对系统高次谐波谱性质的分析就转化成对系统诱导极化 $x(t)$ 的动力学行为的分析.

由于 $x(t) = \langle \psi(t) | \hat{\mu} | \psi(t) \rangle$ 是系统偶极矩算符的系统平均值, 与经典理论中的系综平均值相对应, 所以 $P(\omega)$ 是宏观上可观测的物理量. 由于哈密顿算符 $\hat{H}$ 的厄密性要求 $\mu_{ag} = \mu_{ga}^*$, 不失一般性, 可令 $\mu_{ag} = \mu_{ga} = \bar{\mu}$, 并通过引入变量

$$y(t) = -i [C_g^*(t) C_a(t) e^{-i\omega_0 t} - C_g(t) C_a^*(t) e^{i\omega_0 t}], \quad (7a)$$

$$z(t) = [C_a^*(t) C_a(t) - C_g^*(t) C_g(t)]. \quad (7b)$$

分别对 $x(t)$, $y(t)$ 和 $z(t)$ 求导, 并利用方程组(4)及其共轭, 可得到下列耦合方程组,

$$\dot{x}(t) = \omega_0 y(t),$$

$$\dot{y}(t) = -\omega_0 x(t) + \Omega(t) z(t) \cos \omega_1 t, \quad (8)$$

$$\dot{z}(t) = -\Omega(t) y(t) \cos \omega_1 t,$$

其中 $\Omega(t) = 2E_0(t)/\hbar$. 在建立方程组(8)时并未做过任何近似, 所以方程组(8)与 Schrödinger 方程是等价的. 由于我们只对变量 $x(t)$ 感兴趣, 所以可从方程组(8)中设法消去 $y(t)$ 和 $z(t)$. 若初始($t=0$)时刻全部粒子均位于基态(即 $C_g(0)=1$, $C_a(0)=0$), 并假设激光脉冲为瞬间开关的方脉冲

$$E_0(t) = \begin{cases} 0 & t \leq 0, \\ E_0 & t > 0. \end{cases} \quad (9)$$

经化简整理后得到

$$\ddot{x}(t) + \Omega_1^2 x(t) = -\Omega_0 \omega_0 \cos \omega_1 t - (\Omega_0^2/2) x(t) \cos 2\omega_1 t - \epsilon^2 \omega_0^2 \cos \omega_1 t \int_0^t \omega_1 x(t') \sin \omega_1 t' dt', \quad (10)$$

其中 $\Omega_0 = 2E_0/\hbar$, $\Omega_1^2 = \omega_0^2 + \Omega_0^2/2$. 方程(10)就是二能级原子在方型激光脉冲作用下的诱导极化的运动方程. 该方程与受迫谐振子方程很类似, 但由于外力是一种非简谐的非线性力, 它不仅与振子的运动状态而且与其运动过程均有关. 因此振子的运动不是单一频率的简谐振动, 而是包含多种频率成分的振动. 这些不同的频率成分的振动反映了二能级原子在激光场作用下偶级辐射谱中的不同频率成分.

由微分方程理论可知, 方程(10)的一般解可由其任一特解加上相应齐次方程的通解构成, 通解中的常数由初始条件确定, 特解可由非齐次项确定. 由于 $x(0) = \dot{x}(0) = 0$, 通解只能是零解, 所以只要求方程(10)的特解, 但由于外力复杂的非线性, 在一般情况下无法得到严格的解析解. 下面我们只分别就 $\Omega_0 < \omega_0$ (弱场) 和 $\Omega_0 \gg \omega_0$ (超强场) 两种情况对方程(10)进行求解.

a) $\Omega_0 < \omega_0$ 情况. 在此情况下令 $\epsilon = \Omega_0/\omega_0$, 方程(10)可表示成

$$\ddot{x}(t) + \Omega_1^2 x(t) = -\epsilon \omega_0^2 \cos \omega_1 t - (\epsilon^2 \omega_0^2/2) x(t) \cos 2\omega_1 t - \epsilon^2 \omega_0^2 \cos \omega_1 t \int_0^t \omega_1 x(t') \sin \omega_1 t' dt'. \quad (10a)$$

