噪声修正的 X 射线放大自发辐射傍轴 Maxwell-Bloch 方程

Jeong-Wan Park,[1,*] Kwang-Je Kim,[1,2] 和 Ryan Lindberg[1]
[1] *Argonne National Laboratory, Lemont, IL 60439, USA*
[2] *University of Chicago, Chicago, IL 60637, USA*（日期：2023年5月9日）

我们提出了一种基于哈密顿量的三维理论，在傍轴近似下描述由 X 射线自由电子激光泵浦的 X 射线放大自发辐射（或超荧光）。其中包含种子场。若假设算符乘积可以因子化，则系综平均的海森堡方程将变为麦克斯韦-布洛赫方程；当受激辐射占主导时，这些方程是适用的。通过在原子相干性中加入随机噪声项来计入自发辐射，其大小由如下事实唯一确定：与某个原子相关的电场算符的正规序乘积的期望值不能因子化。我们建立的修正麦克斯韦-布洛赫方程重现了先前基于关联函数的一维理论的结果。

arXiv:2305.04653v1 [physics.atom-ph] 8 May 2023

通过内壳层光电离 [1–4] 以及强大的 X 射线自由电子激光器泵浦 [5–7] ，在原子介质中成功观测到瞬态增益，表明利用一种被称为超辐射 [8], 、超荧光 [9, 10], 或放大自发辐射（ASE）[11]的物理过程，有望实现 X 射线激光器。通过采用 X 射线谐振腔，可以在 X 射线激光振荡器（XLO）[12] 中提高基于放大自发辐射的 X 射线激光器的相干性和稳定性，这一方案与针对 X 射线自由电子激光振荡器（XFELO） [13, 14]所提出的设想一致。

光学波段的放大自发辐射已采用麦克斯韦-布洛赫方程（MBEs）进行研究，这些方程以各种临时方式纳入了自发辐射——综述请见 [15] 。这些方程也已用于 X 射线波段[3, 16–24]。然而，由于在 X 射线波长下，辐射的时间尺度与损耗和衰减过程的时间尺度相当，因此需要更准确地处理自发辐射。

在 [25], 中，建立了一种用于放大自发辐射的一维量子理论，其中三维效应通过一个很小的立体角参数化，该立体角表征了铅笔状的相互作用区域。从场算符和原子算符的海森堡运动方程出发，在不存在种子场的情况下，假设来自不同原子的算符乘积的期望值可以因子化，由此推导出一组关于二点关联函数的封闭方程。该理论既考虑自发辐射，也考虑受激辐射。

本文提出了一种基于哈密顿量的、包含种子场的三维放大自发辐射理论。通过采用傍轴近似，将海森堡运动方程约化为一种在结构上类似于 [25]中的一维方程的形式。随后，通过对算符乘积施加因子化条件，将系综平均算符方程约化为 [15] 麦克斯韦-布洛赫方程。然而，如此获得的麦克斯韦-布洛赫方程并不完整，因为来自同一原子的两个算符的乘积无法因子化。通过向原子添加一个随机相位项，可以解决这一问题。

相干性，其大小由光电流算符的平均值决定。修正的麦克斯韦-布洛赫方程包含自发辐射，并得到与 [25] 在一维极限下相符的二点关联函数。修正的麦克斯韦-布洛赫方程还预测了自发辐射正确的时间行为，即指数衰减。

设 Ω 为对应于每个原子的基态 $|g\rangle$ 与激发态 $|e\rangle$之间能量差的角频率，而 $a^\dagger{}_{\mathbf{k}\,s}$ 和 $a_{\mathbf{k},s}$ 分别是波矢$\mathbf{k}$、频率 $\omega_{\mathbf{k}}=ck$和偏振指标s对应的光子的产生算符和湮灭算符。我们引入原子算符

$$\sigma_+=|e\rangle\langle g|,\quad \sigma_-=|g\rangle\langle e|,\quad \sigma_z=|e\rangle\langle e|-|g\rangle\langle g|, \tag{1}$$

它们满足对易关系 $\left[\sigma_+^{(a)},\sigma_-^{(b)}\right]=\delta_{ab}\sigma_z$，$\left[\sigma_z^{(a)},\sigma_\pm^{(b)}\right]=\pm2\delta_{ab}\sigma_\pm$。我们假设电偶极跃迁矩阵元沿 x 方向，且为实数，其大小为 μ。位于原子 a 处、沿 x方向的正电场算符及其共轭为

$$E_+^{(a)}(t)=\sum_{\mathbf{k},s}\cos\vartheta_{\mathbf{k},s}\mathscr{E}_{\mathbf{k}}e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_a}a_{\mathbf{k},s}(t),\ E_-^{(a)}(t)=E_+^{(a)\dagger}(t), \tag{2}$$

其中，$\vartheta_{\mathbf{k},\ s}$ 表示 x 方向与s–偏振方向之间的夹角，$\mathscr{E}_{\mathbf{k}}=\sqrt{\frac{\hbar\omega_{\mathbf{k}}}{2\varepsilon_0 V}}$、 V表示量子化体积，$\mathbf{r}_a$ 表示原子 a的位置。全文均采用 [26]的记号和国际单位制（SI）单位。求解$a_{\mathbf{k},\ s}$ 的海森堡运动方程，并将其代入公式（2），可得

$$E_+^{(a)}(t)=\frac{i\hbar}{2\mu}\Gamma_{\rm sp}\sigma_-^{(a)}(t)+E_+^{\prime(a)}(t). \tag{3}$$

