双色涡旋场驱动下高次谐波光子通道特性研究

王 哲,李 恺,李梦想,龙文博

中国人民解放军海军工程大学基础部,湖北 武汉

收稿日期: 2024年6月10日; 录用日期: 2024年7月10日; 发布日期: 2024年7月18日

摘要

本文研究了双色涡旋场驱动下高次谐波产生的光子通道特性。通过引入具有轨道角动量的涡旋光,利用 光子通道和轨道角动量的一一对应关系,可以实现光子通道的区分。另外,研究发现,改变双色场中控 制场和基频场的强度比,能够调控不同光子通道的谐波效率,获得具有特定轨道角动量的高次谐波,这 为轨道角动量可控的极紫外涡旋阿秒脉冲的产生提供了基础。

关键词

双色涡旋场,高次谐波产生,轨道角动量,光子通道

Research on the Characteristics of Photon Channels in High Harmonic Generation Driven by the Two-Color Vortex Field

Zhe Wang, Kai Li, Mengxiang Li, Wenbo Long

Department of Basic Courses, Naval University of Engineering, Wuhan Hubei

Received: Jun. 10th, 2024; accepted: Jul. 10th, 2024; published: Jul. 18th, 2024

Abstract

In this paper, the characteristics of the photon channels during the high harmonic generation process driven by the two-color vortex field are investigated. By introducing the vortex beam with orbital angular momentum (OAM), the photon channels can be effectively identified due to the fact that there is a one-to-one correspondence between the photon channels and OAMs. Besides, it is found that the harmonic efficiencies of different photon channels can be tuned by adjusting the intensity ratio between the control field and the fundamental frequency field in the two-color field, and high harmonics can be generated with specific OAMs. These findings lay the foundation for the generation of extreme ultraviolet vortexing attosecond vortices with controllable OAMs.

Keywords

Two-Color Vortex Field, High Harmonic Generation, Orbital Angular Momentum, Photon Channels

Copyright © 2024 by author(s) and Hans Publishers Inc. This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY 4.0). http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/

1. 引言

近年来,激光技术飞速发展。一方面,激光的脉宽不断被压缩,另一方面,激光的强度也不断被提升。超快超强激光脉冲的出现,为极端尺度下物理学的研究提供了实验条件,也为超快光学和强场物理领域研究的开展注入了新的活力。当原子分子与强激光场相互作用时,会发生一些新的物理现象[1]-[7],包括阈上电离、次序和非次序双电离、高次谐波辐射等。其中,高次谐波辐射[7]由于其广泛的应用前景成为科学家们当前研究的热点之一。首先,高次谐波谱覆盖了很宽的频谱范围,利用高次谐波辐射可以有效获得软X射线波段和极紫外波段的光源。其次,高次谐波信号携带有靶介质的信息,研究高次谐波能够帮助人们了解物质的内部结构,探索原子分子特性,揭示一些强场过程的物理本质。高次谐波另外一个非常重要的用途是产生超短阿秒脉冲。由于阿秒脉冲的持续时间与电子运动的时间尺度相当,这使得高时间分辨地研究和控制各种超快过程成为可能,例如泵浦-探测电子动能分布、阿秒光谱学研究等等。为了使阿秒脉冲能够更好地投入到实际应用中,高次谐波效率的提高和特性的优化引起了研究者们的极大关注。

