

## 激光与光电子学进展

## 气体高次谐波产生中的角动量守恒

董嘉豪, 梁青青<sup>\*\*</sup>, 许亮, 刘一<sup>\*</sup>

上海理工大学光电信息与计算机工程学院, 上海 200093

**摘要** 随着激光技术的迅猛发展, 超快光学已经成为现代物理学研究中一个非常重要的前沿领域。高次谐波作为产生超短激光脉冲的重要手段之一, 在近十年内快速发展。本文综述了气体高次谐波产生过程中存在的自旋角动量守恒、轨道角动量守恒、自旋-轨道相互作用以及由此引出的新奇物理现象, 总结了现阶段研究所存在的部分空白与挑战。将结构光场应用于高次谐波领域极大地丰富了人们研究光与物质相互作用的手段, 为光学操控和强场物理带来了新的机遇。

**关键词** 物理光学; 谐波产生与混频; 强场过程; 超快非线性光学; 角动量守恒; 自旋-轨道相互作用

中图分类号 O437

文献标志码 A

DOI: 10.3788/LOP230511

## Angular Momentum Conservation for High-Harmonic Generation in Gases

Dong Jiahao, Liang Qingqing<sup>\*\*</sup>, Xu Liang, Liu Yi<sup>\*</sup>

School of Optical-Electrical and Computer Engineering, University of Shanghai for Science and Technology,  
Shanghai 200093, China

**Abstract** With the rapid advancement of laser technology, ultrafast optics has become a very important frontier area in modern physics research. High-harmonic generation, a primary technique for generating ultrashort laser pulses, has progressed rapidly in the past decade. In this paper, the conservation of spin angular momentum and orbital angular momentum, the spin-orbit interaction, and other novel physical phenomena in the high-harmonic generation in the gas medium, are reviewed. In addition, gaps and challenges in existing research are summarized. The application of structured light field in high-harmonic generation significantly enhances investigations of light-matter interaction and creates new opportunities in light manipulation and strong-field physics fields.

**Key words** physical optics; harmonic generation and mixing; strong-field process; ultrafast nonlinear optics; conservation of angular momentum; spin-orbit interaction

## 1 引言

高次谐波产生(HHG)在强场物理领域里有着举足轻重的地位,对研究原子和分子的超快动力学起着至关重要的作用<sup>[1-7]</sup>。1977年Burnett等<sup>[8]</sup>首次在激光脉冲与固体靶表面等离子体的相互作用中观察到固体高次谐波。而如今应用最为广泛的气体高次谐波则是由McPherson等<sup>[9]</sup>于1987年首次发现。

气体HHG过程由半经典的三步模型来描述<sup>[10-11]</sup>。如图1所示,当飞秒激光脉冲聚焦在惰性气体中时,强激光场使原子的势场发生变化。由于与外电场方向相反的一侧势能降低,原本被束缚在势阱中的电子就有机会发生量子隧穿逃离势阱。在忽略原子核库伦势作

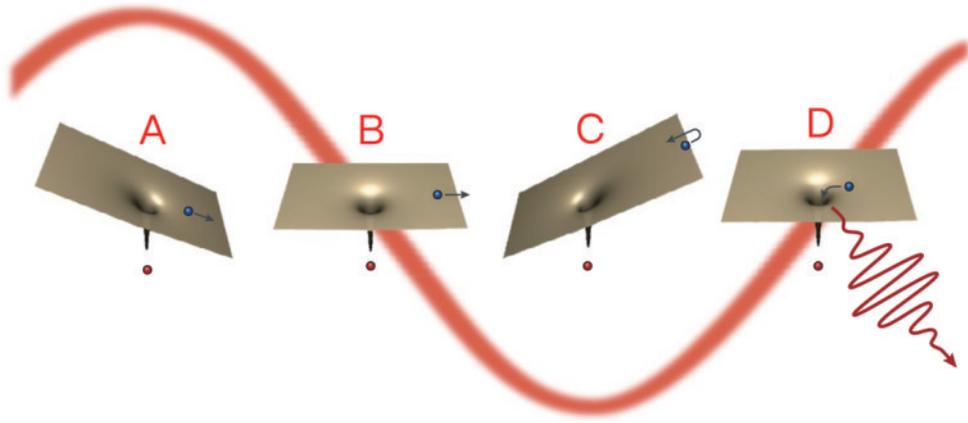
用的强场近似中,隧穿出来的电子在外电场的作用下做经典简谐振荡运动。在振荡过程中,一部分电子会彻底远离原子核成为光电子,该过程被称为强场电离。还有一部分电子会被拉回原子核发生弹性散射、非弹性散射或是与原子核再结合成中性原子。其中电子与原子核发生回碰结合成中性原子的过程会释放一个光子,该光子的能量等于隧穿电子在外场中积累得到的动能与末态的结合能之和,该过程被称为高次谐波产生。

三步模型表明HHG过程仅在驱动场为线偏振或椭圆度较小的椭圆偏振时才会发生<sup>[12]</sup>。一方面,这是因为圆偏振的驱动场无法将电子拉回原子核并与之发生回碰;另一方面,由于圆偏振驱动场的HHG过程受

收稿日期: 2023-01-16; 修回日期: 2023-02-14; 录用日期: 2023-02-17; 网络首发日期: 2023-03-09

基金项目: 国家自然科学基金(12034013)

通信作者: \*yi.liu@usst.edu.cn; \*\*qqliang@usst.edu.cn

图 1 三步模型示意图<sup>[11]</sup>Fig. 1 Diagram of three-step model<sup>[11]</sup>

自旋角动量守恒约束,谐波辐射受到了抑制。因此,人们普遍认为圆偏振光是无法产生高次谐波的,这一观念持续了数十年之久。然而,2014年Kfir等<sup>[13]</sup>首次在实验上证实旋转方向相反的圆偏振双色场可以产生圆偏振高次谐波,并描述了满足自旋角动量守恒的相位匹配过程。同年,Garipey等<sup>[14]</sup>也从实验上证实了涡旋光束产生高次谐波的过程中遵守轨道角动量守恒。上述这种偏振态、相位以及强度等属性在空间上不均匀且具有复杂结构的光束被称为结构光场。自此,关于利用结构光场产生高次谐波的研究就像雨后春笋一般不断涌现出来。

本文综述了近十年内将结构光场用于HHG的最新进展。首先,回顾了光子的角动量分类以及自旋-轨道相互作用。其中不仅涵盖了人们所熟悉的纵向自旋角动量以及纵向轨道角动量,还介绍了最近几年才被人们逐渐了解的横向自旋角动量与横向轨道角动量。然后,重点介绍了HHG过程中由角动量守恒与自旋-轨道相互作用引发的新奇现象以及物理特性,例如:环面纽结角动量守恒以及光的自转矩(self-torque)特性。最后,对基于角动量守恒的HHG过程控制技术进行了总结与展望。

## 2 光子的角动量

光子具有两种角动量:1909年Poynting<sup>[15]</sup>首先提出光子具有自旋角动量(SAM),并由Beth<sup>[16]</sup>于1936年证明左旋圆偏振(LCP)和右旋圆偏振(RCP)的光子分别具有 $-\hbar$ 和 $+\hbar$ 的SAM。1992年Allen等<sup>[17]</sup>首次证实了具有螺旋波前的涡旋光束携带有 $l\hbar$ 的内禀轨道角动量(OAM),其中 $l$ 为任意整数被称为拓扑荷数。内禀OAM意味着光子在沿光轴传播的过程中还在绕光轴做轨道旋转运动。内禀OAM不依赖于坐标轴原点的选取,是光子的固有属性;与之相对的外禀OAM则依赖于坐标轴原点的选取,本文中提到的OAM都指光子的内禀OAM。测量光束OAM的主要方法有干涉法、衍射光栅法以及超表面法等<sup>[18]</sup>。光子的总角