这里， $\Gamma_{\rm sp}=\frac{|\boldsymbol{\mu}|^2}{3\pi\varepsilon_0\hbar}\left(\frac{\Omega}{c}\right)^3$ 是自发辐射速率，而

$$E_+^{\prime(a)}(t)=\sum_{\mathbf{k},s}\cos\vartheta_{\mathbf{k},s}\left[\mathscr{E}_{\mathbf{k}}a_{\mathbf{k},s}(0)e^{-i\omega_{\mathbf{k}}t+i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_a}+i\frac{\omega_{\mathbf{k}}\mu}{2\varepsilon_0 V}\cos\vartheta_{\mathbf{k},s}\int_0^t dt'\sum_{b\neq a}e^{-i\omega_{\mathbf{k}}\left(t-t'\right)+i\mathbf{k}\cdot\left(\mathbf{r}_a-\mathbf{r}_b\right)}\sigma_-^{(b)}(t')\right]. \tag{4}$$

式（3）中的第一项源于在 Weisskopf-Wigner 近似 [26] 下对式（4）中被省略项$b=a$ 的求值。 σ 算符的海森堡运动方程为

$$\frac{d\sigma_-^{(a)}}{dt}=-\left(i\Omega+\frac{\Gamma_{\mathrm{sp}}}{2}\right)\sigma_-^{(a)}(t)-\frac{i\mu}{\hbar}\sigma_z^{(a)}(t)E_+^{\prime(a)}(t), \tag{5}$$

$$\begin{aligned}\frac{d\sigma_z^{(a)}}{dt}=&-2\Gamma_{\mathrm{sp}}\sigma_+^{(a)}(t)\sigma_-^{(a)}(t)\\&+\frac{2i\mu}{\hbar}\left[\sigma_+^{(a)}(t)E_+^{\prime(a)}(t)-E_-^{\prime(a)}(t)\sigma_-^{(a)}(t)\right].\end{aligned} \tag{6}$$

我们考虑这样一种情况：原子系统由发散角很小的 XFEL 辐射泵浦，从而形成长度为 L 、半径为 R 的“细铅笔”相互作用体积，其中 $R\ll L$。我们定义 z 为沿铅笔轴的坐标，横向坐标为 $\mathbf{x}=(x,y)$，因此位置矢量为$\mathbf{r}=(\mathbf{x}\ z)$。接着，在假设 $\lambda_\Omega\ll R\ll L$ 的条件下，引入 $k_\Omega=\Omega/c$ 和 $\lambda_\Omega=2\pi/k_\Omega$，并使用积分 $\frac{V}{8\pi^3}\int d^3\mathbf{k}$ 近似式 (4) 中关于 $\mathbf{k}$ 的离散求和。我们将根据其大小 $k=\omega_{\mathbf{k}}/c$ 和横向角$\boldsymbol{\phi}=(\phi_x,\phi_y)$ 来计算后者。在傍轴近似下，新旧变量之间的关系为$\mathbf{k}=k\left(\boldsymbol{\phi},1-\boldsymbol{\phi}^2/2\right)$，其中 $|\boldsymbol{\phi}|\ll 1$。式 (4) 中第二个非齐次项里的指数因子变为

$$e^{i\Phi+i\Delta\Phi+ik\left[\left(z_a-z_b\right)-c\left(t-t'\right)\right]}, \tag{7}$$

其中

$$\Phi=k_\Omega\left[\boldsymbol{\phi}\cdot\left(\mathbf{x}_a-\mathbf{x}_b\right)-\frac{\boldsymbol{\phi}^2}{2}\left(z_a-z_b\right)\right], \tag{8}$$

$$\Delta\Phi=\Delta k\left[\boldsymbol{\phi}\cdot\left(\mathbf{x}_a-\mathbf{x}_b\right)-\frac{\boldsymbol{\phi}^2}{2}\left(z_a-z_b\right)\right], \tag{9}$$

且 $\Delta k=k-k_\Omega$。

由于相互作用发生在原子跃迁频率 Ω 附近， k 积分的主要贡献来自区域 $\Delta k\ll k_\Omega$。因此，我们忽略$\Delta\Phi$，并在被积函数的其他所有位置用 $k\to k_\Omega$ 替代。 $\boldsymbol{\phi}$ 积分的主要贡献来自满足 $|\Phi|\lesssim\pi$ 的区域。根据方程 (8)，这对应于 $|\boldsymbol{\phi}|\lesssim\lambda_\Omega/2R$ 和$|\boldsymbol{\phi}|\lesssim\sqrt{\lambda_\Omega/L}$；从几何关系还可得 $|\boldsymbol{\phi}|\lesssim R/L$。

对于此处所研究的 X 射线放大自发辐射（ASE），角度的三个极限值均远小于 1，因此傍轴近似是成立的。由此可得

$$\int d^3\mathbf{k}\approx\int d^2\boldsymbol{\phi}\int_0^\infty k^2dk\approx\int d^2\boldsymbol{\phi}\int_{-\infty}^\infty k_\Omega^2 d\Delta k. \tag{10}$$