驱动场的形式能够影响高次谐波的时空特性。研究表明,在基频场上加入一束较弱的控制场作为驱 动光 - 双色场[8]机制,可以有效调控高次谐波产生的电离和电子动力学过程,优化高次谐波特性。利用 双色场可以产生偶次谐波、拓宽超连续谱的谱宽、提升高次谐波和阿秒脉冲的产率或改善他们的光束质 量等。不同于单色场,在双色场机制中存在多个光子通道贡献于某次谐波的产生,由于高次谐波光子的 全同性,这些光子通道无法直接从传统的高次谐波谱中区分出来。如何有效区分这些光子通道并且研究 他们的特性有助于理解双色场高次谐波过程的物理问题,探索新的调控方案,从而更好地利用双色场机 制提高高次谐波和阿秒脉冲的质量,具有非常重要的意义。非共线方法被提出以区分双色场高次谐波过 程中的光子通道[9]。在这种方法中,不同的光子通道产生的谐波具有各自独立的发散角,因此可以通过 远场的空间位置来区分光子通道。然而对于某次谐波而言,不同光子通道的分量分散到了空间各处,想 要获得源自特定光子通道的高次谐波需要进行空间滤波,这会导致能量损失。有人提出采用频率比为非 整数的两束光作为驱动光,可以在相邻的整数次谐波之间产生非整数次谐波,这些非整数次谐波与不同 的光子通道相对应,从而实现光子通道的区分[10]。但是这种方法受到了高次谐波频谱分辨率的限制,由 于每次谐波具有一定的带宽,当涉及多个光子通道时,从谐波谱中准确分辨这些通道变得非常困难。此 外,由弱光子通道产生的非整数次谐波强度较低,这对实验观测和光子通道的深入研究带来了一定阻碍。 还有人提出通过引入自旋角动量来实现光子通道的选择[11],然而在这种机制中只有特定的,即满足自旋 约束条件的光子通道才能够被选择保留,不能实现不同光子通道谐波产率的有效调控。

除了双色场以外,将新颖光束作为驱动场研究高次谐波产生也是当前研究者们关注的热点之一。近期,涡旋光[12]驱动下的高次谐波产生及调控引起了研究者们的极大关注。由于涡旋光携带有轨道角动量

信息,这使得它在光通信、精密控制等领域都有很多潜在的应用价值。由于激光与物质相互作用时伴随 能量和动量的交换,用涡旋光作用于原子分子发生高次谐波过程,轨道角动量特征可以传递到高次谐波 上。这不仅赋予了高次谐波新的时空特性,更为我们调控高次谐波辐射提供了全新的自由度,有助于我 们探索改善高次谐波特性的新方法,进一步拓宽其在各领域的应用前景。近期研究发现,将涡旋场与相 位匹配、自旋约束、非共线机制等方法相结合,可以有效调控高次谐波产生过程,以产生极紫外波段的 高次谐波涡旋或涡旋阿秒脉冲[13]-[16]。

2. 高次谐波光子通道的标定及调控

本文研究了双色涡旋光驱动下的高次谐波产生过程。通过引入涡旋光可以打破双色场高次谐波光子 的全同性,区分产生某次谐波不同的光子通道。进一步研究发现,通过改变双色场中控制场和基频场的 强度比可以调节不同光子通道的高次谐波效率,并且实现单个通道的选择(效率远高于其他通道)。对于某 次谐波而言,不同的光子通道对应于不同的轨道角动量,因此通过调节双色场的强度比可以调节高次谐 波的轨道角动量,这有利于轨道角动量可控的高次谐波涡旋和阿秒涡旋的产生。

下面以九次谐波为例进行研究(最低次含有多光子通道的谐波)。在由基频 ω 和倍频 2 ω 组成的双色 场驱动下九次谐波产生的过程中,由于能量守恒和宇称守恒,有三个可能的光子通道(9,0)、(5,2)和(1,4), 其中括号内逗号前面和逗号后面的数字依次代表从 ω 基频场和 2 ω 倍频场吸收的光子数。这些光子通道 无法直接从传统的高次谐波谱上区分出来。通过引入涡旋光可以打破高次谐波光子的全同性,实现轨道 的区分和标定。比如在我们的研究中,将基频和倍频光都采用轨道角动量为 1 的涡旋光,根据轨道角动 量守恒,由三个光子通道各自产生的九次谐波就具有不同的轨道角动量信息,依次为 9、7 和 5。因此, 通过研究分析九次谐波的轨道角动量组成就可以获得三个光子通道各自的贡献度,实现区分和标定。