动量为其SAM与OAM之和。

对于单色电磁波,分别采用自旋角动量密度 $\mathbf{S}$ 和轨道角动量密度 $\mathbf{L}$ 来描述光束中光子的平均角动量属性<sup>[19]</sup>:

$$\mathbf{S} = \text{Im} [\epsilon_0 \mathbf{E}^* \times \mathbf{E} + \mu_0 \mathbf{H}^* \times \mathbf{H}] / 4\omega, \quad (1)$$

$$\mathbf{L} = \mathbf{r} \times \text{Im} [\epsilon_0 \mathbf{E}^* \cdot (\nabla) \mathbf{E} + \mu_0 \mathbf{H}^* \cdot (\nabla) \mathbf{H}] / 4\omega. \quad (2)$$

上述角动量均为纵向角动量,即 $\mathbf{S}$ 与 $\mathbf{L}$ 的矢量方向平行于光轴。近几年来,随着光场调控和结构光技术的发展,人们逐渐认识到光场的一些新特性,即垂直于光轴的横向角动量。例如将空间上分离的LCP和RCP光经透镜紧聚焦,焦点处纵向SAM相互抵消而横向SAM相互叠加,于是可以在焦点处得到纯的横向SAM,即 $\mathbf{S}$ 垂直于光轴<sup>[20]</sup>。与电磁矢量在垂直于光轴的平面内旋转的纵向SAM不同,具有横向SAM的光束其电磁矢量在包含光轴的平面内旋转,因其旋转方式类似于自行车的车轮,因此该现象也被称为光轮(photonic wheels)<sup>[19]</sup>。此外,具有时空耦合效应的时空光涡旋(STOV)则携带垂直于光轴的横向轨道角动量,因其特有的阿秒量级超快时空调控特性,STOV逐渐成为强场物理研究的前沿热点之一<sup>[21-22]</sup>。更重要的是,横向角动量的发现使得人们可以通过矢量合成得到空间中任意大小、任意方向的SAM与OAM密度,为光场调控技术提供了两个全新的自由度<sup>[19,23]</sup>。

在近轴近似下光的SAM与OAM相互分离,可以分别独立操控和测量<sup>[24]</sup>。然而在一些特殊情况下,例如:聚焦<sup>[25-27]</sup>、结构材料的散射<sup>[28]</sup>、在各向异性晶体中传播<sup>[29]</sup>等,光场会发生自旋-轨道相互作用(SOI),这时光的SAM与OAM之间会因存在强耦合效应而相互转化。这种独特的光学现象同样在HHG的角动量守恒过程中起着重要作用。

## 3 高次谐波产生中的角动量守恒

在本节中,首先介绍HHG在不涉及SOI时纵向SAM、纵向OAM以及横向OAM分别独立守恒的情

况,其中纵向 OAM 守恒将揭示光的自转矩特性;然后介绍涉及 SOI 的 HHG 过程所要遵循的总角动量守恒与环面纽结角动量守恒。

### 3.1 不涉及自旋-轨道相互作用

#### 3.1.1 纵向自旋角动量守恒

1995 年 Long 等<sup>[30]</sup>基于零程势模型首次从理论上推导出同向旋转的双色圆偏振光场可以产生椭圆偏振或圆偏振谐波,而反向旋转的双色圆偏振光场总是产生圆偏振谐波的结论。同年 Eichmann 等<sup>[31]</sup>基于此想法设计了可用于多种偏振组合的双色场产生高次谐波的光路,发现同向旋转和反向旋转的双色圆偏振光场确实能够产生谐波信号。然而 Eichmann 等并未对谐波偏振的椭圆度和旋向作进一步分析。2014 年 Kfir 等<sup>[13]</sup>首次证实利用反向旋转双色圆偏振场产生的高次谐波偏振态为圆偏振。如图 2 所示,这种光场结构将使电子有机会回到原子核附近并发生回碰。2015 年

Fan 等<sup>[32]</sup>则在此基础上更进一步,首次在软 X 射线波段获得圆偏振高次谐波。由线偏振光产生的传统 HHG 中只涉及到能量守恒以及线动量守恒:

$$\omega_q = m\omega_1 + n\omega_2 \quad (q = m + n), \quad (3)$$

$$\Delta k = k_q - mk_1 - nk_2 = 0, \quad (4)$$

式中: $\omega_1$ 、 $\omega_2$ 和 $\omega_q$ 分别为基频场、倍频场以及第 $q$ 阶谐波的角频率; $m$ 和 $n$ 分别为吸收基频场和倍频场的光子个数; $k_1$ 、 $k_2$ 和 $k_q$ 分别为基频场、倍频场以及第 $q$ 阶谐波的波矢。然而 Kfir 等发现,在旋转方向相反的圆偏振双色场 HHG 过程中,虽然根据能量守恒以及线动量守恒,对于任意第 $q$ 阶谐波 $m$ 和 $n$ 都有任意的取值方式,但由于光子的自旋角动量只能为 $\pm\hbar$ ,因此 $m$ 和 $n$ 的取值受到 SAM 守恒的约束只能为 $m = n \pm 1$ 。故式(3)可改写为

$$\omega_q = (n \pm 1)\omega_1 + n\omega_2 = n(\omega_1 + \omega_2) \pm \omega_1. \quad (5)$$

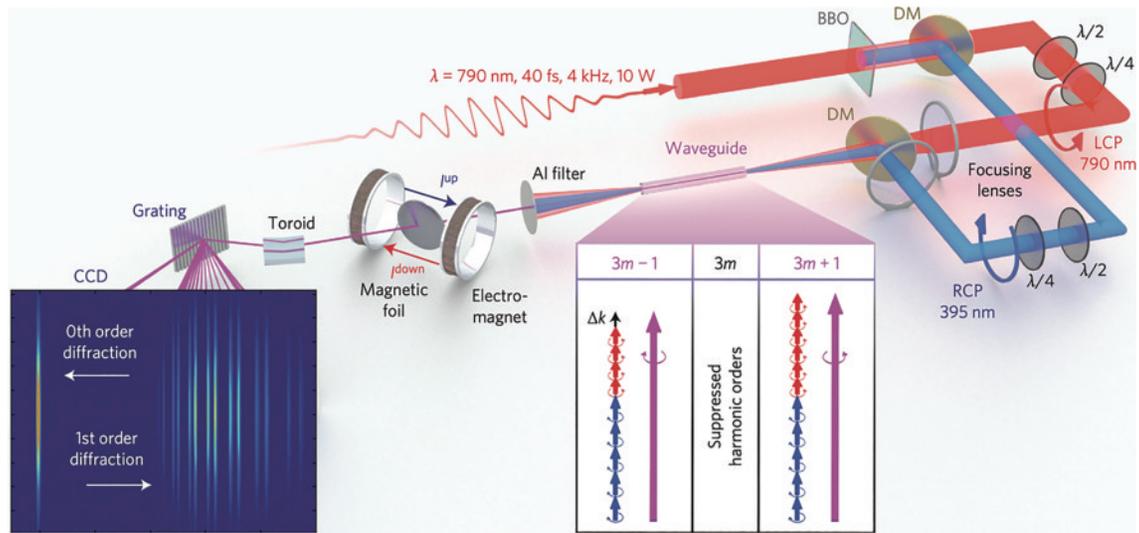


图 2 反向旋转圆偏振双色激光脉冲的 HHG 实验光路图<sup>[13]</sup>。其中中心波长为 790 nm 的 LCP 基频场(单脉冲能量为 1.6 mJ)与 395 nm 的 RCP 倍频场(单脉冲能量为 0.43 mJ)聚焦于充满气体介质的空芯光纤中