这里，我们忽略了沿着泵浦波相反方向传播的波，即沿 z 正方向传播的波。

$s=1$，2 的偏振矢量可近似视为分别平行于 x，y。因此，$\vartheta_{\mathbf{k},\,1}\approx 0$ 和 $\vartheta_{\mathbf{k},\,2}\approx\pi/2$，于是 $\Delta k-$积分变为 $\delta\left(z_a-z_b-c(t-t')\right)$，使得 t' 积分变得平凡。最后，我们沿用 [25] 的做法，引入与原子位置 b 相关的延迟时间 $\tau=t-z_b/c$，于是缓慢变化部分 $\tilde{E}_+^{(a)}(\tau)=e^{i\Omega\tau}E_+^{\prime(a)}$ 变为

$$\tilde{E}_+^{(a)}(\tau)=\tilde{E}_{+,in}^{(a)}(\tau)+\frac{3i\hbar\Gamma_{\mathrm{sp}}}{8\pi\mu}\sum_{z_b<z_a}\mathcal{G}(\mathbf{r}_a-\mathbf{r}_b)\tilde{\sigma}_-^{(b)}(\tau). \tag{11}$$

此处，

$$\mathcal{G}(\mathbf{r})=\int_{-\infty}^\infty d^2\boldsymbol{\phi}e^{i\frac{\Omega}{c}\left(\boldsymbol{\phi}\cdot\mathbf{x}-\frac{\boldsymbol{\phi}^2}{2}z\right)}=\frac{\lambda_\Omega}{iz}e^{i\frac{\pi\mathbf{x}^2}{\lambda_\Omega z}} \tag{12}$$

是远场格林函数 [27] 的傍轴近似。算符 $\tilde{E}_{+\ in}^{(a)}(\tau)$ 是在原子位置 a 处求得的入射傍轴种子场的包络，对应于式 (4) 中包含算符 $a_{\mathbf{k},s}(0)$ 的项。研究 XLO 等多程激光器时，种子场至关重要。

我们可以通过对原子 a 和 b 的横向位置进行平均，将方程 (11) 化简为 [25] 中使用的一维方程。我们通过设置 $\mathbf{r}_a=(\mathbf{x}\ L)$、$\mathbf{r}_b=(\mathbf{y}\ L-\Delta z)$，并假设泵浦区域的横向密度分布为高斯分布，其均方根尺寸为 $\sigma_x=R/\sqrt{2}$，来获得这一极限：

$$\begin{aligned}\mathcal{G}_{av}(\Delta z)&=\frac{1}{(\pi R^2)^2}\int d\mathbf{x}d\mathbf{y}e^{-\frac{\mathbf{x}^2+\mathbf{y}^2}{R^2}}\mathcal{G}\left(\mathbf{x}-\mathbf{y},\Delta z\right)\\&=\frac{\lambda_\Omega^2}{2\pi R^2+i\Delta z\lambda_\Omega}.\end{aligned} \tag{13}$$

在 [25]，中，量 $2\mathcal{G}_{av}$ 被选为常数立体角 Δo [28]。我们将发现，重要区域为 $\Delta z\ll\Delta z_{ch}\equiv 2\pi R^2/\lambda_\Omega$，由此得到认定 $\Delta o\approx\Delta o_{3d}=\lambda_\Omega^2/\pi R^2$。几何关系还表明可能存在常数 $\Delta o=\Delta o_g\equiv\pi R^2/L^2$ [25]。稍后，我们将使用这些常数比较我们的三维理论与一维近似。

公式 (5) 和 (6) 的缓变形式为

$$\frac{d\tilde{\sigma}_-^{(a)}}{d\tau}=-\frac{\Gamma_{\mathrm{sp}}}{2}\tilde{\sigma}_-^{(a)}(\tau)-\frac{i\mu}{\hbar}\sigma_z^{(a)}(\tau)\tilde{E}_+^{(a)}(\tau), \tag{14}$$

$$\begin{aligned}\frac{d\sigma_z^{(a)}}{d\tau}=&-2\Gamma_{\mathrm{sp}}\tilde{\sigma}_+^{(a)}(\tau)\tilde{\sigma}_-^{(a)}(\tau)\\&+\frac{2i\mu}{\hbar}\left[\tilde{\sigma}_+^{(a)}(\tau)\tilde{E}_+^{(a)}(\tau)-\tilde{E}_-^{(a)}(\tau)\tilde{\sigma}_-^{(a)}(\tau)\right].\end{aligned} \tag{15}$$

注意， σ_z 是缓变量，因此无需使用波浪号表示法。公式 (11)、(14) 和 (15) 是相应一维方程的三维推广，这些一维方程推导见 [25]。由于傍轴近似所采用的特殊处理方式，纵向变量 τ 的依赖关系被提出，从而使三维方程与一维方程具有相同的结构。

现在，我们考虑用尖括号表示的算符系综平均。首先来看电场方程（11）

$$\begin{aligned}\mathcal{E}_+^{(a)}(\tau) &\equiv \left\langle \tilde{E}_+^{(a)}(\tau)\right\rangle \\ &= \mathcal{E}_{+,in}^{(a)}(\tau) + \frac{3i\hbar\Gamma_{\rm sp}}{8\pi\mu}\sum_{z_b<z_a}\mathcal{G}(\mathbf{r}_a-\mathbf{r}_b)\rho_{eg}^{(b)}(\tau),\end{aligned} \tag{16}$$

其中 $\mathcal{E}_{+,in}^{(a)}(\tau) = \langle E_{+,in}^{(a)}(\tau)\rangle$ 给出了入射种子场的时空分布，且

$$\rho_{eg}^{(a)} = \left\langle \tilde{\sigma}_-^{(a)}\right\rangle = \mathrm{Tr}\left(\tilde{\sigma}_-^{(a)}\rho^{(a)}\right) \tag{17}$$

