

二能级系统的高次谐波产生过程的 动力学分析

屈卫星 徐至展 余 玮

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

摘 要 通过非扰动方法导出了与线偏振激光脉冲相互作用的二能级原子的诱导极化所满足的运动方程。并通过在一些不同激光强度下该运动方程所具有的不同形式, 对二能级系统的高次谐波的产生过程进行了动力学分析。

关键词 高次谐波, 非线性耦合, 诱导极化。

1 引 言

原子中高次谐波的产生是强激光脉冲与原子相互作用中的重要物理现象^[1~4]。当强激光脉冲与稀薄气体原子相互作用时, 会产生频率为激光频率奇数倍的相干谐波辐射, 实验上通过波长为 1064 nm 的 30 ps 脉宽的激光脉冲与稀薄气体的相互作用已观测到 100 多次的谐波^[2], 并且发现在激光频率远小于原子电离频率的情况下产生的谐波辐射谱具有一定的普适性: 最初几次的谐波强度会随次数的增加迅速衰减, 随后出现一个较平展的平台区域, 在该区域内各次谐波基本上具有相同的强度(即各次谐波的转换效率几乎是相同的), 最后在某一频率附近平台区终止, 更高次的谐波迅速地衰减为零。为解释原子高次谐波谱的这些特性, 人们提出了各种理论, 较为复杂的就是直接求解单(价)电子原子与激光脉冲相互作用的含时薛定谔方程^[3], 或是求解与时间无关的 Floquet 方程组^[4]。此外还有较为简化的理论模型, 如一维软库仑势模型^[5]、经典氢原子模型^[6]、强场中的二能级原子模型^[7, 8]、非谐振子模型以及三角势模型^[9, 10]等。

本文讨论了线偏振激光脉冲与二能级原子系统的相互作用, 通过非扰动方法导出了二能级原子的诱导极化的时间演化方程。该方程是一个含时的微积分方程, 描述的是一个具有极为复杂运动形式的非自洽系统, 并通过在不同极限情况下方程所具有的不同形式, 对二能级系统的高次谐波的产生过程进行了动力学分析。

2 理论描述

考虑在激光场下的二能级原子模型系统, $|g\rangle$ 和 $|a\rangle$ 分别为系统的基态和激发态, 能量分

别为 E_g 和 E_a , 并假设 $\mu_{gg} = \langle g | \mu | g \rangle = 0$, $\mu_{aa} = \langle a | \mu | a \rangle = 0$ (μ 为系统的偶极矩算符), 外场为线性极化场, $E(t) = E_0(t) \cos \omega t$ 。其中 $E_0(t)$ 为激光脉冲的包络, 在激光周期内是一个缓变量, 即 $E_0 \ll \omega E_0(t)$ 。在偶极近似下系统的哈密顿为

$$H = H_0 + H_{\text{int}} \quad (1)$$

其中 $H_0 = E_a | a \rangle \langle a | + E_g | g \rangle \langle g |$ 和 $H_{\text{int}} = E(t) \mu | a \rangle \langle g | + E(t) \mu | g \rangle \langle a |$ 分别为无扰动系统的哈密顿和激光与原子的偶极相互作用。系统任一时刻的状态 $|\Psi(t)\rangle$ 由含时薛定谔方程确定,

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\Psi(t)\rangle = (H_0 + H_{\text{int}}) |\Psi(t)\rangle \quad (2)$$

将 $|\Psi(t)\rangle$ 按系统本征态 $|g\rangle$ 和 $|a\rangle$ 做如下展开

$$|\Psi(t)\rangle = C_g(t) \exp(-iE_g t/\hbar) |g\rangle + C_a(t) \exp(-iE_a t/\hbar) |a\rangle \quad (3)$$

将(3)式代入薛定谔方程(2), 并利用本征态的正交归一性, 可得到

$$C_g(t) = -i \frac{E(t) \mu_{ag}}{\hbar} \exp(-i\omega t) C_a(t), \quad C_a(t) = -i \frac{E(t) \mu_{ag}}{\hbar} \exp(i\omega t) C_g(t) \quad (4)$$