Fig. 2 Experimental scheme of HHG with two-color counter-rotating circularly-polarized laser pulses<sup>[13]</sup>. Two pump pulses with central wavelengths around 790 nm (LCP, 1.6 mJ/pulse) and 395 nm (RCP, 0.43 mJ/pulse) are focused into a gas-filled hollow fiber

可见由于 SAM 守恒的限制只能产生奇次阶谐波,并且第 $q$ 阶谐波存在偏振态不同的两个峰,分别为 RCP 与 LCP,如图 3 所示。从图 3 中可以看出,两两成对出现的主峰两旁还存在微弱的侧峰,这是因为驱动光不是完美的圆偏振光,其中包含了少数自旋状态相反的光子<sup>[32]</sup>。当这些自旋状态相反的光子参与 HHG 时,将打破 $m = n \pm 1$ 的限制,从而产生新的频率成分。上述关于反向旋转双色场的情况与 Long 等<sup>[30]</sup>推导的结论一致,各阶次谐波频率间隔为 $\omega_1 + \omega_2$ ,而对于研究相对更少的同向旋转双色场情况,各阶次谐波频率间隔应为 $\omega_1 - \omega_2$ 。这意味着原子必须释放与吸收高频光子数量相同的低频光子,再额外吸收或释放二者中任意频率的一个光子,即 $\omega_q = n(\omega_1 - \omega_2) + \omega_1$

或 $\omega_q = n(\omega_1 + \omega_2) + \omega_2$ ,才能满足 SAM 守恒。相比于反向旋转双色场的情况,同向旋转双色场的 HHG 强度更低,且随着谐波阶数的增加而迅速衰减<sup>[30,33]</sup>。虽然 Kfir 和 Fan 等工作可以产生圆偏振的 HHG,但每阶 HHG 都同时包含了难以分离的 RCP 和 LCP 两种成分,因此限制了该技术的发展。同年, Hickstein 等<sup>[34]</sup>首次通过非共线 HHG 得到了角度分离的圆偏振极紫外光束,避免了各阶谐波的 RCP 和 LCP 成分混在一起叠加成线偏振脉冲的问题。接着,2017 年 Dorney 等<sup>[35]</sup>发现,通过调节基频场和倍频场的相对强度可以控制 HHG 中 RCP 和 LCP 成分的比例,从而对 HHG 偏振态的椭圆度进行调控。此外,人们也在积极探索获得圆偏振或椭圆偏振孤立阿秒脉冲的方案<sup>[36-37]</sup>。

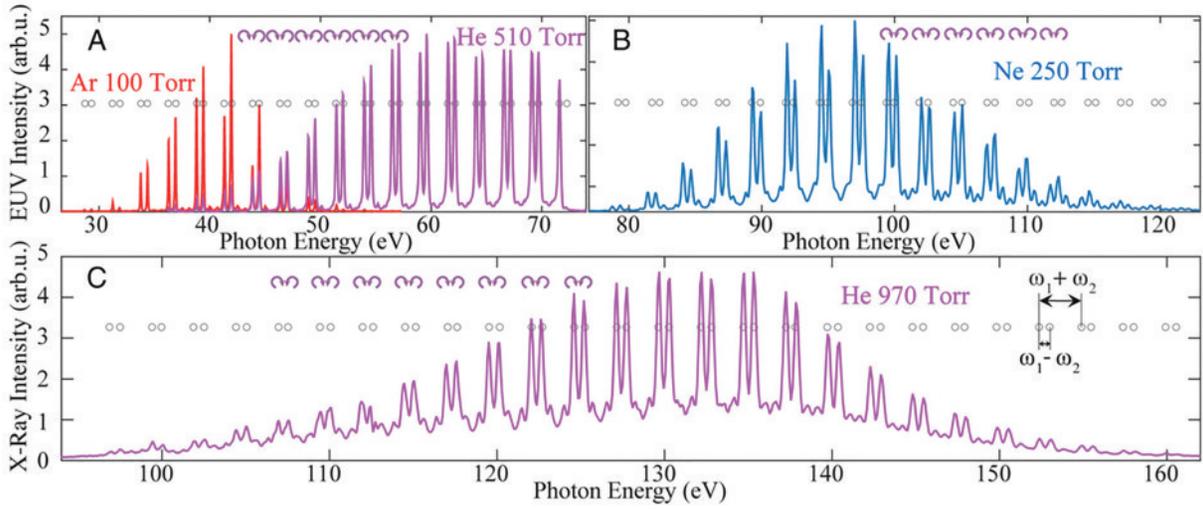


图 3 圆偏振极紫外和软 X 射线 HHG 光谱图<sup>[32]</sup>

Fig. 3 Spectra of circularly-polarized extreme ultraviolet and soft X-ray HHG<sup>[32]</sup>

另一方面,人们也在致力于探索 HHG 能够携带 SAM 信息的物理机制。2021 年 Fang 等<sup>[38]</sup>通过调节偏振方向交叉的线偏振双色场的交叉角和相对相位来实现对 HHG 偏振态椭圆度的完全控制,并讨论了 HHG 过程中角动量在光子和电子之间的传递过程。根据他们的模拟结果,在驱动原子光电离时,驱动光的 SAM

信息会被传递给隧穿电子作为相对于原子核的 OAM,如图 4 所示。当电子与原子核发生回碰时,电子的 OAM 再次转化为高能光子的 SAM。在整个光与物质的相互作用过程中,角动量保持守恒,只是以不同的形式在光子和电子之间进行传递。

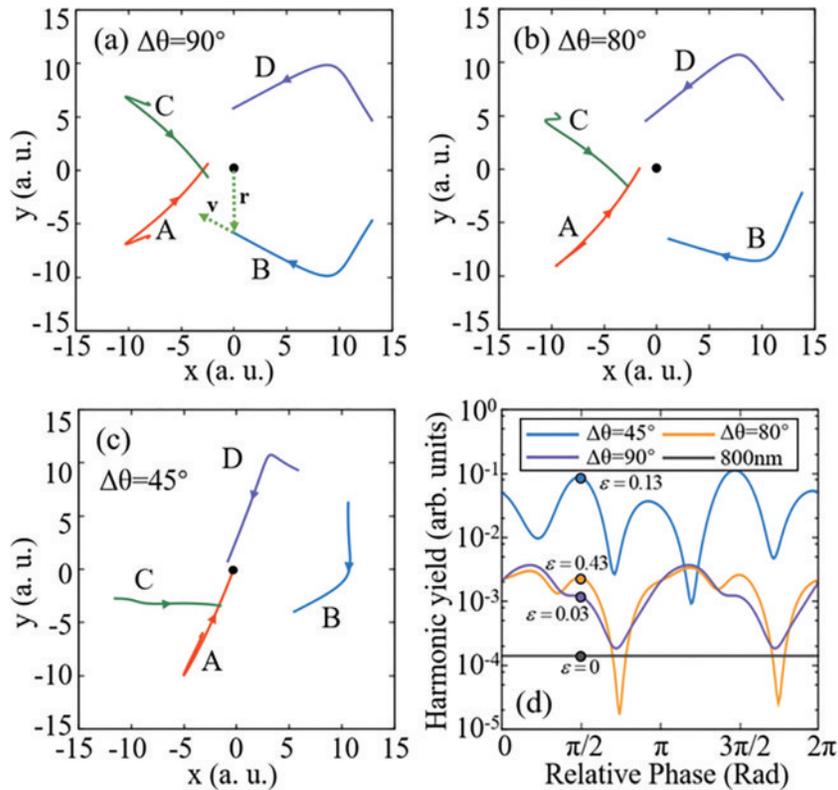


图 4 电子的量子轨迹与角动量转移<sup>[38]</sup>

Fig. 4 Quantum trajectories and angular momentum transfer of electrons<sup>[38]</sup>