其中 $\rho_{ij}^{(a)}$ 是原子密度矩阵$\rho^{(a)}$的第 (i,j) 个元素。若采用连续描述，以原子的平均位置 $\mathbf{r}$ 取代离散的原子标记，则由方程（16）得到的电场 $\mathcal{E}_+(\mathbf{r}\ \tau)$ 满足微分形式的傍轴麦克斯韦方程，具体如下： [15, 29]。

在对方程（14）和（15）取平均时，为了得到有限的封闭方程组，我们作出一个关键假设：算符乘积的平均值可以因式分解。因此，对于 $a \neq b$

$$\left\langle \sigma_z^{(a)}(\tau)\tilde{\sigma}_-^{(b)}(\tau)\right\rangle \approx \left\langle \sigma_z^{(a)}(\tau)\right\rangle\left\langle \tilde{\sigma}_-^{(b)}(\tau)\right\rangle, \tag{18}$$

$$\left\langle \tilde{\sigma}_+^{(a)}(\tau)\tilde{\sigma}_-^{(b)}(\tau)\right\rangle \approx \left\langle \tilde{\sigma}_+^{(a)}(\tau)\right\rangle\left\langle \tilde{\sigma}_-^{(b)}(\tau)\right\rangle, \tag{19}$$

由此可得

$$\frac{d\rho_{ge}^{(a)}}{d\tau}\Big|_{\rm inv} = -\frac{\Gamma^{(a)}}{2}\rho_{ge}^{(a)}(\tau) - \frac{i\mu}{\hbar}\rho_{\rm inv}^{(a)}(\tau)\mathcal{E}_+^{(a)}(\tau). \tag{20}$$

这里， $\rho_{\rm inv}^{(a)} \equiv \left\langle \sigma_z^{(a)}(\tau)\right\rangle = \rho_{ee}^{(a)}(\tau) - \rho_{gg}^{(a)}(\tau)$，而 $\mathcal{E}_+^{(a)}$ 由（16）给出。类似地，由方程（15）可得

$$\begin{aligned}\frac{d\rho_{ee}^{(a)}}{d\tau} =& r_e^{(a)}(\tau) - \Gamma_{ee}^{(a)}(\tau)\rho_{ee}^{(a)}(\tau) \\ &+ \frac{i\mu}{\hbar}\left[\mathcal{E}_+^{(a)}(\tau)\rho_{ge}^{(a)}(\tau) - \mathcal{E}_-^{(a)}(\tau)\rho_{eg}^{(a)}(\tau)\right],\end{aligned} \tag{21}$$

$$\begin{aligned}\frac{d\rho_{gg}^{(a)}}{d\tau} =& r_g^{(a)}(\tau) + \left(\Gamma_{\rm sp}+\gamma_n\right)\rho_{ee}^{(a)}(\tau) - \gamma_g^{(a)}(\tau)\rho_{gg}^{(a)}(\tau) \\ &- \frac{i\mu}{\hbar}\left[\mathcal{E}_+^{(a)}(\tau)\rho_{ge}^{(a)}(\tau) - \mathcal{E}_-^{(a)}(\tau)\rho_{eg}^{(a)}(\tau)\right].\end{aligned} \tag{22}$$

在上述内容中，我们按照 [25], 引入了额外的非相干过程，并引入了各种速率，如下所示:

$$\begin{aligned}\Gamma^{(a)}(\tau) &\equiv \Gamma_{ee}^{(a)}(\tau) + \gamma_g^{(a)}(\tau) + q^{(a)}(\tau), \\ \Gamma_{ee}^{(a)}(\tau) &\equiv \Gamma_{\rm sp} + \gamma_e^{(a)}(\tau) + \gamma_n.\end{aligned} \tag{23}$$

其中， γ_n 是非辐射衰减率， q 是原子的退相干速率， r_e 和 r_g 分别是激发态和基态的泵浦速率，而 γ_e 和γ_g 分别是激发态和基态的耗尽速率，主要由俄歇衰减导致。

方程 (16)、(20)、(21) 和 (22) 构成一组封闭的麦克斯韦-布洛赫方程。利用这些方程，可以计算铅笔形介质中的增益和饱和；综述请参见 [15]。然而，由于麦克斯韦-布洛赫方程无法描述自发辐射，因此不能作为放大自发辐射的真正模型。为了解决这一问题，我们首先注意到，根据式 (11) 推导过程中的讨论，源自原子 a 的电场正频率部分与 $\tilde{E}_+(\tau) \propto \tilde{\sigma}_-^{(a)}(\tau)$ 成正比。相关光电流的强度为 [27]

$$\begin{aligned}&\left\langle \tilde{E}_-(\tau)\tilde{E}_+(\tau)\right\rangle \propto \left\langle \tilde{\sigma}_+^{(a)}(\tau)\tilde{\sigma}_-^{(a)}(\tau)\right\rangle \\ &= \rho_{ee}^{(a)}(\tau) = \left|\rho_{ge}^{(a)}(\tau)\right|^2 + \left(\rho_{ee}^{(a)}(\tau) - \left|\rho_{ge}^{(a)}(\tau)\right|^2\right).\end{aligned} \tag{24}$$