其中 $\omega = (E_a - E_g)/\hbar$ 为两能级的跃迁频率。系统的高次谐波谱通常定义为

$$|\tilde{X}(\omega)|^2 = \left| \int_0^\infty x(t) \exp(i\omega t) dt \right|^2 \quad (5)$$

其中 $x(t) = \langle \Psi(t) | \mu | \Psi(t) \rangle$ 为系统的诱导极化, 所以对系统高次谐波产生过程的动力学分析实际上可转化成对系统诱导极化 $x(t)$ 的动力学行为的分析。值得一提的是, (5) 式所示的诱导极化实际上是量子统计平均后的结果, 与经典理论中的系综平均相对应, 所以 $x(t)$ 的傅里叶变换是宏观上可观测的物理量。为了求解 $x(t)$, 首先要建立 $x(t)$ 所满足的运动方程。将(3)式代入 $\langle \Psi(t) | \mu | \Psi(t) \rangle$, 并取偶极矩矩阵元 $\mu_{ag} = \langle a | \mu | g \rangle$ 为实数 (即 $\mu_{ag} = \mu_{ga}$), 可将 $x(t)$ 表示成

$$x(t) = \mu_{ag} [C_g^*(t) C_a(t) \exp(-i\omega t) + C_g(t) C_a^*(t) \exp(i\omega t)] \quad (6)$$

上式对 t 求导, 并利用方程(4)式及其复共轭式, 化简整理后得

$$\dot{x}(t) = \omega y(t) \quad (7)$$

$$\text{其中 } y(t) = -i\mu_{ag} [C_g^*(t) C_a(t) \exp(-i\omega t) - C_g(t) C_a^*(t) \exp(i\omega t)] \quad (8)$$

再将 $y(t)$ 式对 t 求导, 得到

$$\dot{y}(t) = -\omega x(t) + \Omega(t) z(t) \cos \omega t \quad (9)$$

$$\text{其中 } \Omega(t) = \frac{2E_0(t) \mu_{ag}}{\hbar}, \quad z(t) = \mu_{ag} [C_a(t) C_a^*(t) - C_g(t) C_g^*(t)] \quad (10)$$

采用同样的方法可以得到

$$\dot{z}(t) = -\Omega(t) y(t) \cos \omega t \quad (11)$$

所以由 $x(t)$ 、 $y(t)$ 和 $z(t)$ 三个实变量构成下列闭合的耦合方程组

$$\dot{x}(t) = \omega y(t), \quad \dot{y}(t) = -\omega x(t) + \Omega(t) z(t) \cos \omega t, \quad \dot{z}(t) = -\Omega(t) y(t) \cos \omega t \quad (12)$$

在上述的演算过程中并未做过任何近似, 所以方程组(12)是对薛定谔方程的精确描述。这样便将含时薛定谔方程(偏微分方程)的求解转换成对耦合微分方程组的求解。由(12)式可看出: 方程组描述的是一个非自治系统, 在通常情况下是无法得到解析解的。由于只对变量 $x(t)$ 感兴趣, 所以可将方程组约化成 $x(t)$ 的高阶微分方程。将(12)式中第(1)(3)式合并消去

变量 $y(t)$, 直接积分得 $z(t) = z(t_0) - \omega^{-1} \int_{t_0}^t \Omega(t') \dot{x}(t') \cos \omega t' dt'$, 根据 $z(t)$ 的定义, 其初值

由系统的粒子布局确定, 设初始($t_0 = 0$)时系统位于基态, 即 $C_a(0) = 0$, $C_g(0) = 1$, 并取 μ_{ag}

$= 1$, 则 $z(0) = -1$, $x(0) = 0$, 因此

$$z(t) = -1 - \eta(t)x(t) \cos \omega t + \omega_0^{-1} \int_0^t x(t') [\Omega(t') \cos \omega t' - \Omega(t') \omega \sin \omega t] dt' \quad (13)$$

其中 $\eta(t) = \Omega(t)/\omega_0$ 。再将(12)式中前两式合并消去 $y(t)$, 并将(13)式代入消去变量 $z(t)$, 经整理后得到

$$x''(t) + \omega_0^2 [1 + \eta^2(t) \cos^2 \omega t] x(t) = -\Omega(t) \omega_0 \left\{ 1 - \omega_0^{-1} \int_0^t x(t') [\Omega(t') \cos \omega t' - \Omega(t') \omega \sin \omega t] dt' \right\} \cos \omega t \quad (14)$$

