锂原子强场电离中的拉比振荡研究

王 顺

仲恺农业工程学院自动化学院 广东广州

【摘要】本文通过精确数值求解全维含时薛定谔方程和使用 Tóth 等人提出的三态理论模型，研究了锂原子在强激光脉冲作用下的电离过程中的拉比振荡现象。全维方程的计算可以产生明显的单光子拉比振荡，并持续数个周期，证明了我们的全维计算方法的精确可靠。三态模型的计算从两个不同的角度实现了双光子拉比振荡。但是，这种双光子拉比振荡在全维量子计算中无法复现，表明此时三态模型是失效的，Tóth 等人提出的利用光电子能谱中的动态干涉图样探测电离过程中的拉比振荡的方案也是不可行的。

【关键词】拉比振荡；动态干涉；强场电离

【基金项目】广州市基础研究计划基础与应用基础研究项目（2023A04J2037）

【收稿日期】2025 年 2 月 15 日 【出刊日期】2025 年 3 月 12 日 【DOI】10.12208/j.pstr.20250004

Investigation of Rabi oscillations in strong-field ionization of atomic lithium

Shun Wang

School of Automation, Zhongkai University of Agriculture and Engineering, Guangzhou, Guangdong

【**Abstract**】In this Letter, Rabi oscillations in the ionization of lithium atoms subject to strong laser pulses are studied by accurately numerically solving the full-dimensional time-dependent Schrödinger equation and by using the three-state theoretical model Tóth *et al*. proposed. Calculations of the full equation produce pronounced single-photon Rabi oscillations, which last several cycles, demonstrating that our method for the full-dimensional calculations is precise and reliable. Calculations of the three-state model realize the double-photon Rabi oscillations from two distinct perspectives. However, this type of double-photon Rabi oscillations cannot be reproduced in the full-dimensional quantum calculations, proving that the three-state model is invalid here, and that the scheme devised by Tóth *et al*. for probing the Rabi oscillations in the ionization through the dynamic interference patterns in the photoelectron energy spectra is infeasible.

【**Keywords**】Rabi oscillation; Dynamic interference; Strong-field ionization

强激光与原子分子相互作用中的电子相干动力学是现代物理中的一个重要课题[1-4]。除氢原子之外的所有原子和分子内部都有多个电子，故多电子相互作用不可避免。但在很多情况下，核心物理过程仍由单电子的行为决定，单活跃电子近似依然是广泛使用的计算方法[5-6]。在强激光脉冲的作用下，单电子能级会随着脉冲强度的变化产生交流 Stark 移动[7]，从而显著的影响相关物理过程。近期，与电子能级的交流 Stark 移动有关的强场电离现象，比如 Freeman 共振[8]和动态干涉，被大量的研究[9-17]。类似于 Freeman 共振，拉比振荡是另一种能级间电子布居的共振转移的现象，描述了二能级系统在周期性外部驱动场的作用下电子布居的周期性变化[18-21]。最近，Tóth 等[22]提出了一种利用动态干涉现象追踪探测原子电离中的拉比振荡的方案。他们建立了一种简化的三态模型，把能级间的双光子耦合和交流 Stark 能移都包括进去。结果发现，光电子能谱的动态干涉结构的非对称性、移动和分裂都反映了双光子拉比频率和能级的动态 Stark 能移。进一步，他们还通过解析分析证实了数值计算的结果。在本文中，我们通过严格数值求解全维含时薛定谔方程和分析 Tóth 等人的三态模型，进一步研

究锂原子强场电离中的拉比振荡现象。特别的，我们通过全维精确计算，对上述三态模型和利用动态干涉探测拉比振荡的方案是否可靠进行验证。除非另加说明，本文都使用原子单位制。

需要求解的全维含时薛定谔方程可写为

$$i\frac{\partial}{\partial t}\psi(\boldsymbol{r},t)=\left[-\frac{1}{2}\nabla^2+V(\boldsymbol{r})-i\boldsymbol{A}(t)\cdot\nabla\right]\psi(\boldsymbol{r},t) \quad (1)$$

其中，$\psi(\boldsymbol{r},t)$为单电子的波函数，$\boldsymbol{A}(\mathrm{t})$为激光脉冲电场的矢势，可写为$\boldsymbol{A}(\mathrm{t})=\boldsymbol{A}_0 g(t)\sin\omega t(\boldsymbol{A}_0$是常矢量，$g(t)$是脉冲的包络函数，$\omega$是电场的振荡频率)；$-i\boldsymbol{A}(\mathrm{t})\cdot\nabla$表示激光场与电子之间的相互作用能在速度规范下的形式，$V(\mathbf{r})$表示单活跃电子近似下的无外场时的电子等效势能。本文采用广泛使用的Klapisch模型势[23]：

$$V(\boldsymbol{r})=-\frac{1}{r}\left[1+(Z-1)e^{-\alpha r}+Cre^{-\beta r}\right] \quad (2)$$