如果我们假设采用方程（19）中使用的因子化方法，就会得到术语 $\rho_{ge}\rho_{eg} = |\rho_{eg}|^2$ 。然而，这种处理并不成立，因为 $a = b$，括号中的项是必要的修正项，我们将其识别为自发辐射。为此，我们通过向 $\rho_{eg}^{(a)}$ 添加随机噪声振幅$\xi^{(a)}$ ，具体如下:

$$\rho_{ge}^{(a)}(\tau) \to \hat{\rho}_{ge}^{(a)}(\tau) \equiv \rho_{ge}^{(a)}(\tau) + \xi^{(a)}(\tau). \tag{25}$$

噪声振幅 $\xi^{(a)}(\tau)$ 具有以下性质

$$\begin{aligned}\left\langle \xi^{(a)}(\tau)\right\rangle_{en} &= 0, \\ \left\langle \xi^{(a)}(\tau_1)\xi^{*(b)}(\tau_2)\right\rangle_{en} &= \left(\rho_{ee}^{(a)}(\tau_1) - \left|\rho_{ge}^{(a)}(\tau_1)\right|^2\right)\delta_{ab}\delta_{\tau_1\tau_2},\end{aligned} \tag{26}$$

其中， $\langle ...\rangle_{en}$ 表示进行系综平均。将 $\rho_{ge}^{(a)}(\tau)$ 替换为 $\hat{}$ $\rho_{ge}^{(a)}(\tau)$ 的修正麦克斯韦-布洛赫方程能够正确地考虑自发辐射，因此可用于模拟 X 射线放大自发辐射。

通过计算 ASE 动力学的二点关联函数 $d\langle\sigma_+^{(a)}\sigma_-^{(b)}\rangle/d\tau$ 对于 $a \neq b$ 的导数， [25] 中发现了自发辐射的贡献。利用海森堡方程，这个量可以表示为算符乘积平均值的总和。施加式（18）的因子化，即使对于原则上无法因子化的、正比于 $\left\langle \sigma_+^{(c)}\sigma_-^{(c)}\right\rangle = \rho_{ee}^{(c)}$ 的项(19)也是如此，便得到麦克斯韦-布洛赫方程（即式（20）及其共轭方程）。文献 [25] 将这一项认定为自发辐射的来源；我们已表明，他们的结果可通过将常规麦克斯韦-布洛赫方程中的 $\rho_{ge}^{(c)}$（τ）替换为 $\hat{}$ $\rho_{ge}^{(c)}$（τ）得到。

由于噪声振幅在相邻时刻之间会突然变化，因此在数值计算时必须格外小心

修正的 MBE方程。引入离散时间步 $\tau_n = n\Delta\tau$ 的索引 (n)，我们按如下方式进行：设 $\rho^{(a)}_{ee\ (n)}$、$\rho^{(a)}_{gg\ (n)}$ 和 $\rho^{(a)}_{eg\ (n)}$ 已知。然后写作

$$\hat{\rho}^{(a)}_{ge(n)} = \rho^{(a)}_{ge(n)} + \xi^{(a)}_{(n)}, \tag{27}$$

其中

$$\xi^{(a)}_{(n)} = \sqrt{\rho^{(a)}_{ee(n)} - \left|\rho^{(a)}_{ge(n)}\right|^2}\, e^{i\Phi^{(a)}_{(n)}}. \tag{28}$$

这里 $\Phi^{(a)}{}_{(n)}$ 是具有以下性质的随机相位：

$$\left\langle e^{i\left(\Phi^{(a)}_{(n)} - \Phi^{(b)}_{(m)}\right)} \right\rangle_{en} = \delta_{ab}\delta_{nm}. \tag{29}$$

第 n 步已完成，完成时间为

$$\hat{\mathcal{E}}^{(a)}_{+(n)} = \mathcal{E}^{(a)}_{+,in(n)} + i\frac{3\hbar}{8\pi\mu}\Gamma_{\rm sp}\sum_{z_b<z_a}\mathcal{G}(\mathbf{r}_a - \mathbf{r}_b)\hat{\rho}^{(b)}_{eg(n)}. \tag{30}$$

我们已准备好进入下一个时间步，首先给出各个物理量。

$$\begin{aligned}
\rho^{(a)}_{ee(n+1)} &= \rho^{(a)}_{ee(n)} + \left[r^{(a)}_{e(n)} - \Gamma^{(a)}_{ee(n)}\rho^{(a)}_{ee(n)} + \frac{i\mu}{\hbar}\left[\hat{\mathcal{E}}^{(a)}_{+(n)}\hat{\rho}^{(a)}_{ge(n)} - \hat{\mathcal{E}}^{(a)}_{-(n)}\hat{\rho}^{(a)}_{eg(n)}\right]\right]\Delta\tau,\\
\rho^{(a)}_{gg(n+1)} &= \rho^{(a)}_{gg(n)} + \left[r^{(a)}_{g(n)} + (\Gamma_{\rm sp}+\gamma_n)\,\rho^{(a)}_{ee(n)} - \gamma^{(a)}_{g(n)}\rho^{(a)}_{gg(n)} - \frac{i\mu}{\hbar}\left[\hat{\mathcal{E}}^{(a)}_{+(n)}\hat{\rho}^{(a)}_{ge(n)} - \hat{\mathcal{E}}^{(a)}_{-(n)}\hat{\rho}^{(a)}_{eg(n)}\right]\right]\Delta\tau,\\
\rho^{(a)}_{ge(n+1)} &= \hat{\rho}^{(a)}_{ge(n)} + \left[-\frac{\Gamma^{(a)}_{(n)}}{2}\hat{\rho}^{(a)}_{ge(n)} + \frac{i\mu}{\hbar}\rho^{(a)}_{{\rm inv}(n)}\hat{\mathcal{E}}^{(a)}_{-(n)}\right]\Delta\tau,
\end{aligned} \tag{31}$$