目前针对具有 SAM 的 HHG 研究几乎都围绕着纵向 SAM 展开,然而极少有 HHG 研究涉及到由电场纵向分量与横向分量耦合得到的横向 SAM<sup>[39]</sup>。考虑

到目前人们可以合成任意 SAM 方向的光场<sup>[19]</sup>,可以期待在引入横向 SAM 后将观察到更为有趣且丰富的物理现象。

### 3.1.2 纵向轨道角动量守恒

2012 年 Zürich 等<sup>[40]</sup>利用涡旋光束首次得到具有纵向 OAM 的涡旋 HHG, 并且各阶次谐波具有相同的发散角。他们当时得出不同阶次 HHG 的纵向 OAM 都与驱动场相同的结论, 即  $l_q = l_1$ 。然而这一结论是有争议的, 因为这违反了纵向 OAM 的守恒<sup>[41]</sup>。在随后的两年内, Hernández-García 等<sup>[42]</sup>和 Gariepy 等<sup>[14]</sup>相继从理论和实验上证实了涡旋光束产生高次谐波的过程中应该服从乘法规则, 即  $l_q = ql_1$ 。Hernández-García 等的仿真结果表明, 谐波的发散角与谐波阶数无关, 而是依赖于驱动场的拓扑荷数  $l_1$ , 且  $l_1$  越大谐波的发散角越大, 同时具有完美涡旋光束的特征。此外, Gariepy 等<sup>[14]</sup>的理论工作和 2017 年 Kong 等<sup>[43]</sup>的实验工作还发现, 若平面波与涡旋光束以非共线的方式聚

焦于惰性气体, 在 HHG 过程中存在多种光子吸收通道  $(n, q-n)$ , 其中  $n$  为 HHG 过程中吸收平面波光子数。此时, 第  $q$  阶谐波包含不同光子吸收通道所产生的谐波, 各通道谐波的拓扑荷为  $l_q = (q-n)l_1$ , 并且不同  $l_q$  的谐波在角度上彼此分离, 拓扑荷相同而阶次不同的谐波具有相近的发散角, 如图 5(a) 和 5(b) 所示。2016 年 Rego 等<sup>[44]</sup>研究了驱动场中包含两种纵向 OAM 成分的 HHG 过程, 进一步讨论了纵向 OAM 展宽的现象。他们发现除了存在多种光子吸收通道以外, 驱动场与原子的非微扰相互作用使得 HHG 中的拓扑荷范围展宽, 并服从新的纵向 OAM 守恒规则:  $l_q = (q-n)l_1 + nl_2 + m(l_2 - l_1)$ 。此外, 2018 年 Li 等<sup>[45]</sup>发现分数阶涡旋光束的 HHG 过程满足平均纵向 OAM 守恒, 即  $l_q = ql_{\text{average}}$ 。

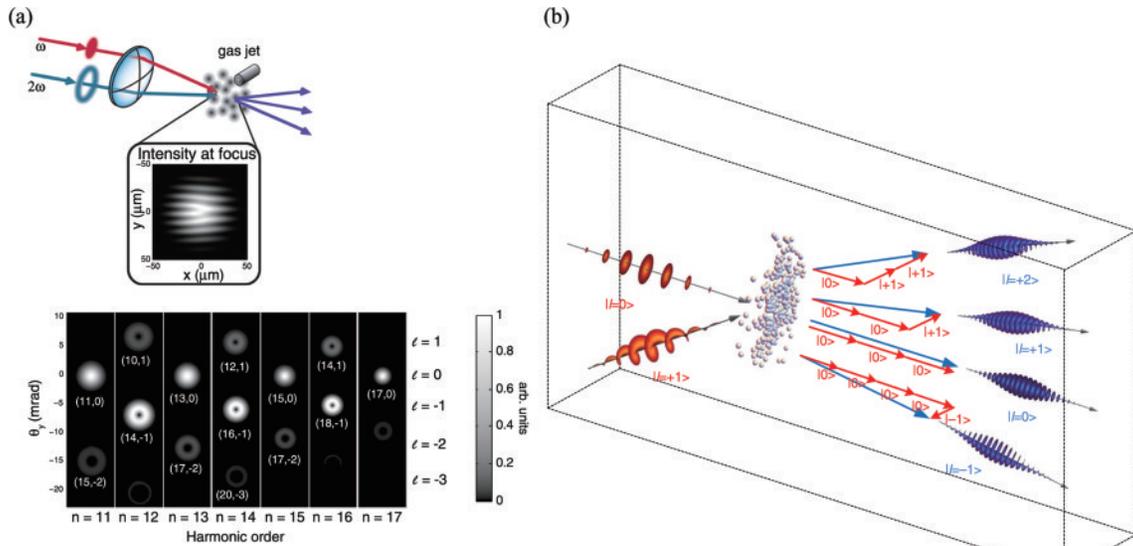


图 5 非共线双光束聚焦产生具有 OAM 的极紫外 HHG 的示意图。(a) 双色激光场模拟<sup>[14]</sup>, 其中基频光为 800 nm 的高斯光束 (峰值强度为  $10^{14} \text{ W/cm}^2$ ), 倍频光为  $l=1$  的涡旋光束 (峰值强度为  $10^{13} \text{ W/cm}^2$ ), 两光束以  $2.3^\circ$  夹角聚焦于氩气喷束中; (b) 实验方案<sup>[43]</sup>, 线偏振 800 nm 的高斯光束 (峰值强度为  $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ ) 与线偏振 800 nm 且  $l=1$  的涡旋光束 (峰值强度为  $2 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ) 以  $40 \text{ mrad}$  夹角聚焦于氩气喷束中

Fig. 5 Diagram of generating extreme ultraviolet HHG with OAM by focusing two non-collinear beams. (a) Two-color laser field simulation<sup>[14]</sup>. An 800 nm Gaussian beam with peak intensity of  $10^{14} \text{ W/cm}^2$  and a 400 nm vortex beam ( $l=1$ ) with peak intensity of  $10^{13} \text{ W/cm}^2$  are focused into argon jet at an angle of  $2.3^\circ$ ; (b) experimental scheme<sup>[43]</sup>. Two linearly-polarized beams (800 nm), where one is a Gaussian beam with peak intensity of  $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  and the other is a vortex beam ( $l=1$ ) with peak intensity of  $2 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ , are focused into argon jet at an angle of  $40 \text{ mrad}$