上式就是变量 $x(t)$ 所满足的运动方程, 由该方程不难看出以下几点:

1) 由变量 $x(t)$ 描述的系统是一非自治系统, 该系统的运动形式不仅直接与外场有关, 而且其基本特性也由于外场的影响而随时间在改变, 如其本征频率在 $(\omega_0 \sim \sqrt{\omega_0^2 + \Omega^2})$ 范围内随时间周期性变化, 因此该系统具有极为复杂的运动形式。

2) 外驱动力由两项组成: 第一项即为通常的准周期变化力 $\Omega(t) \omega_0 \cos \omega t$ 。其幅度 $\Omega(t) \omega_0$ 正比于 \sqrt{I} (I 为激光强度)。第二项作用力是一种随时间积累的力, 与系统的历史状态有关 (即具有一定的记忆性), 因此在通常情况是一种非周期力, 其大小正比于 $\Omega^2(t) \propto I$ 。

3) 在光强不是很强 [$\Omega(t) < 1$] 的情况下, 第一项的准周期力起主要作用 (因为通常 $\omega_0 \gg \omega$), 而在超强光强的作用下, 第二项的非周期力起着主要作用。因此在前一种情况下系统的运动还具有一些振荡的形式, 而在后一种情况下系统的运动很难说还具有振荡的运动形式。

3 特殊情况的分析

由于脉冲包络 $E_0(t)$ 要在几十个激光周期长的时间范围内才有较明显的变化, 而通常情况下 $\omega \ll \omega_0$, 即激光周期远远大于系统的特征时间, 所以在系统的特征时间范围内, 激光脉冲的包络可视为不随时间变化的量, 因此在(14)式中令 $\Omega(t) = 0$, 得

$$x''(t) + \omega_0^2 [1 + \eta^2 \cos^2 \omega t] x(t) = -\Omega \omega_0 [1 + \epsilon \Omega \int_0^t x(t') \sin \omega t' dt'] \cos \omega t \quad (15)$$

其中 $\epsilon = \omega/\omega_0 \ll 1$ 。以下分别在几种特殊情况下对方程(15)的解进行讨论。

1) 无外场的情况 ($\Omega = 0$)。当 $\Omega = 0$ 时, 方程(15)可简化为

$$x''(t) + \omega_0^2 x(t) = 0 \quad (16)$$

根据系统初始位于基态的假设, 方程(16)式的初始条件是 $x(0) = 0$, $x'(0) = 0$, 所以在系统未受到扰动时, 只有 $x(t) = 0$ 的解。即使系统受到外界扰动, 也是以频率 ω_0 做简谐运动, $x(t)$ 的傅里叶变换是频率位于 ω_0 的 δ 函数。所以不会有谐波出现。

2) 弱场极限 ($\Omega < \omega$)。由于 $\epsilon = \omega/\omega_0 \ll 1$, 所以 $\eta = \Omega/\omega_0 \sim 0$, 这时方程(15)变为在缓变外场作用下的谐振子方程

$$x''(t) + \omega_0^2 x(t) = -\Omega \omega_0 \cos \omega t \quad (17)$$

由于系统远离共振区 ($\omega \ll \omega_0$), 系统以外场频率 ω 作简谐运动, 所以 $x(t)$ 的频谱是频率位于 ω 的 δ 函数。也就是说在弱场极限的情况下只会出现基频波, 如图 1(a) 所示。

3) 强场情况 ($\omega < \Omega < \omega_0$)。由于在该情况下参量 η 并非远远小于 1, 所以位于方程(15)左边的 $\eta^2 \cos^2 \omega t$ 项不能被忽略, 这是因为尽管该项仍然小于 1, 但它的存在从根本上改变了