并通过将 $n \to n+1$ 代入公式（27）和（30）来计算 $\hat{}\,\rho^{(a)}_{ge\ (n+1)}$ 和 $\hat{}\,\mathcal{E}^{(a)}_{+\ \ (n+1)}$。

为了测试上述数值积分方法，我们将其应用于单个原子的自发辐射情形 a。我们假设除了泵浦到激发态之外不存在其他非相干过程，即 $\Gamma_{ee} = \Gamma_{\rm sp}, \gamma_n = \gamma_g = r_g = 0$。为简便起见，我们省略了原子标记。由于不存在其他原子，在假设没有入射电场的情况下，$\hat{}$ 电场 $\mathcal{E}_-$ 为零，并且

$$\begin{aligned}
\left\langle|\hat{\rho}_{ge}(n)|^2\right\rangle_{en} &= \rho_{ee}(n)\\
&= X^n\rho_{ee}(0) + \sum_{m=1}^{n} X^{n-m} r_e(m)\Delta\tau.
\end{aligned} \tag{32}$$

这里 $X = 1 - \Gamma_{\rm sp}\Delta\tau$，因此对于一个较小的时间步长，$\Delta\tau \ll \Gamma^{-1}_{\rm sp}$，我们有 $X^m = e^{-\Gamma_{\rm sp}\tau_m}$。原子激发和自发辐射的强度都以 $\Gamma^{-1}_{\rm sp}$ 为 e 倍衰减长度呈指数衰减。泵浦会在 τ_m 处通过 $r_e(m)$ 补充激发，但它也会呈指数衰减。通过计算远场电场 [27] 和坡印廷矢量，可以验证在没有泵浦的情况下，发射的光子数等于初始激发 $\rho_{ee}(0)$。

自发辐射通常通过在 ρ_{ge}[17, 30–32] 的时间导数中加入一个随机相位项来建模，而不是像我们在式（27）中那样将其加到 ρ_{ge} 本身上。在这种情况下，早期的动力学类似于布朗运动，强度随时间线性增长。再结合自发辐射衰减，强度的演化便呈现为 $\Gamma_{\rm sp}\tau e^{-\Gamma_{\rm sp}\tau}$，并出现不正确的延迟峰值，正如 [25]中所指出的。

关于模拟程序的更多细节，以及低增益和高增益状态下 XLO 性能的计算，将在后续发表的论文中介绍[33]。这里，我们给出了一些模拟结果，所使用的参数对应于 [1] 中描述的实验；$\lambda_\Omega = 1.46\,\text{nm}$、$\Gamma^{-1}_{\rm sp} = 160\,\text{fs}$、$\gamma^{-1}_e = 2.4\,\text{fs}$、$R = 2\ \mu\text{m}$、$L = 15\,\text{mm}$、原子体积密度 $n_v = 1.6\times10^{25}\,\text{m}^{-3}$、$r_g = \gamma_g = q = \gamma_n = 0$、泵浦至激发态的光电离截面为 $\sigma_{\rm abs} = 0.3$ Mb，880 eV XFEL泵浦脉冲包含 $N_{ph,\ pump} = 2\times10^{12}$ 个光子，其半高全宽高斯时间轮廓为 40 fs [25]。在我们修正后的三维 MBE 中，泵浦采用平顶横向轮廓；对于一维模拟，则采用 $\Delta o = \Delta o_g \equiv \pi R^2/L^2 = 0.56\times10^{-7}$ 或 $\Delta o = \Delta o_{3d} \equiv \lambda^2_\Omega/\pi R^2 = 1.70\times10^{-7}$。对于这些模拟所使用的参数，$\Delta z_{ch} \sim 17$ mm。

图 1 显示了使用我们修正的 MBE 计算得到的 $\tau - z$ 空间中归一化辐射强度的分布；面板 (a) 和 (b) 分别为采用 $\Delta o = \Delta o_g$ 和 $\Delta o = \Delta o_{3d}$ 的一维情形，其中强度约为 Δo_g 的三倍；面板 (c) 则为三维情形。面板 (a) 中 $z \lesssim 2$ mm 处明显的波动特征是由随机噪声项造成的。对 10^4 个样本取平均后，分布变得平滑（未显示），并与一维双点相关函数法得到的结果相同，如 [25] 中图 3a 所示。面板 (c) 所示的修正三维 MBE 得到的分布则大不相同：在固定 z 下，噪声区域局限于更小的 z 范围内，并在 τ 方向占据更宽的区域。三维分布较为平滑，部分原因是计算涉及多得多的随机