通过引入带有轨道角动量的涡旋光,可以实现光子通道的标定,从而从光子通道的角度研究高次谐 波产生过程。在我们的研究中,驱动光由线偏振的基频 800 纳米(ω)和倍频 400 纳米(2ω)光组成。激光脉 冲包络为梯形包络,包含一个光周期的上升沿、四个光周期的平台部分和一个光周期的下降沿。基频光 的峰值强度为 2×10¹⁴ W/cm²,径向最大强度出现在 15 μm 处。双色场的相对相位为 0。基频和倍频驱动 涡旋光的轨道角动量都为 1。靶介质为氩气。高次谐波的单原子响应过程可以通过求解氩原子在驱动场 中的含时薛定谔方程获得。我们在研究中也考虑了传播效应的影响[16]。引入涡旋光后,产生九次谐波的 三个光子通道(9,0)、(5,2)、(1,4)和九次谐波的三种轨道角动量 9、7、5 具有一一对应关系。通过分析九 次谐波的轨道角动量信息就可以获得三个光子通道的贡献信息。

图 1 展示的是不同的控制场和基频场强度比下九次谐波的远场相位分布图。远场结果是由求解氩原 子在驱动场中的含时薛定谔方程得到的近场单体响应结果加上传播效应得到[16]。注意图中明暗颜色的变 化对应于高次谐波相位的变化,沿角向相位经历的从-π到π(明暗颜色)的变化次数对应于谐波的轨道角 动量。从图中可以看到,当强度比为零,即不加控制场时,九次谐波的轨道角动量为9,这对应于单色 基频光驱动下的高次谐波过程,此时只有一个光子通道(9,0)。当加入控制场时,由于倍频场的引入另外 两个光子通道(5,2)、(1,4)参与到九次谐波的产生中。当增大双色场的强度比时,九次谐波的相位明显发 生了变化,即轨道角动量发生了变化。当相位强度为0.1时,可以看到九次谐波的轨道角动量为7,这对 应于光子通道(5,2),此时光子通道(5,2)主要贡献于九次谐波的产生。而当强度比增大到1.5时,从相位 图中可以看到角向经历了5次明暗颜色的变化,即轨道角动量为5,说明此时在三个光子通道中,光子 通道(1,4)占主导,该通道对应的九次谐波产率最高。我们还研究了双色场的相对相位对光子通道的影响, 如图1(d)所示。通过图1(b)和图1(d)的对比可以发现,当保持双色场的强度比一定时,改变相对相位仅 仅会影响九次谐波相位的形状,而角向的明暗颜色变化次数,即轨道角动量不会发生改变。这意味着仅 改变相对相位不会影响九次谐波产生时光子通道的选择情况。注意我们的研究发现其他次数的谐波也有 相同的规律,并且除了求解含时薛定谔方程以外,我们还用强场近似模型[17]进行了研究,发现了类似的 结论,即改变双色场的强度比,可以实现不同光子通道的选择,获得具有不同轨道角动量的高次谐波涡 旋,而改变双色场的相对相位则不会改变光子通道的选择情况,因此仅通过调节相对相位不能调控高次 谐波涡旋的轨道角动量。



Figure 1. Far-field phase profiles of the 9th harmonic with different values of intensity ratio between the control field and the fundamental field 图 1. 不同的控制场和基频场强度比下九次谐波的远场相位