式中，Z为原子核的总电荷数，即对锂原子取$Z=3$；α、β和C为常数，其值取自文献[24]：$\alpha=7.90875,\beta=3.90006,C=10.321$。为了数值求解全维含时薛定谔方程，我们需要把波函数用球谐函数$Y_l^m(\theta,\varphi)$展开为

$$\psi(\boldsymbol{r},t)=\sum_{lm}\frac{R_{lm}(r,t)}{r}Y_l^m(\theta,\varphi) \quad (3)$$

从而把三维微分方程转化为关于径向函数$R_{lm}(r,t)$的一维微分方程，大大简化了计算难度。径向坐标的离散化采用高效的有限元离散变量表示法[25-27]。波函数的含时传播则采用近年提出的先进的分裂Lanczos算法。我们还使用了波函数分裂技术[28]来避免波函数在求解空间边界处的数值反射。另外，计算程序中引入了自动确定时间传播步长的机制，即分别用一个猜测的步长进行一步传播和用这个步长的一半进行两步传播，直至两种传播之间的误差小于给定数值为止。以上各种技术保证了计算程序的高效和精确。

为了测试全维量子程序是否可以精确地描述锂原子电离中的拉比振荡，我们计算了在峰值光强为3.2×10^{11} W/cm^2、载波波长为676 nm、全长为$T=20$个光学周期、包络为正弦平方型的激光脉冲的作用下锂原子的电离。此时，脉冲的包络函数取

$$g(t)=\sin^2\frac{\pi(t+T/2)}{T},-T/2<t<T/2 \quad (4)$$

t取其余值时，$g(t)=0$。波长为676 nm时，光子的能量约等于锂原子2s和2p能级之间的能量差，有利于诱导这两个能级间的单光子拉比振荡。四个典型束缚态能级的电子布居随时间的变化关系如图1所示。可以看到，2s和2p能级之间呈现出典型的拉比振荡，且一共完成了2个完整的振荡。两次振荡结束后，2p态的电子布居数降低接近为零，而2s态的电子布居数依然很大，接近0.9。这说明，在这样的激光参数下，锂原子的电离率非常低。如果使用更长的激光脉冲，则可以观察到更多个完整的拉比振荡周期。另外，还可以看到，3s和3d能级的电子布居也呈周期性的振荡，但这两个能级的电子占据非常低。其原因是，这两个能级与2s能级之间的能量差并不接近于光子能量的整数倍，电子从2s能级往这两个能级的跃迁并不是共振跃迁。我们的计算结果与文献中报道的含时密度泛函理论计算的结果相符的很好[29]。通过这个算例，可以看到，我们的全维量子程序可以有效且正确地计算出锂原子电离中束缚态能级之间的拉比振荡。此外，我们还使用更大波长的激光脉冲，通过计算寻找2s与3d以及2s与3s能级间可能的双光子拉比振荡。计算结果表明，锂原子能级间的双光子拉比振荡难以激发，仅能持续大约半个周期。这也与含时密度泛函的计算结果高度相符[29]。

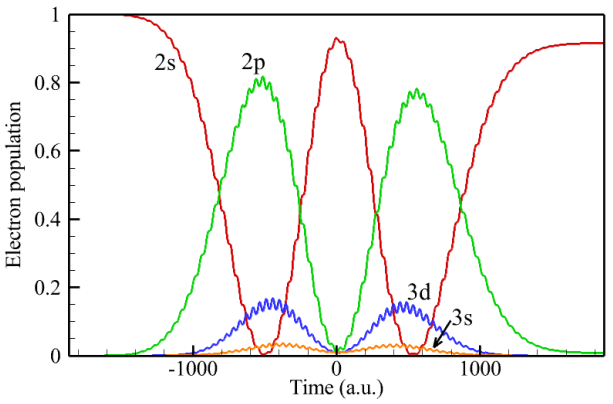

图1 求解全维方程所得的锂原子强场电离中4个典型能级的电子布居数随时间变化的关系。具体激光参数见文字

下面我们使用Tóth等人的三态模型[22]，研究锂原子2s态与4s态之间的可能的双光子拉比振荡，从两个不同的方面展示出模型预言的拉比振荡。然后，再通过数值求解全维方程，验证该模型是否成立。该三态模型仅考虑了锂原子2s态、4s态和连续态之间的耦合。若$c_I(t)$，$c_R(t)$和$c_\varepsilon(t)$分别表示在t时刻电子处于这三个态的几率幅，则它们随时间的演化满足下式：