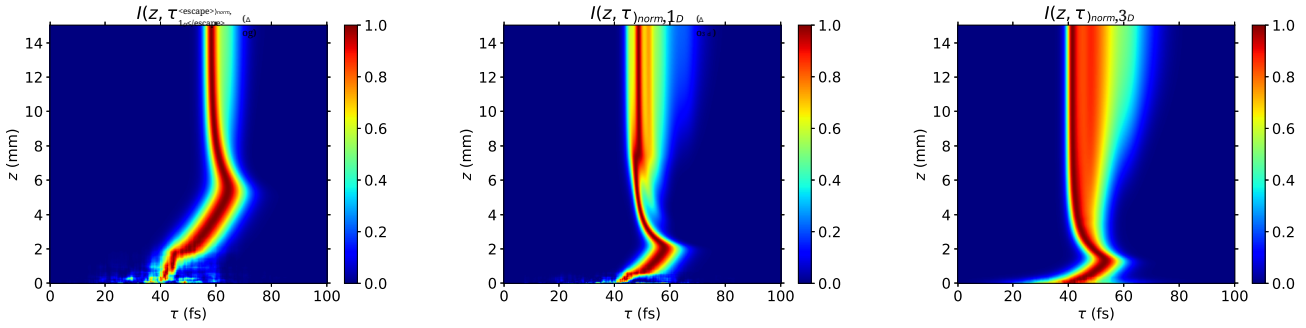

图 1：辐射强度分布：(a) 含 Δo_g 的修正一维麦克斯韦-布洛赫方程，(b) 含 Δo_{3d} 的修正一维麦克斯韦-布洛赫方程，以及 (c) 修正三维 MBE；在每个 z 值处进行归一化。

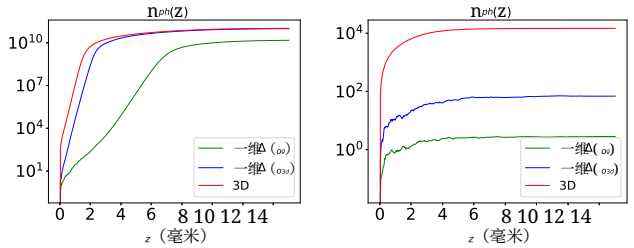

图 2：对于 (a) 2×10^{12} 和 (b) 1×10^{11}，比较修正三维 MBE 与含 Δo_g和 Δo_{3d} 的修正一维麦克斯韦-布洛赫方程预测的光子数，其中 $N_{ph,pump}$。

数调用次数，而一维情形的调用次数较少。请注意，面板 (b) 中的分布比面板 (a) 中的更接近面板 (c) 中的分布。

总光子数 $n(z) = \int d\tau I(z,\tau)$ 的曲线如图 2(a) 所示，其中红色曲线对应图 1(c)，绿色曲线对应图 1(a)，蓝色曲线对应图 1(b)。可以看到，由自发辐射产生的初始光子数在三维情况下远大于一维情况。这可能是因为自发辐射的角分布范围较大。事实上，当 z 变小时，方程 (12) 的值会变大。三维情况下的指数增长也比一维情况陡峭得多——增益是非线性的。与绿色曲线相比，蓝色曲线更能近似三维计算得到的红色曲线。我们还推测，较高的增益是图 1(c) 中明显的 τ 展宽的原因，因为光子能够更长时间地抵御衰减/损耗机制。当泵浦强度降低 20 倍时，饱和时的光子数也降低 10^6 倍，如图 2(b) 所示。红色、蓝色和绿色曲线之间的差异变得更加明显。

我们提出了一种基于哈密顿量的理论，用于描述傍轴近似下的 X 射线放大自发辐射（ASE），并扩展了先前的……

将先前的一维分析扩展至傍轴近似，以纳入衍射效应，并通过在麦克斯韦-布洛赫方程中加入随机噪声项来考虑自发辐射。该理论还包含种子场，可作为实用工具，准确模拟低增益或高增益状态下的 X 射线放大自发辐射和 XLO。

致谢

我们谨向芝加哥大学的 Kai Li 和 Linda Young 表示感谢，感谢他们介绍了 XFEL 泵浦的原子介质中的 X 射线相互作用与传播物理；向 DESY 的 Andrei Benediktovitch 和 Nina Rohringer 表示感谢，感谢他们就一维理论进行了广泛讨论；并向 SLAC 的 Alex Halavanau 表示感谢，感谢他提供了有关 XLO 一维模拟的详细信息。本工作得到美国能源部科学办公室合同编号 DE-AC02-06CH11357 的支持。

* jeongwan.park@anl.gov

[1] N. Rohringer, D. Ryan, R. A. London, M. Purvis, F. Albert, J. Dunn *et al.*, 由 X 射线自由电子激光器泵浦的 1.46 纳米原子内层 X 射线激光器，《自然》**481**，488（2012年）。[2] H. Yoneda, Y. Inbushi, K. Nagamine, Y. Michine, H. Ohashi, H. Yumoto *et al.*, 由 X 射线自由电子激光器泵浦的 1.5 埃波长原子内层激光器，《自然》**524**，446（2015年）。[3] T. Kroll, C. Weninger, R. Alonso-Mori, D. Sokaras, D. Zhu, L. Mercadier *et al.*, 过渡金属配合物中的受激 X 射线发射光谱学，《物理评论快报》**120**，133203（2018年）。[4] M. D. Doyle, A. Halavanau, Y. Zhang, Y. Michine, J. Everts, F. Fuller *et al.*, 5.9 keV 下的种子激发受激 X 射线发射，《光学》**10**，513（2023年）。[5] P. Emma, R. Akre, J. Arthur, R. Bionta, C. Bostedt, J. Bozek *et al.*, 埃量级……的首次激光振荡与运行。