由于 $\epsilon < 1$, 所以可通过逐级叠代的方法求解方程(10a). 首先忽略方程右边含 ϵ^2 的非线性项, 解得一级近似解

$$x_1(t) = -\epsilon A(0) \cos \omega_1 t, \quad (11)$$

其中 $A(0) = \omega_0^2/(\Omega_1^2 - \omega_1^2)$. 再将 $x_1(t)$ 代入(10a)式的等号右边得到二级近似解

$$x_2(t) = -\epsilon A(0) \left[\left(1 - \frac{3}{8} \epsilon^2 A(0) \right) \cos \omega_1 t - \frac{\epsilon^2}{8} A(1) \cos 3\omega_1 t \right], \quad (12)$$

其中 $A(1) = \omega_0^2/(\Omega_1^2 - 9\omega_1^2)$. 如此反复叠代, 最后得到方程(10a)的解

$$x(t) = \lim_{n \rightarrow +\infty} x_n(t). \quad (13)$$

在叠代过程中不难发现: 每叠代一次不仅对已有的谐波振幅有所修正, 同时还增添了更高一次的奇次谐波. 因此可将方程(10a)的解表示成下列形式:

$$x(t) = \sum_{k=0}^{\infty} a_{2k+1} \cos(2k+1)\omega_1 t. \quad (14)$$

代入(10a)式, 比较同次谐波的系数可得到递推式 ($k \geq 1$)

$$\epsilon^2 \left(1 - \frac{1}{2k} \right) A(k) a_{2k-1} + \left[4 - \epsilon^2 A(k) \left(\frac{1}{2k} + \frac{1}{2k+2} \right) \right] a_{2k+1} + \epsilon^2 \left(1 - \frac{1}{2k+2} \right) A(k) a_{2k+3} = 0, \quad (15a)$$

其中 $A(k) = \omega_0^2/[\Omega_1^2 - (2k+1)^2 \omega_1^2]$. 令 $z_k = a_{2k+1}/a_{2k-1}$, 上式可表示成

$$z_{k+1} = -\frac{2k+2}{2k-1} \left[\frac{4}{\epsilon^2 A(k)} - \frac{2k-1}{2k(k+1)} + \frac{2k-1}{2k} z_k^{-1} \right]. \quad (15b)$$

由(11), (12)式可近似得到 $z_1 = \epsilon^2 A(1)/(8 - 3\epsilon^2 A(0))$, 代入上式可依次求得 $z_k (k \geq 2)$, 由此求出各次谐波的振幅

$$a_3 = z_1 a_1, \quad a_5 = z_1 z_2 a_1, \quad \dots, \quad a_{2n+1} = \left(\prod_{k=1}^{n} z_k \right) a_1, \quad \dots \quad (16)$$

采用上述方法计算各次谐波比较简便, 特别是当 $\epsilon = \Omega_0/\omega_0$ 很小时收敛较快, 不过对于最初的几次谐波可能有些误差, 但对于级次较高的谐波而言结果还是令人满意的.

b) $\Omega_0 \gg \omega_0$ 情况. 这种情况对应于超强激光场的情形. 由于 $\Omega_0 \gg \omega_0$, 可认为 $\Omega_1^2 = \Omega_0^2/2$, 方程(10)变为

$$\begin{aligned} \ddot{x}(t) + (\Omega_0^2/2)x(t) = & -(\Omega_0^2/2)x(t) \cos 2\omega_1 t - \Omega_0 \omega_0 \cos \omega_1 t \\ & - \Omega_0^2 \cos \omega_1 t \int_0^t \omega_1 x(t') \sin \omega_1 t' dt'. \end{aligned} \quad (10b)$$

将上式两边对时间 t 求导, 由于 $\omega_1 \ll \omega_0 \ll \Omega_0$, 所以求导后可略去含 ω_1 的各项, 得到

$$\ddot{x}(t) + \Omega_0^2 \cos^2 \omega_1 t \dot{x}(t) = 0. \quad (17)$$

上式的基本解为 $\exp\left[\pm i \int_0^t \Omega_0 \cos(\omega_1 t') dt'\right]$, 利用初始条件 $\dot{x}(t) = 0$, 方程(17)的解可表示成

$$\dot{x}(t) = A \sin\left(\int_0^t \Omega_0 \cos \omega_1 t' dt'\right) = A \sin(a \sin \omega_1 t), \quad (18)$$