$$i\begin{bmatrix}\dot{c}_I(t)\\ \dot{c}_R(t)\\ \dot{c}_\varepsilon(t)\end{bmatrix}=\begin{bmatrix}S_I\ (t) & \Omega_2^*\ (t) & 0\\ \Omega_2\ (t) & \Delta+S_R\ (t) & -\frac{i}{2}\Gamma\ (t)\\ 0 & \Omega_1\ (t) & \Delta+\delta+U_p\ (t)\end{bmatrix}\begin{bmatrix}c_I(t)\\ c_R(t)\\ c_\varepsilon(t)\end{bmatrix} \quad (5)$$

其中，$S_I(t)$和$S_R(t)$表征2s和4s态的动态 Stark 能移，$\Omega_1(t)$表征束缚态与连续态间的单光子耦合强度，$\Omega_2(t)$表征两束缚态间的双光子拉比频率，Δ是振荡的双光子失谐量，δ是单光子跃迁的失谐量；$U_p(t)$则为有质动力学势，可以用来近似连续态的动态 Stark 能移。具体参数与 Tóth 等[22]保持一致。为了与将来可能的实验研究作对比，我们采用高斯型激光脉冲，即包络函数取

$$g\ (t)\ =\exp\left[-2\ln(2)\left(\frac{t}{\tau}\right)^2\right] \quad (6)$$

式中，τ为脉冲的半高全宽。在数值计算中，我们设定脉冲的总长度等于 5τ。经过验证，这个长度足以保证计算结果的收敛。计算使用的激光参数如下：半高全宽$\tau=100$ fs，峰值光强为$10^{11.5}$ W/cm^2，光子频率为 2.169 eV（对应于两束缚态能量之差的一半）。Tóth 等采用了长达 1000 fs 的脉冲。为了减小计算量，我们采用了较短的激光脉冲。根据 Tóth 等的分析[22]，适当减小脉冲长度并不会改变三态模型得到的结论。

按照上述参数对式(5)进行数值计算，可得到锂原子电离过程中 2s 与 4s 能级的电子布居数随时间的变化，如图 2 所示。其中，蓝色的线表示连续态的电子布居数随时间的变化，即总电离率随时间的变化。激光脉冲结束后，总电离率仅仅约为 0.3，这意味着电子布居在束缚态的几率依然很大。因此我们可以观察到非常明显的拉比振荡现象，一共完成了 7 个周期的振荡。我们还观察到，当拉比周期正好完成时，总电离率随时间的变化趋于平缓；而当拉比周期完成一半时，总电离率随时间的变化最为陡峭。这是因为，拉比振荡刚好完成时，电子大概率布居在基态上，完成一半时则大概率布居在 4s 态上，而电子从 4s 态电离到连续态要比从基态电离容易的多。