2019 年 Rego 等<sup>[46]</sup>还发现光具有被称为自转矩的固有属性, 而且这一全新特性是纵向 OAM 守恒的必然结果。他们将拓扑荷相差为  $|l_1 - l_2| = 1$  的两束涡旋光束以特定延迟 (延迟时间与脉冲宽度相当) 聚焦来产生气体 HHG, 如图 6 所示, 他们观察到产生的高次谐波的纵向 OAM 随时间变化, 并将纵向 OAM 随时间的变化率, 即  $\hbar\dot{\xi} = \hbar dl(t)/dt$ , 定义为光的自转矩。自转矩现象不同于将时间上错开的两束涡旋光束简单叠加, 因为后者不能产生新的纵向 OAM 成分, 而自转矩则可以得到  $ql_1 \sim ql_2$  之间全部的拓扑荷。自转矩为光

场调控技术提供了一个全新的自由度, 为控制光与物质的相互作用提供了新的途径。

与 SAM 不同, 纵向 OAM 不能与物质发生偶极相互作用, 只能通过多极相互作用与物质进行角动量交换<sup>[47]</sup>。因此, 光束纵向 OAM 对原子的影响通常微乎其微。目前涉及 HHG 过程中纵向 OAM 守恒的研究都是基于各个原子作为相干辐射源, 发射谐波的相位受驱动场的相位分布控制, 从宏观上在远场叠加得到涡旋 HHG<sup>[42, 48]</sup>。虽然目前已有部分研究表明, 利用相位奇点附近较大的空间相位梯度可以增强物质与涡旋

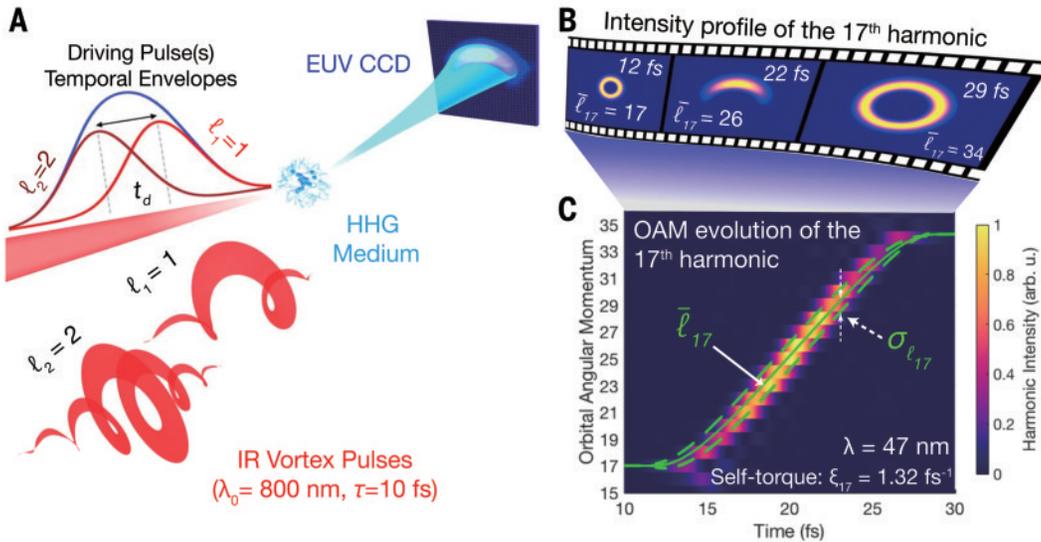


图 6 产生具有自转矩 HHG 的实验方案<sup>[46]</sup>。其中两束线偏振 800 nm 的涡旋光束(拓扑荷分别为  $l=1$  和  $l=2$ )聚焦到气体喷射中, 脉冲宽度和相对时间延迟均为 10 fs

Fig. 6 Experimental scheme for generating HHG with self-torque<sup>[46]</sup>. Two linearly-polarized vortex beams (800 nm) with different topological charges ( $l=1$  and  $l=2$ ) are focused into gas jet. Their pulse widths and relative time delays are 10 fs

光束的相互作用<sup>[49-50]</sup>,但是如何在微观层面实现物质与纵向 OAM 直接的相互作用仍然是一个充满挑战的课题。

### 3.1.3 横向轨道角动量守恒

由于光的横向轨道角动量(ST-OAM)最近几年才在实验上被发现<sup>[51-53]</sup>,因此ST-OAM相关性质的研究仍旧缺乏,特别是有关HHG过程的ST-OAM守恒问题。2021年Fang等<sup>[22]</sup>提出相比于传统的纵向OAM,在时空平面内具有涡旋结构的ST-OAM光束能够同时影响HHG的宏观和微观过程。他们首先计算了单色STOV产生高次谐波的情况,计算结果表明,该过程满足ST-OAM的乘法规则。但由于该情况

下产生的高次谐波存在空间啁啾效应,难以将单一阶次谐波分离出来,于是他们相继采用反向涡旋双色STOV场和反向自旋-反向涡旋双色STOV场作为驱动场进行计算。前者得到的HHG不同模式相互叠加,如图7(a)所示;而后者得到了模式简单且各阶次谐波分离很好的HHG,如图7(b)所示。需要注意的是,虽然该工作同时包含SAM和ST-OAM,但SAM和ST-OAM是分别独立守恒的,因此没有涉及到SOI过程。此外,关于二次谐波产生<sup>[54-55]</sup>以及相对论性HHG<sup>[56-57]</sup>过程中ST-OAM守恒的问题,最近也引起了人们的关注。

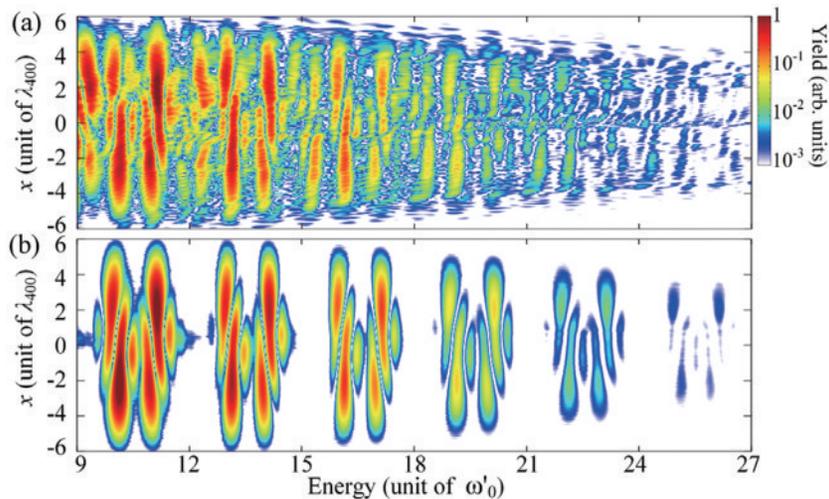


图 7 模拟结果<sup>[22]</sup>。(a) 反向涡旋双色 STOV 场 HHG 光谱图; (b) 反向自旋-反向涡旋双色 STOV 场 HHG 光谱图

Fig. 7 Simulation results<sup>[22]</sup>. (a) HHG spectrum driven by two-color reverse vortex STOV fields; (b) HHG spectrum driven by two-color reverse spin and reverse vortex STOV fields

### 3.2 涉及自旋-轨道相互作用

在 SOI 过程中光的 SAM 与 OAM 存在相互转化, 因此 SAM 和 OAM 的分别独立守恒不再适用, 需要用总角动量守恒来描述<sup>[26]</sup>, 即  $\mathbf{J} = \mathbf{L} + \mathbf{S}$ 。最近, Yi<sup>[28]</sup> 通过计算发现, 圆偏振单色驱动场经相对论振荡窗散射可以得到圆偏振涡旋 HHG。由于 HHG 光子的 SAM 只能为  $\sigma\hbar$ , 而该过程通过 SOI 巧妙地将多余的 SAM  $[(q-1)\sigma\hbar]$  转移给 OAM 从而满足总角动量守恒。然而遗憾的是, 这种通过总角动量守恒产生高次谐波的方式依旧停留在理论层面, 无论是气体 HHG 还是固体 HHG 在这方面都还没有实验进展。