其中 $a = \Omega_0/\omega_1$, 通过 $\ddot{x}(0) = -\Omega_0 \omega_0$ 可定出常数 $A = -\omega_0$. 利用数学公式^[7]

$$\sin(a \sin \omega_1 t) = 2 \sum_{k=0}^{\infty} J_{2k+1}(a) \sin((2k+1)\omega_1 t), \quad (19)$$

将(18)式展开成级数, 并逐项积分后, 得到

$$x(t) = x_0 - (A/\omega_1) \sum_{k=0}^{\infty} \frac{J_{2k+1}(a)}{2k+1} \cos((2k+1)\omega_1 t), \quad (20)$$

其中常数 $x_0 = (A/\omega_1) \sum_{k=0}^{\infty} \frac{J_{2k+1}(a)}{2k+1}$. 由此不难看出:

1. 在超强光强 ($\Omega_0 \gg \omega_0$) 的情况下, 仍然只有奇次谐波出现, 而且强度 $I_{2n+1} \propto (J_{2n+1}(a)/(2n+1)\omega_1)^2$. 所以在同样光强的情况下选用频率较低的激光可获得较强的谐波.

2. 由于整阶 Bessel 函数 $J_n(x)$ 是单调减函数, 但对于阶数不同的 Bessel 函数其衰减的速度是不同的. 当阶数 n 大于宗量 x 时, $J_n(x)$ 衰减的速度开始加快. 根据这一特性可定出最大谐波次数应出现在 Bessel 函数的阶数与其变量相等时, 即

$$N_{\max} = a = \frac{2E_0}{\omega_1 \hbar}. \quad (21)$$

由此确定出最高谐波的次数.

3. 由(21)式得知: 谐波的最高次数 $N_{\max}$ 正比于激光强度 E_0 而反比于激光频率 ω_1 . 因此, 通过增加光强或降低激光频率均可延长高次谐波谱的平台.

3 结 论

本文通过用初始静止于平衡位置的受迫振子的运动方程来模拟激光场中二能级原子的诱导极化的运动状态,解释了二能级原子谐波产生的机制.并通过在弱场和超强场两种条件下方程的解,得到了相应谐波谱的性质:在两种条件下产生的谐波均为奇次谐波,这是由偶级近似下空间反演的对称性确定的;在弱场情况下,振子与“外力”的耦合虽然也是非线性耦合,但由于很弱并且远离共振区,可以按微扰来处理,所以谐波的强度随级次是单调快速下降的;在超强场情况下,由于振子与“外力”强非线性耦合而不能再视为微扰,因此产生的谐波强度不再是随级次的增加而单调快速下降,其频谱也相应出现了平台和截止频率,并可通过增加光强或降低激光频率来达到延长高次谐波的平台和增强谐波强度的目的.

- [1] Ph. Balcou, A. L'Huillier, D. Escande, *Phys. Rev.*, **A53**(1996), 3456.
- [2] A. L'Huillier, Ph. Balcou, *Phys. Rev. Lett.*, **70**(1993), 774.
- [3] J. J. Macklin, J. D. Kmetec, C. C. Gordon, *Phys. Rev. Lett.*, **70**(1993), 766.
- [4] P. W. Milonni, B. Sundaram, in *Progress in Optics*, ed. E. Wolf(Elsevier Science Publisher, Amsterdam, 1993), p. 61.
- [5] S. Cocke, L. E. Reichl, *Phys. Rev.*, **A53**(1996), 1746.
- [6] L. Allen, J. H. Eberly, *Optical Resonance and Two-level Atoms*(Wiley, New York, 1975), p. 1.
- [7] 王梓坤, 常用数学公式大全(重庆出版社, 重庆, 1991), p. 534.

THEORETICAL DESCRIPTION OF HARMONICS GENERATION FOR TWO-LEVEL ATOMS

QU WEI-XING HU SU-XING XU ZHI-ZHAN

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica, Shanghai 201800)

(Received 14 April 1997; revised manuscript received 11 July 1997)

ABSTRACT

The process of harmonic generation for a two-level atom is investigated theoretically. The model of oscillator driven by a nonlinear external force is used to simulate an induced polarization of the atom, and the characteristics in harmonic spectrum of the atom are analyzed for a weak and a super-intense laser pulses.

PACC: 3200; 4265K