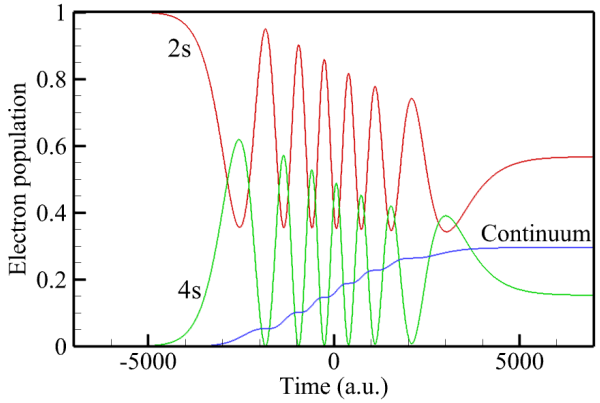

图 2 求解三态模型所得的锂原子强场电离中 2s 和 4s 能级以及连续态的电子布居数随时间变化的关系

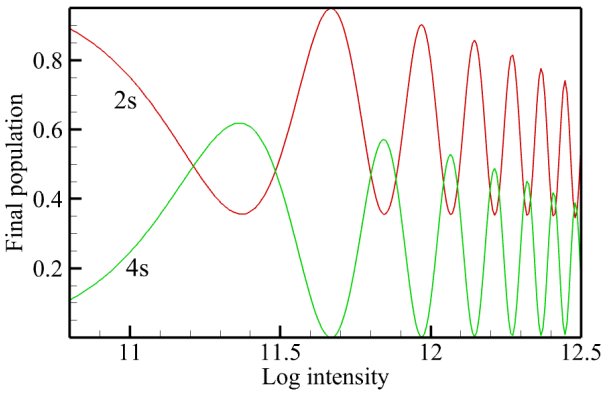

图 3 求解三态模型所得的锂原子强场电离中 2s 和 4s 能级的末态电子布居数随峰值激光强度的对数的变化关系

束缚态电子布居的拉比振荡可表现在两个方面。一方面是图 1 和图 2 所示的，在单一脉冲作用下，两能级的电子布居数随着时间进行的周期性的振荡。另一方面，如果使用不同峰值强度（其余参数不变）的激光脉冲，记录脉冲结束后两能级的最终电子布居数，则末态电子布居会随着峰值强度的变化而做振荡。为了分析这一特点，我们利用三态模型计算了锂原子在不同峰值强度的激光脉冲作用下的电离，峰值强度取值范围为 $10^{10.5}$ 至 $10^{12.5}$ W/cm^2。激光脉冲结束之后的 2s 和 4s 态的电子布居与脉冲的峰值强度之间的关系如图 3 所示。横轴中的脉冲强度取了对数，即数据 11.5 表示光强为 $10^{11.5}$ W/cm^2。很明显，这两个能级的末态电子布居数随着激光强度的

变化而呈现出周期性的振荡。这便是拉比振荡的另一种表现形式。产生这种现象的原因是，各能级的动态 Stark 能移取决于激光强度，而不同峰值强度的激光脉冲造成不同的能级随时间的变化关系，进而使得发生共振的时刻不同。若脉冲结束时，恰好完成整数个拉比振荡周期，则 2s 态的电子布居达到峰值；若恰好完成半奇数个振荡周期，则布居达到谷值。如此便形成了两能级末态电子布居随峰值光强的周期振荡。

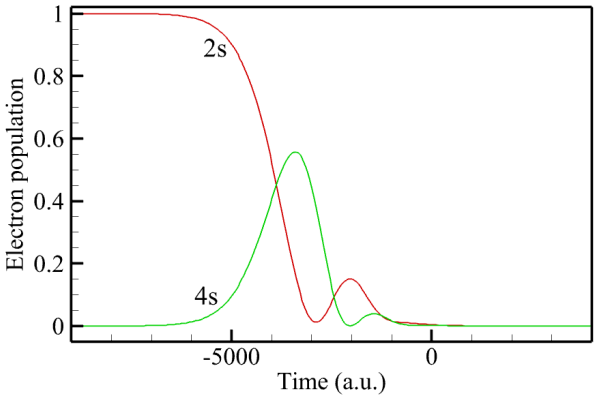

图 4　求解全维方程所得的锂原子强场电离中 2s 和 4s 能级的电子布居数随时间变化的关系。具体激光参数见文字

图 2 和图 3 所示的基于模型的计算结果显示，锂原子的 2s 和 4s 态之间存在双光子共振跃迁，其电子布居表现出典型的拉比振荡。Tóth 等通过模型计算和解析论证，认为这种共振跃迁的特点可以从光电子能谱的动态干涉图样中读出[22]。比如，某个峰值光强下完成的拉比振荡周期数恰好等于该光强下动态干涉图样中的次峰个数。然而，这种三态模型计算和解析分析是否可靠的反映了真实的物理过程，尚缺乏精确第一性原理的验证。数值求解全维含时薛定谔方程是目前基于第一性原理的最精确的计算手段，可以得到可与实验测量相比拟的结果。我们使用全维量子程序计算了锂原子的电离，所使用的激光参数与图 2 中的一致。计算所得的 2s 和 4s 能级电子布居数随时间的变化关系如图 4 所示。可以看到，这两个能级之间的拉比振荡十分微弱，且只完成了一个完整的振荡周期。造成这一现象的原因是，在强激光的作用下，束缚态电子的消耗十分厉害。从图中可以看到，在激光的峰值到达之前，电离几乎已经完成，束缚态电子几近耗尽。束缚态电子的强烈消耗使得没有足够多的时间完成数个完整的拉比震荡。由于全维量子计算更真实的反映了实际发生的物理过程，我们可以断定，上述简化三态模型本质上是失效的。该模型的优点是分析简单，只考虑了三个态之间的耦合，容易进行数值计算；若建模合理，则容易分析出物理本质。但是，全维量子计算结果表明，三态模型并没有抓住物理本质，没有正确估计共振能级及连续态间的耦合，并忽视了其余束缚态的作用，因而得到错误的结论。Tóth 等提出的从能谱的干涉图样提取电离过程中共振耦合的有关信息的方案因此也是行不通的。