我们利用文献[18]中的理论模型可以定性地描述发现的现象规律。图 2(a)展示了利用该模型计算的九次谐波在不同双色场强度比下各光子通道的归一化效率。从图中可以看到对于某个光子通道而言,存在某一段最佳的强度比范围使得该光子通道的效率最大,并且这段最佳范围的持续区间会随着吸收 2 ω 倍频场光子数的增加而增大。光子通道(9,0)的最佳双色场强度比范围约为 0~0.1,光子通道(5,2)的最佳范围约为 0.1~1,而当双色场强度比大于 1 时,光子通道(1,4)将占主导。可以看到我们的研究结果和利用文献[18]中理论模型预测的结果在定性上是一致的。值得一提的是,预测结果显示只要在基频场上加入一个微弱的控制场(强度比约 0.1),单色场的基本通道(9,0)就会被抑制。当双色场强度比大于 0.1 时,随着强度比的增加,由控制场的引入而产生的双色场光子通道(5,2)和(1,4)会依次占据主导地位,从而被选择(九次谐波的产生主要由该光子通道贡献)。由于光子通道与轨道角动量是一一对应的,因此通过调节双色场的强度比,就能够获得具有不同轨道角动量(轨道角动量为 9、7 和 5)的九次谐波。对于具有更多光子通道的高次谐波也有类似的结论,图 2(b)展示的是十五次谐波的情况。根据能量守恒和宇称守恒,存在四个可能的光子通道(15,0)、(11,2)、(7,4)和(3,6)对十五次谐波的产生有贡献,它们对应的轨道角动量依次为 15、13、11 和 9。从图中可以看到,通过调节双色场的强度比,这些光子通道可以被依次选择出来,

从而实现十五次谐波轨道角动量的控制。相比于低次谐波而言,较高次谐波可调控的轨道角动量的数目 更多。



Figure 2. Normalized efficiency of the photon channels with the variation of intensity ratio at different two-color field for the 9th (a) and 15th (b) harmonic, respectively 图 2. 九次谐波(a)和十五次谐波(b)在不同双色场强度比下各光子通道的归一化效率



Figure 3. Phase distribution maps of the 9th harmonic near-field ((a)~(c)) and far-field ((d)~(f)); ((g)~(i)) Intensity distribution maps of photon channels for different two-color field intensity ratios **图 3.** 九次谐波近场((a)~(c))和远场((d)~(f))的相位分布图; ((g)~(i)) 不同双色场强度比下的光子通 道强度分布图

图 3(a)~(c)和图 3(d)~(f)分别展示的是九次谐波在双色场强对比为 0.1、0.6 和 1.5 时近场(a)~(c)和远场 (d)~(f)的相位分布图。从图中可以看到,在考虑了传播效应的远场和仅考虑了单原子响应的近场相比具

有类似的相位变化规律。在相同的强度比下,近场、远场相位图显示出了相同的轨道角动量,即光子通 道的选择情况一致。这表明在我们的研究中,光子通道的选择主要源自单原子响应过程,而传播效应的 影响很小。从三个光子通道(9,0)、(5,2)、(1,4)各自产生九次谐波的效率,即各光子通道的强度(或效率), 可以通过对九次谐波远场(或近场)角向相位的傅里叶变换得到,在傅里叶变换谱中频率分量9、7和5的 强度大小对应于九次谐波各轨道角动量的占比权重。图 3(g)~(i)展示了不同双色场强度比下九次谐波各光 子通道的强度。可以看到,当强度比为 0.1 时,光子通道(5,2)的强度远高于另外两个通道,占据主导地 位,因此九次谐波具有确定的轨道角动量7,如图3(a)和图3(d)所示。当强度比变为0.6时,通道(5,2) 和通道(1.4)的强度可比拟,他们都对九次谐波的产生具有主要贡献,两个通道之间相互影响,九次谐波 没有确定的轨道角动量,相位显示出了不规则的结构,如图 3(b)和图 3(e)所示。而当强度比增大到 1.5 时, 通道(1,4)占据主导,被选择了出来,因此九次谐波的相位又呈现出了规则的结构,如图 3(c)和图 3(f)所 示,此时九次谐波的轨道角动量为 5。研究结果表明,通过调节双色场的强度比,可以实现高次谐波光 子通道的有效选择,从而调控高次谐波涡旋的轨道角动量。另外,这里光子通道的选择为利用强场效应 实现光量子编码提供了一种可能的途径。例如,假设我们认为图 3(g)~(i)中强度高于 50 的光子通道为"开", 低于 50 的为"关",光子通道"开"和"关"的状态对应于"1"和"0",光子通道(1,4)、(5,2)和(9,0) 的"开"、"关"状态对应于二进制码[a, b, c]中 a、b 和 c 的数值,那么图 3(g)~(i)对应的二进制码依次 可以表示为[0,1,0]、[1,1,0]和[1,0,0]。更多位数的二进制码可以通过对高阶次谐波更多光子通道数的调 控来实现。