上述讨论是三维系统中的情况, 根据麦克斯韦方程组的旋转对称性, 光场总角动量的量子数为整数。然而在实验当中, 光束通常沿特定的轴线传播, 因此决定光束总角动量的只有光束的二维截面绕光轴的旋转对称性。2016 年 Ballantine 等<sup>[58]</sup> 证实了在二维系统中两个单色圆偏振涡旋场叠加的总角动量可以描述为  $\mathbf{J}_y = \mathbf{L} + \gamma\mathbf{S}$  (也被称为环面纽结角动量), 其中参数  $\gamma = (l_2 - l_1)/2$ , 由于  $\gamma$  可以为整数或半整数, 因此总角动量  $\mathbf{J}_y$  也可以为整数或半整数。2019 年 Pisanty 等<sup>[59]</sup> 将其推广到双色场的情况, 发现双色场的环面纽结角动量可以为任意分数。对于  $\omega_2 = p\omega_1$  的双色场, 参数  $\gamma = (l_2 - pl_1)/(1+p)$ 。环面纽结角动量是光束

SAM 与 OAM 耦合的结果。在几何上, 环面纽结角动量的存在意味着光场绕光轴旋转了  $\theta$  角度, 但偏振状态则旋转了  $\gamma\theta$ , 如图 8 所示。以图 8 第二行第二列为例, 基频场和倍频场的拓扑荷分别为  $l=0$  和  $l=1$ , 相应的  $\gamma = -1/3$ 。可以看出: 在空间上, 双色场电场矢量在光束横截面上的轨迹所构成的“三叶草”绕顺时针方向旋转了  $2\pi/3$ ; 在时间上, 任意一点的偏振状态需要经历三个基频场周期的时间才能复现。2019 年, Pisanty 等<sup>[60]</sup> 和 Dorney 等<sup>[61]</sup> 分别在理论和实验上验证了 HHG 过程中存在环面纽结角动量守恒, 并满足乘法规则  $\mathbf{J}_y^{(q)} = q\mathbf{J}_y^{(1)}$ 。由于需要满足环面纽结角动量守恒, 因此由基频场和倍频场构成的反向自旋-双色涡旋驱动场产生的高次谐波中, 只有满足如下条件的 HHG 通道不会受到抑制:

$$l_q = \frac{q + 2\sigma_q\sigma_1}{3} (l_1 + l_2) - \sigma_q\sigma_1 l_2. \quad (6)$$

当双色场拓扑荷  $l_1 = l_2 = 1$  时, HHG 光谱特点为只存在奇数阶拓扑荷, 且同一阶拓扑荷分别包含左旋和右旋两个阶次的谐波, 而各阶谐波的环面纽结角动量不同, 如图 9(a) 所示。此外, Dorney 等还发现, 通过改变双色驱动场的拓扑荷可以调控 HHG 中 LCP 和 RCP 成分光环的大小, 从而使不同旋向的阿秒脉冲在空间上彼此分离, 如图 9(b) 所示。最近, Minneker 等<sup>[62]</sup> 提

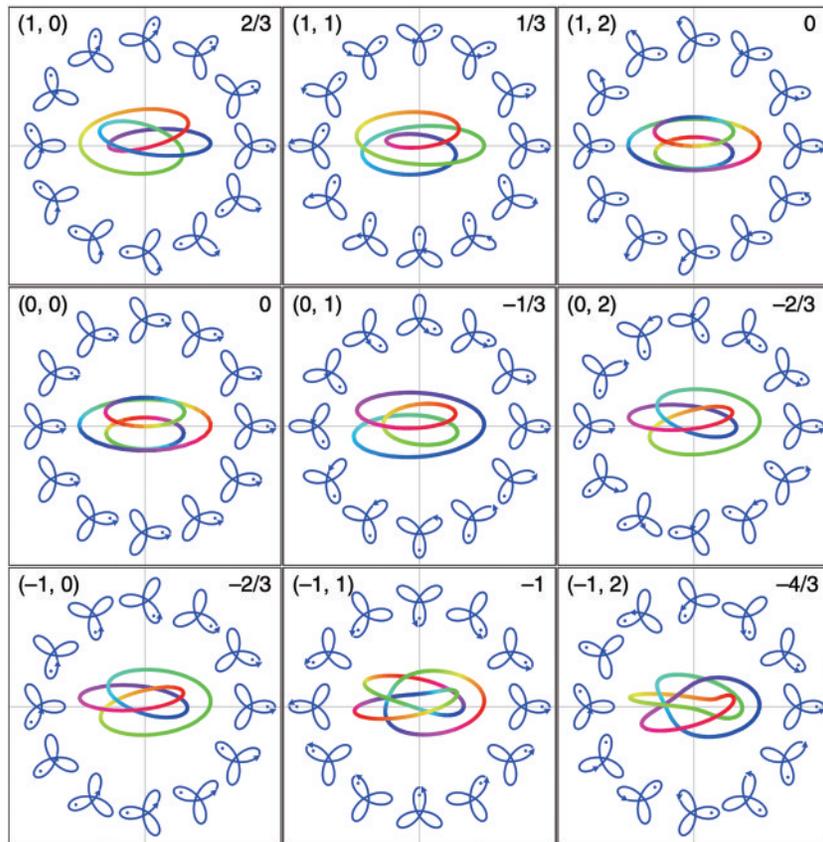


图 8 环面纽结光束横截面上的偏振态<sup>[59]</sup>, 其中每幅图左上角的  $(m_1, m_2)$  分别为基频光  $\omega$  与倍频光  $2\omega$  的拓扑荷, 右上角为相应的参数  $\gamma$   
Fig. 8 Polarization states of torus-knot beams in cross section<sup>[59]</sup>. Numbers  $(m_1, m_2)$  in upper left of each panel are topological charges of  $\omega$  and  $2\omega$  components, and numbers in upper right of each panel are corresponding parameters  $\gamma$