本文使用数值求解全维含时薛定谔方程和求解简化三态模型两种方法研究了锂原子强场电离中的拉比振荡。全维量子计算产生了典型的单光子拉比振荡现象，其计算结果与文献中的基于第一性原理的其他量子计算方法的结果高度吻合，证明了我们的方法的真实可靠。通过求解三态模型，我们从两个不同的角度复现了双光子拉比振荡现象。特别的，为了验证三态模型以及利用动态干涉探测拉比振荡的方案是否可靠，我们使用全维量子计算研究了上述双光子振荡。结果显示，全维计算的结论与三态模型的结论完全不同。因此，至少在本文讨论的激光参数范围内，三态模型是不可靠的，Tóth 等提出的探测方案也是不可行的。

参考文献

[1] T. Brabec and F. Krausz, Rev. Mod. Phys. 72, 545 (2000).

[2] F. Krausz and M. Ivanov, Rev. Mod. Phys. 81, 163 (2009).

[3] C. I. Blaga, F. Catoire, P. Colosimo, G. G. Paulus, H. G. Muller, P. Agostini, and L. F. DiMauro, Nat. Phys. 5, 335 (2009).

[4] M. Chini, X. Wang, Y. Cheng, H. Wang, Y. Wu, E. Cunningham, P.-C. Li, J. Heslar, D. A. Telnov, S.-I. Chu, and Z. Chang, Nat. Photon. 8, 437 (2014).

[5] P. Agostini, F. Fabre, G. Mainfray, G. Petite, and N. K. Rahman, Phys. Rev. Lett. 42, 1127 (1979).

[6] D. A. Tumakov, D. A. Telnov, G. Plunien, and V. M. Shabaev, Phys. Rev. A 100, 023407 (2019).

[7] N. B. Delone and V. P. Krainov, Phys. Usp. 42, 669 (1999).

[8] R. R. Freeman, P. H. Bucksbaum, H. Milchberg, S. Darack, D. Schumacher, and M. E. Geusic, Phys. Rev. Lett. 59, 1092 (1987).

[9] P. Ludowise, M. Blackwell, and Y. Chen, Chem. Phys. Lett. 258, 530 (1996).

[10] M. Fushitani, C.-N. Liu, A. Matsuda, T. Endo, Y. Toida, M. Nagasono, T. Togashi, M. Yabashi, T. Ishikawa, Y. Hikosaka, T. Morishita, and A. Hishikawa, Nat. Photon. 10, 102 (2016).

[11] M. Nakano, T. Otobe, and R. Itakura, Phys. Rev. A 95, 063404 (2017).

[12] J. Zhu, Phys. Rev. A 103, 013113 (2021).

[13] M. Wickenhauser, X. M. Tong, and C. D. Lin, Phys. Rev. A 73, 011401(R) (2006).

[14] P. V. Demekhin and L. S. Cederbaum, Phys. Rev. Lett. 108, 253001 (2012).

[15] P. V. Demekhin and L. S. Cederbaum, Phys. Rev. A 88, 043414 (2013).

[16] M. Baghery, U. Saalmann, and J. M. Rost, Phys. Rev. Lett. 118, 143202 (2017).

[17] A. Tóth, S. Borbély, and A. Csehi, Phys. Rev. A 108, L061101 (2023).

[18] I. I. Rabi, Phys. Rev. 51, 652 (1937).

[19] C. Kiehl, D. Wagner et al., Phys. Rev. Research 5, L012002 (2023)

[20] X. T. Nguyen, K. Winte, et al., Nature Communications 14, 1047 (2023).

[21] A. A. Elarabi and A. Csehi, Phys. Rev. A 111, 033107 (2025).

[22] A. Tóth and A. Csehi, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 54, 035005 (2021).

[23] M. Klapisch, Comput. Phys. Commun. 2, 239 (1971).

[24] S. Magnier, M. Aubert-Frécon, J. Hanssen, and C. L. Sech, J. Phys. B 32, 5639 (1999).

[25] T. N. Rescigno and C. W. McCurdy, Phys. Rev. A 62, 032706 (2000).

[26] B. I. Schneider and L. A. Collins, J. Non-Cryst. Solids 351, 1551 (2005).

[27] M. J. Rayson, Phys. Rev. E 76, 026704 (2007).

[28] X. M. Tong, K. Hino, and N. Toshima, Phys. Rev. A 74, 031405(R) (2006).

[29] K. Nasiri Avanaki, D. A. Telnov, and S. I. Chu, Phys. Rev. A 94, 053410 (2016).

版权声明：©2025 作者与开放获取期刊研究中心(OAJRC)所有。本文章按照知识共享署名许可条款发表。
http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/

OPEN ACCESS