3. 结论

本文研究了双色 ω + 2 ω 涡旋场驱动下高次谐波产生。研究发现,引入涡旋光能够实现双色场中高 次谐波光子通道的区分。通过分析高次谐波的角向相位信息,可以获得不同光子通道的占比,即各光子 通道的强度或源自各光子通道高次谐波的产率。进一步研究发现,通过改变双色场控制场和基频场的强 度比,可以控制各光子通道的强度,实现单个光子通道的选择,即被选择光子通道的强度远高于其他光 子通道的强度,高次谐波主要由单个光子通道产生。由于光子通道和轨道角动量是一一对应的,这就意 味着改变双色场的强度比可以调控高次谐波涡旋的轨道角动量。这有利于轨道角动量可控的极紫外涡旋 阿秒脉冲的产生。此外,本研究中光子通道的调控方式也为利用强场效应实现光量子编码提供了一种可 能的途径。

基金项目

本文工作由海军工程大学科学研究基金(项目编号: 2022501060、2023501030)资助研究。

参考文献

- Corkum, P.B. and Krausz, F. (2007) Attosecond Science. *Nature Physics*, 3, 381-387. <u>https://doi.org/10.1038/nphys620</u>
- [2] Tao, Z., Chen, C., Szilvási, T., Keller, M., Mavrikakis, M., Kapteyn, H., et al. (2016) Direct Time-Domain Observation of Attosecond Final-State Lifetimes in Photoemission from Solids. Science, 353, 62-67. https://doi.org/10.1126/science.aaf6793
- [3] He, L., Lan, P., Le, A., Wang, B., Wang, B., Zhu, X., et al. (2018) Real-Time Observation of Molecular Spinning with Angular High-Harmonic Spectroscopy. *Physical Review Letters*, **121**, Article ID: 163201. <u>https://doi.org/10.1103/physrevlett.121.163201</u>
- [4] Liu, K., Luo, S., Li, M., Li, Y., Feng, Y., Du, B., *et al.* (2019) Detecting and Characterizing the Nonadiabaticity of Laser-Induced Quantum Tunneling. *Physical Review Letters*, **122**, Article ID: 053202. <u>https://doi.org/10.1103/physrevlett.122.053202</u>