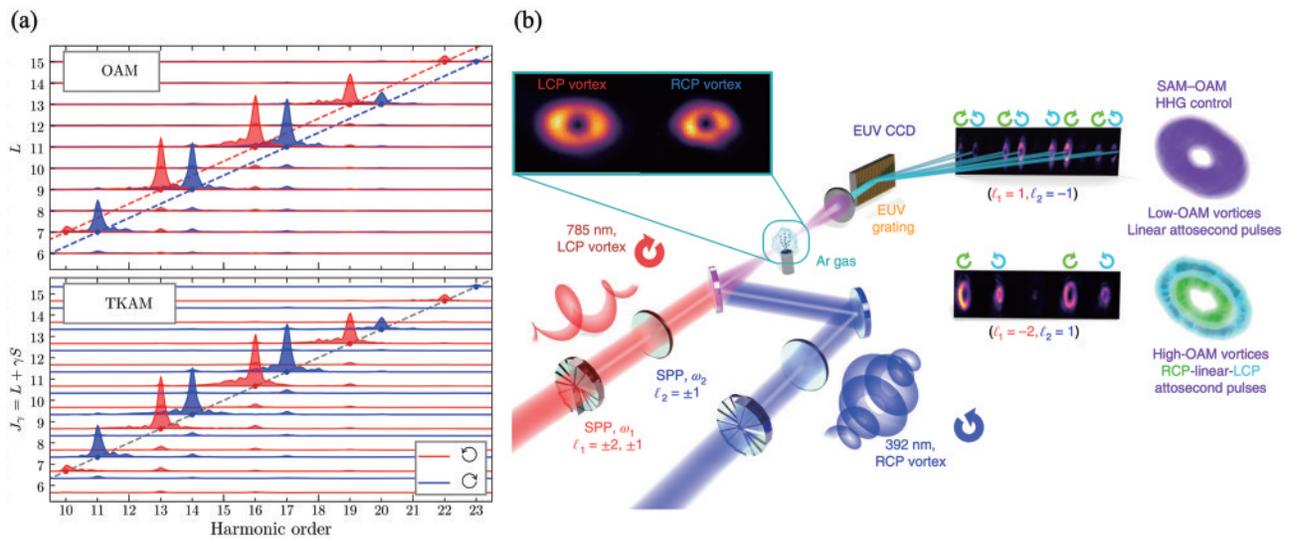


图9 环面纽结构角动量守恒的HHG特征。(a) 反向自旋-同向涡旋双色场HHG光谱<sup>[60]</sup>; (b) 产生空间分离阿秒脉冲的实验方案<sup>[61]</sup>, 其中785 nm的LCP涡旋光束和392 nm的RCP涡旋光束聚焦到气体喷束中, 两束涡旋光束的拓扑荷可通过更换相应的螺旋相位片来进行独立调节

Fig. 9 HHG characteristics in case of conservation of torus-knot angular momentum. (a) HHG spectrum driven by two-color reverse spin vortex fields with  $l_1 = l_2 = 1$ <sup>[60]</sup>; (b) experimental scheme for generation of spatially separated attosecond pulses<sup>[61]</sup>. Two vortex beams with central wavelengths around 785 nm (LCP) and 392 nm (RCP) are focused into gas jet, and their topological charges are adjusted by replacing corresponding spiral phase plates independently

出了一种基于几何方法来解释HHG过程中的环面纽结构角动量守恒的理论模型。

## 4 结束语

本文重点介绍了基于光场调控技术产生具有SAM和OAM的高次谐波的研究进展。限于主题和篇幅, 一些关于矢量光束HHG的研究<sup>[39,63-65]</sup>没有展开介绍。然而偏振可调的极紫外和X射线光源对于研究磁性材料、纳米结构以及手性分子来说是必不可少的工具<sup>[66]</sup>。例如一些基于量子化学的理论工作表明, 紫外矢量光束<sup>[67]</sup>和软X射线圆偏振涡旋光束<sup>[50]</sup>可以更有效地进行手性识别。同步辐射光源和自由电子激光器虽然是功能强大的偏振可调光源, 但因结构复杂、价格昂贵, 大大限制了它们的应用。因此利用HHG来直接产生具有复杂偏振和相位结构的极紫外/软X射线超短脉冲对于研究光与物质的相互作用来说是非常重要的手段。

尽管人们在将结构光场应用于HHG的过程中已经取得了丰富的成果, 但目前横向SAM、ST-OAM以及涉及SOI(尤其是SAM与ST-OAM的耦合效应)的HHG过程在实验上仍旧留有大量空白。利用光子的纵向OAM直接调控光与物质相互作用的微观过程也同样富有挑战性。现如今人们对复杂光场的构建和控制能力已经达到了空前的高度, 这必然会使人们在不久的将来观察到光与物质相互作用更为丰富多彩的物理效应。

## 参 考 文 献

[1] Salières P, Le Déroff L, Auguste T, et al. Frequency-

domain interferometry in the XUV with high-order harmonics[J]. Physical Review Letters, 1999, 83(26): 5483-5486.

[2] Cavalieri A L, Müller N, Uphues T, et al. Attosecond spectroscopy in condensed matter[J]. Nature, 2007, 449 (7165): 1029-1032.

[3] Li W, Zhou X B, Lock R, et al. Time-resolved dynamics in N<sub>2</sub>O<sub>4</sub> probed using high harmonic generation [J]. Science, 2008, 322(5905): 1207-1211.

[4] Wörner H J, Bertrand J B, Kartashov D V, et al. Following a chemical reaction using high-harmonic interferometry[J]. Nature, 2010, 466(7306): 604-607.

[5] He L X, Sun S Q, Lan P F, et al. Filming movies of attosecond charge migration in single molecules with high harmonic spectroscopy[J]. Nature Communications, 2022, 13(1): 1-9.

[6] Peng P, Mi Y H, Lytova M, et al. Coherent control of ultrafast extreme ultraviolet transient absorption[J]. Nature Photonics, 2022, 16(1): 45-51.

[7] 戴晨, 汪洋, 缪志明, 等. 基于飞秒激光与物质相互作用的高次谐波产生及应用[J]. 激光与光电子学进展, 2021, 58(3): 0300001.

Dai C, Wang Y, Miao Z M, et al. Generation and application of high-order harmonics based on interaction between femtosecond laser and matter[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2021, 58(3): 0300001.

[8] Burnett N H, Baldis H A, Richardson M C, et al. Harmonic generation in CO<sub>2</sub> laser target interaction[J]. Applied Physics Letters, 1977, 31(3): 172-174.

[9] McPherson A, Gibson G, Jara H, et al. Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases[J]. Journal of the Optical Society of