波长自由电子激光器，《自然·光子学》**4**, 641 (2010)。[6] W. Decking、S. Abeghyan、P. Abramian、A. Abramsky、A. Aguirre、C. Albrecht *et al.*，由超导直线加速器驱动的兆赫重复频率硬X射线自由电子激光器，《自然·光子学》**14**, 391 (2020)。[7] T. Ishikawa、H. Aoyagi、T. Asaka、Y. Asano、N. Azumi、T. Bizen *et al.*，发射亚埃区域辐射的紧凑型X射线自由电子激光器，《自然·光子学》**6**, 540 (2012)。[8] R. H. Dicke，自发辐射过程中的相干性，《物理评论》**93**, 99 (1954)。[9] R. Bonifacio 和 L. A. Lugiato，二能级系统中的协同辐射过程：超荧光，《物理评论》A **11**, 1507 (1975)。[10] R. Bonifacio 和 L. A. Lugiato，二能级系统中的协同辐射过程：超荧光。II，《物理评论》A **12**, 587 (1975)。[11] A. Siegman， *Lasers*，第1版（University Science Books，帕洛阿尔托，1986）。[12] A. Halavanau、A. Benediktovitch、A. A. Lutman、D. DePonte、D. Cocco、N. Rohringer、U. Bergmann 和 C. Pellegrini，粒子数反转X射线激光振荡器，《美国国家科学院院刊》**117**, 27 (2020)。[13] K.-J. Kim、Y. Shvydko 和 S. Reiche，关于采用能量回收直线加速器的X射线自由电子激光振荡器的提案，《物理评论快报》**100**, 244802 (2008)。[14] Z. Huang 和 R. D. Ruth，来自再生放大器自由电子激光器的完全相干X射线脉冲，《物理评论快报》**96**, 144801 (2006)。[15] M. Gross 和 S. Haroche，超辐射：关于集体自发辐射理论的论述，《物理报告》**93**, 301 (1982)。[16] C. Weninger 和 N. Rohringer，瞬态增益光电离X射线激光器，《物理评论》A **90**, 063828 (2014)。[17] O. Larroche、D. Ros、A. Klisnick、A. Sureau、C. M¨oller 和 H. Guennou，单程和双程配置下X射线激光信号建立的麦克斯韦-布洛赫建模，《物理评论》A **62**, 043815 (2000)。[18] C. Lyu、S. M. Cavaletto、C. H. Keitel 和 Z. Harman，窄带硬X射线激射，arXiv:1801.02503。[19] A. Depresseux、E. Oliva、J. Gautier、F. Tissandier、J. Nejdl、M. Kozlova *et al.*，通过碰撞电离门控实现的桌面型飞秒软X射线激光器，《自然·光子学》**9**, 817 2015( )。[20] Y. Wang、S. Wang、E. Olivia、L. Li、M. Berrill、L. Yin *et al.*，软X射线激光放大器中的增益动力学 per-

受到强注入式 X 射线场的扰动，Nat. Photon. **8**, 381 2014( )。[21] C. Weninger, M. Purvis, D. Ryan, R. A. London, J. D. Bozek, C. Bostedt, A. Graf, G. Brown, J. J. Rocca, 和 N. Rohringer，《受激电子 X 射线拉曼散射》，《物理评论快报》**111**, 233902 (2013)。[22] V. Kimberg 和 N. Rohringer，《芯电离双原子分子的放大 X 射线发射》，《物理评论快报》**110**, 043901 (2013)。[23] E. Oliva, M. Fajardo, L. Li, M. Pittman, T. T. T. Le, J. Gautier, G. Lambert, P. Velarde, D. Ros, S. Sebban, 和 P. Zeitoun，《一种产生数十吉瓦全相干飞秒软 X 射线激光器的方案》，Nat. Photon. **6**, 764 2012( )。[24] A. Depresseux, E. Oliva, J. Gautier, F. Tissandier, G. Lambert, B. Vodungbo *et al.*，《圆偏振等离子体软 X 射线激光器的演示》，《物理评论快报》**115**, 083901 (2015)。[25] A. Benediktovitch, V. P. Majety, 和 N. Rohringer，《基于二点关联函数的超荧光量子理论》，Phys. Rev. A **99**, 013839 (2019)。[26] M. O. Scully 和 M. S. Zubairy， *Quantum Optics*，第 1 版（剑桥大学出版社，剑桥，1997年）。[27] R. Loudon， *The Quantum Theory of Light*，第 3 版（牛津大学出版社，牛津，2000年）。[28] 为保持一致，[25] 中非均匀项前的系数调整为式（11）中系数的一半。[29] K. Li, M. Labeye, P. J. Ho, M. B. Gaarde, 和 L. Young，《X 射线从线性区间到非线性区间的共振传播》，Phys. Rev. A **102**, 053113 (2020)。[30] J. J. Maki, M. S. Malcuit, M. G. Raymer, R. W. Boyd, 和 P. D. Drummond，《碰撞退相干过程对超荧光的影响》，Phys. Rev. A **40**, 5135 (1989年)。[31] P. D. Drummond 和 M. G. Raymer，《近共振介质中非经典辐射传播的量子理论》，Phys. Rev. A **44**, 2072 (1991年)。[32] ˇS. Kruˇsiˇc, A. Miheliˇc, K. Buˇcar, A. Benediktovitch, S. Chuchurka, 和 M. ˇZitnik，《抛物近似下氦气中的极紫外超荧光》，Phys. Rev. A **107**, 013113 (2023年)。[33] J.-W. Park, K.-J. Kim, 和 R. Lindberg，即将发表。