- [5] Martín-Hernández, R., Hu, H., Baltuska, A., Plaja, L. and Hernández-García, C. (2023) Fourier-Limited Attosecond Pulse from High Harmonic Generation Assisted by Ultrafast Magnetic Fields. *Ultrafast Science*, 3, Article ID: 0036. <u>https://doi.org/10.34133/ultrafastscience.0036</u>
- [6] Franz, P., Li, S., Driver, T., Robles, R.R., Cesar, D., Isele, E., *et al.* (2024) Terawatt-Scale Attosecond X-Ray Pulses from a Cascaded Superradiant Free-Electron Laser. *Nature Photonics*, 18, 698-703. https://doi.org/10.1038/s41566-024-01427-w
- [7] Li, X.F., L'Huillier, A., Ferray, M., Lompré, L.A. and Mainfray, G. (1989) Multiple-Harmonic Generation in Rare Gases at High Laser Intensity. *Physical Review A*, 39, 5751-5761. <u>https://doi.org/10.1103/physreva.39.5751</u>
- [8] Mauritsson, J., Johnsson, P., Gustafsson, E., L'Huillier, A., Schafer, K.J. and Gaarde, M.B. (2006) Attosecond Pulse Trains Generated Using Two Color Laser Fields. *Physical Review Letters*, 97, Article ID: 013001. https://doi.org/10.1103/physrevlett.97.013001
- [9] Bertrand, J.B., Wörner, H.J., Bandulet, H.-.C, Bisson, É., Spanner, M., Kieffer, J.-.C, et al. (2011) Ultrahigh-Order Wave Mixing in Noncollinear High Harmonic Generation. *Physical Review Letters*, **106**, Article ID: 023001. https://doi.org/10.1103/physrevlett.106.023001
- [10] Fleischer, A., Kfir, O., Diskin, T., Sidorenko, P. and Cohen, O. (2014) Spin Angular Momentum and Tunable Polarization in High-Harmonic Generation. *Nature Photonics*, 8, 543-549. <u>https://doi.org/10.1038/nphoton.2014.108</u>
- [11] Dorney, K.M., Ellis, J.L., Hernández-García, C., Hickstein, D.D., Mancuso, C.A., Brooks, N., et al. (2017) Helicity-Selective Enhancement and Polarization Control of Attosecond High Harmonic Waveforms Driven by Bichromatic Circularly Polarized Laser Fields. *Physical Review Letters*, **119**, Article ID: 063201. https://doi.org/10.1103/physrevlett.119.063201
- [12] Allen, L., Beijersbergen, M.W., Spreeuw, R.J.C. and Woerdman, J.P. (1992) Orbital Angular Momentum of Light and the Transformation of Laguerre-Gaussian Laser Modes. *Physical Review A*, 45, 8185-8189. https://doi.org/10.1103/physreva.45.8185
- [13] Géneaux, R., Camper, A., Auguste, T., Gobert, O., Caillat, J., Taïeb, R., et al. (2016) Synthesis and Characterization of Attosecond Light Vortices in the Extreme Ultraviolet. *Nature Communications*, 7, Article No. 12583. https://doi.org/10.1038/ncomms12583
- [14] Dorney, K.M., Rego, L., Brooks, N.J., San Román, J., Liao, C., Ellis, J.L., *et al.* (2018) Controlling the Polarization and Vortex Charge of Attosecond High-Harmonic Beams via Simultaneous Spin-Orbit Momentum Conservation. *Nature Photonics*, **13**, 123-130. <u>https://doi.org/10.1038/s41566-018-0304-3</u>
- [15] de las Heras, A., Pandey, A.K., San Román, J., Serrano, J., Baynard, E., Dovillaire, G., *et al.* (2022) Extreme-Ultraviolet Vector-Vortex Beams from High Harmonic Generation. *Optica*, 9, 71-79. <u>https://doi.org/10.1364/optica.442304</u>
- [16] Paufler, W., Böning, B. and Fritzsche, S. (2018) Tailored Orbital Angular Momentum in High-Order Harmonic Generation with Bicircular Laguerre-Gaussian Beams. *Physical Review A*, 98, Article ID: 011401(R). https://doi.org/10.1103/physreva.98.011401
- [17] Lewenstein, M., Balcou, P., Ivanov, M.Y., L'Huillier, A. and Corkum, P.B. (1994) Theory of High-Harmonic Generation by Low-Frequency Laser Fields. *Physical Review A*, **49**, 2117-2132. <u>https://doi.org/10.1103/physreva.49.2117</u>
- [18] Li, L., Lan, P., He, L., Zhu, X., Chen, J. and Lu, P. (2018) Scaling Law of High Harmonic Generation in the Framework of Photon Channels. *Physical Review Letters*, **120**, Article ID: 223203. <u>https://doi.org/10.1103/physrevlett.120.223203</u>