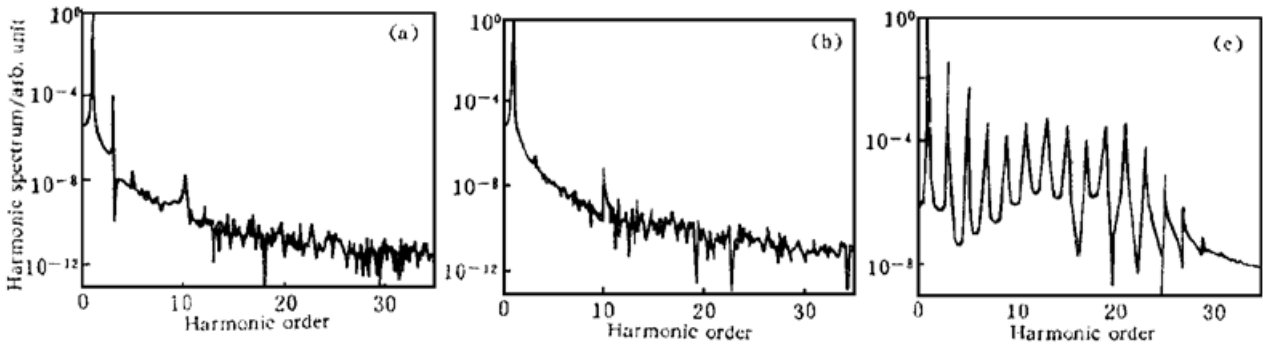


Fig. 1 Harmonic intensity spectrum, $|X(\omega)|^2$, numerically computed with parameters $\omega = 0.1\omega_b$ for the square pulse with three different intensities, (a) $\Omega = 0.05\omega_b$, (b) $\Omega = 0.3\omega_b$ and (c) $\Omega = 2.0\omega_b$

系统的运动特性, 使系统成为一个非线性系统。但方程右边第二项的积分力与第一项(准)周期力相比仍可以忽略, 这是因为 $|x(t)| < 1$,

$$\left| \epsilon\Omega \int_0^t x(t') \sin \omega t dt' \right| < \epsilon\Omega \left| \int_0^t \sin \omega t dt' \right| < \eta |\cos \omega t| < \eta$$

故第二项非周期力与第一项周期力之比的绝对值不会超过 $\eta = \Omega/\omega_b (< 1)$ 。(15)式简化为

$$x''(t) + \omega_b^2 [1 + \eta^2 \cos^2 \omega t] x(t) = -\Omega\omega_b \cos \omega t \quad (18)$$

由于外场频率 $\omega \ll \omega_b$, 故外场及其产生的非线性项均可视为随时间缓变的量, 由于非线性项的计入, 系统不再是单一频率的周期运动, 其中包含了一些低次谐波成分。所以其谐波谱不会出现高次谐波谱中所具有的平台, 其谐波强度随级次增加而迅速衰减, 如图 1(b) 所示。

4) 超强场极限 [$\omega \ll \omega_b \leq \Omega$]。在这种情况下, 由于光场极强, 使得方程中包含 Ω 的项成为影响系统动力学行为的主要项, 方程不能做任何化简。系统是一个强非线性系统, 不再具有谐振子的任何特性。这时的频谱显示出了强场中原子高次谐波谱的特性: 最初几次谐波强度会随级次的增加快速衰减, 随后出现较平缓的区域, 最后在 $N_{\max} \sim \Omega/\omega_b$ 级次附近截止, 如图 1(c) 所示。

4 计算结果及结论

图 1(a)、图 1(b)、图 1(c) 是在不同的脉冲强度下根据方程(12) 计算出的高次谐波谱 $|X(\omega)|^2$, 脉冲长度等于十个激光周期, 前三个周期为场强的上升阶段(按正弦函数形式上升), 随后的 7 个周期场强恒定。与其相应的拉比频率 Ω 分别为 $0.05\omega_b$ [图 1(a)]、 $0.3\omega_b$ [图 1(b)] 和 $2.0\omega_b$ [图 1(c)], 激光频率 $\omega = 0.1\omega_b$ 。图 1 是对后 7 个激光周期的 $x(t)$ 进行傅里叶变换后的 $|X(\omega)|^2$ 。不难看出: 在弱场($\Omega < \omega_b$) 和场强不太强($\omega < \Omega < \omega_b$) 的情况下不会出现高次谐波谱, 即频谱中没有出现平台区和截止频率, 只有在超强场强($\omega_b < \Omega$) 的情况下, 才会出现高次谐波谱, 截止频率大约出现在 $N_{\max}\omega_b$ 附近, 这些均与上节分析的结果一致。需要指出的是在图 1(a) 和图 1(b) 中 $10\omega_b$ 处的峰不是诱导极化产生的高次谐波, 而是系统本身共振($\omega_b = 10\omega_b$) 产生的, 可通过增加脉冲长度(延长作用时间)来消除, 但这样会增加计算的时间。

由以上的分析和数值计算的结果不难看出: 二能级模型原子与激光相互作用而产生的诱导极化的动力学行为可由一个与外场有着复杂耦合形式的受迫振荡系统(非自治系统)来描述。因此二能级模型原子的高次谐波的产生过程可以通过该系统在不同光强情况下的动力学

行为来模拟。在外场极弱的情况下,系统与外场的耦合是线性的,所以系统以外场频率作有规的周期运动,因此频谱中只有基频成分。当光场逐渐增强时,系统与外场的耦合也由线性转变成弱非线性耦合,其运动的频谱中除了基频外,还包含有低次谐波成份,所以最初几次的谐波相继出现。由于非线性耦合还很弱,谐波的强度会随级次的增加而迅速衰减。当光场进一步增强时系统与外场的耦合成为一种强非线性耦合,这时系统已变为混沌系统,一些实验上观测到的高次谐波的普遍特性,如平台区和截止频率也都相继出现。所以二能级原子(量子系统)中的高次谐波的产生(指谐波谱中出现了明显的平台区)往往对应于相应的经典(振荡)系统中由于与外场有极强的非线性耦合而进入混沌状态。

参 考 文 献

- [1] A. L'Huillier, X. L. Li, L. A. Lompré *et al.*, Propagation effects in high-order harmonic generation in rare gases. *J. Opt. Soc. Am. (B)*, 1990, **7**(4) : 527~ 536
- [2] J. J. Macklin, J. D. Kmetec, C. C. Gordon, High-order harmonic generation using intense femtosecond pulse. *Phys. Rev. Lett.*, 1993, **70**(6) : 766~ 769
- [3] J. L. Krause, K. J. Schafer, K. C. Kulander, Calculation of photoemission from atoms subject to intense laser fields. *Phys. Rev. (A)*, 1992, **45**(7) : 4998~ 5010
- [4] R. M. Potvliege, R. Shakeshaft, Multiphoton processes in an intense laser field: Harmonic generation and total ionization rates for atomic hydrogen. *Phys. Rev. (A)*, 1989, **40**(6) : 3061~ 3079
- [5] V. C. Reed, K. Burnett, Loss of harmonic generation in intense laser fields. *Phys. Rev. (A)*, 1992, **46**(1) : 424~ 429
- [6] G. Bandarage, A. Maquet, T. Menis *et al.*, Harmonic generation by laser-driven classical hydrogen atoms. *Phys. Rev. (A)*, 1992, **46**(1) : 380~ 390
- [7] L. Plaja, L. Roso-Franco, Adiabatic theory for high-order harmonic generation in a two-level atom. *J. Opt. Soc. Am. (B)*, 1992, **9**(12) : 2210~ 2213
- [8] A. E. Kaplan, P. L. Shkolnikov, Superdressed two-level atom: very high harmonic generation and multiresonances. *Phys. Rev. (A)*, 1994, **49**(2) : 1275~ 1280
- [9] Ph. Balcou, A. L'Huillier, D. Escande, High-order harmonic generation processes in classical and quantum anharmonic oscillators. *Phys. Rev. (A)*, 1996, **53**(5) : 3456~ 3468
- [10] S. Cocke, L. E. Reichl, High-harmonic generation in a driven triangular well: The implications of chaos. *Phys. Rev. (A)*, 1996, **53**(3) : 1746~ 1750

Dynamic Analysis of the High-Order Harmonics Generation Process in Two-Level System

Qu Weixing Xu Zhizhan Yu Wei

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, The Chinese of Academy Sciences, Shanghai 201800)

(Received 8 November 1996; revised 28 February 1997)

Abstract The motion equation satisfied by an induced polarization of a two-level atom interacting with laser pulse is derived by using a nonperturbation method. And the process of high-order harmonic generation in the two-level system are analyzed dynamically for different forms of the equation at different laser intensities.

Key words high-order harmonics, nonlinear couple, induced polarization.