- America B, 1987, 4(4): 595-601.
- [10] Corkum P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization[J]. *Physical Review Letters*, 1993, 71(13): 1994-1997.
- [11] Peng P, Marceau C, Villeneuve D M. Attosecond imaging of molecules using high harmonic spectroscopy [J]. *Nature Reviews Physics*, 2019, 1(2): 144-155.
- [12] Möller M, Cheng Y, Khan S D, et al. Dependence of high-order-harmonic-generation yield on driving-laser ellipticity[J]. *Physical Review A*, 2012, 86(1): 011401.
- [13] Kfir O, Grychtol P, Turgut E, et al. Generation of bright phase-matched circularly-polarized extreme ultraviolet high harmonics[J]. *Nature Photonics*, 2015, 9(2): 99-105.
- [14] Gariépy G, Leach J, Kim K T, et al. Creating high-harmonic beams with controlled orbital angular momentum [J]. *Physical Review Letters*, 2014, 113(15): 153901.
- [15] Poynting J H. The wave motion of a revolving shaft, and a suggestion as to the angular momentum in a beam of circularly polarised light[J]. *Proceedings of the Royal Society of London Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character*, 1909, 82(557): 560-567.
- [16] Beth R A. Mechanical detection and measurement of the angular momentum of light[J]. *Physical Review*, 1936, 50(2): 115-125.
- [17] Allen L, Beijersbergen M W, Spreeuw R J, et al. Orbital angular momentum of light and the transformation of Laguerre-Gaussian laser modes[J]. *Physical Review A*, 1992, 45(11): 8185-8189.
- [18] 钱文日, 张永梅. 利用超表面探测光子轨道角动量的研究进展 [J]. *激光与光电子学进展*, 2022, 59(23): 2300004.  
Qian W R, Zhang Y M. Research progress of detecting orbital angular momentum states of photons through metasurfaces[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2022, 59(23): 2300004.
- [19] Aiello A, Banzer P, Neugebauer M, et al. From transverse angular momentum to photonic wheels[J]. *Nature Photonics*, 2015, 9(12): 789-795.
- [20] Neugebauer M, Banzer P, Bauer T, et al. Geometric spin Hall effect of light in tightly focused polarization-tailored light beams[J]. *Physical Review A*, 2014, 89(1): 013840.
- [21] 曹前, 詹其文. 时空光场调控以及时空光涡旋波包的研究进展(特邀)[J]. *光子学报*, 2022, 51(1): 0151102.  
Cao Q, Zhan Q W. Spatiotemporal sculpturing of light and recent development in spatiotemporal optical vortices wavepackets (invited)[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2022, 51(1): 0151102.
- [22] Fang Y Q, Lu S Y, Liu Y Q. Controlling photon transverse orbital angular momentum in high harmonic generation[J]. *Physical Review Letters*, 2021, 127(27): 273901.
- [23] Wan C H, Chen J, Chong A, et al. Photonic orbital angular momentum with controllable orientation[J]. *National Science Review*, 2022, 9(7): nwab149.
- [24] Bliokh K Y, Rodríguez-Fortuño F J, Nori F, et al. Spin-orbit interactions of light[J]. *Nature Photonics*, 2015, 9(12): 796-808.
- [25] Zhao Y Q, Edgar J S, Jeffries G D M, et al. Spin-to-orbital angular momentum conversion in a strongly focused optical beam[J]. *Physical Review Letters*, 2007, 99(7): 073901.
- [26] Fang Y Q, Han M, Ge P P, et al. Photoelectronic mapping of the spin-orbit interaction of intense light fields [J]. *Nature Photonics*, 2021, 15(2): 115-120.
- [27] Chen J, Yu L H, Wan C H, et al. Spin-orbit coupling within tightly focused circularly polarized spatiotemporal vortex wavepacket[J]. *ACS Photonics*, 2022, 9(3): 793-799.
- [28] Yi L Q. High-harmonic generation and spin-orbit interaction of light in a relativistic oscillating window[J]. *Physical Review Letters*, 2021, 126(13): 134801.
- [29] Brasselet E, Izdebskaya Y, Shvedov V, et al. Dynamics of optical spin-orbit coupling in uniaxial crystals[J]. *Optics Letters*, 2009, 34(7): 1021-1023.
- [30] Long S, Becker W, McIver J K. Model calculations of polarization-dependent two-color high-harmonic generation [J]. *Physical Review A*, 1995, 52(3): 2262-2278.
- [31] Eichmann H, Egbert A, Nolte S, et al. Polarization-dependent high-order two-color mixing[J]. *Physical Review A*, 1995, 51(5): R3414-R3417.
- [32] Fan T T, Grychtol P, Knut R, et al. Bright circularly polarized soft X-ray high harmonics for X-ray magnetic circular dichroism[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2015, 112(46): 14206-14211.
- [33] Qiao Y, Wu D, Chen J G, et al. High-order harmonic generation from  $H_2^+$  irradiated by a co-rotating two-color circularly polarized laser field[J]. *Physical Review A*, 2019, 100(6): 063428.
- [34] Hickstein D D, Dollar F J, Grychtol P, et al. Non-collinear generation of angularly isolated circularly polarized high harmonics[J]. *Nature Photonics*, 2015, 9(11): 743-750.
- [35] Dorney K M, Ellis J L, Hernández-García C, et al. Helicity-selective enhancement and polarization control of attosecond high harmonic waveforms driven by bichromatic circularly polarized laser fields[J]. *Physical Review Letters*, 2017, 119(6): 063201.
- [36] Shao R Z, Zhai C Y, Zhang Y F, et al. Generation of isolated circularly polarized attosecond pulses by three-color laser field mixing[J]. *Optics Express*, 2020, 28(11): 15874-15884.
- [37] Medišauskas L, Wragg J, van der Hart H, et al. Generating isolated elliptically polarized attosecond pulses using bichromatic counterrotating circularly polarized laser fields[J]. *Physical Review Letters*, 2015, 115(15): 153001.
- [38] Fang Y Q, Liu Y Q. Optimal control over high-order-harmonic ellipticity in two-color cross-linearly-polarized laser fields[J]. *Physical Review A*, 2021, 103(3): 033116.
- [39] Wätzel J, MultipolarBerakdar J., polarization-shaped high-order harmonic generation by intense vector beams

- [J]. *Physical Review A*, 2020, 101(4): 043409.
- [40] Zürich M, Kern C, Hansinger P, et al. Strong-field physics with singular light beams[J]. *Nature Physics*, 2012, 8(10): 743-746.
- [41] Généaux R, Camper A, Auguste T, et al. Synthesis and characterization of attosecond light vortices in the extreme ultraviolet[J]. *Nature Communications*, 2016, 7(1): 1-6.
- [42] Hernández-García C, Picón A, San Román J, et al. Attosecond extreme ultraviolet vortices from high-order harmonic generation[J]. *Physical Review Letters*, 2013, 111(8): 083602.
- [43] Kong F Q, Zhang C M, Bouchard F, et al. Controlling the orbital angular momentum of high harmonic vortices[J]. *Nature Communications*, 2017, 8(1): 1-6.
- [44] Rego L, Román J S, Picón A, et al. Nonperturbative twist in the generation of extreme-ultraviolet vortex beams[J]. *Physical Review Letters*, 2016, 117(16): 163202.
- [45] Li S S, Shen B F, Zhang X M, et al. Conservation of orbital angular momentum for high harmonic generation of fractional vortex beams[J]. *Optics Express*, 2018, 26(18): 23460-23470.
- [46] Rego L, Dorney K M, Brooks N J, et al. Generation of extreme-ultraviolet beams with time-varying orbital angular momentum[J]. *Science*, 2019, 364(6447): eaaw9486.
- [47] Babiker M, Bennett C R, Andrews D L, et al. Orbital angular momentum exchange in the interaction of twisted light with molecules[J]. *Physical Review Letters*, 2002, 89(14): 143601.
- [48] Hernández-García C, Pérez-Hernández J A, Ramos J, et al. High-order harmonic propagation in gases within the discrete dipole approximation[J]. *Physical Review A*, 2010, 82(3): 033432.
- [49] De Ninno G, Wätzel J, Ribič P R, et al. Photoelectric effect with a twist[J]. *Nature Photonics*, 2020, 14(9): 554-558.
- [50] Ye L Z, Rouxel J R, Asban S, et al. Probing molecular chirality by orbital-angular-momentum-carrying X-ray pulses[J]. *Journal of Chemical Theory and Computation*, 2019, 15(7): 4180-4186.
- [51] Jhajj N, Larkin I, Rosenthal E W, et al. Spatiotemporal optical vortices[J]. *Physical Review X*, 2016, 6(3): 031037.
- [52] Hancock S W, Zahedpour S, Goffin A, et al. Free-space propagation of spatiotemporal optical vortices[J]. *Optica*, 2019, 6(12): 1547-1553.
- [53] Chong A, Wan C H, Chen J, et al. Generation of spatiotemporal optical vortices with controllable transverse orbital angular momentum[J]. *Nature Photonics*, 2020, 14(6): 350-354.
- [54] Hancock S W, Zahedpour S and Milchberg H M. Second-harmonic generation of spatiotemporal optical vortices and conservation of orbital angular momentum[J]. *Optica*, 2021, 8(5): 594-597.
- [55] Gui G, Brooks N J, Kapteyn H C, et al. Second-harmonic generation and the conservation of spatiotemporal orbital angular momentum of light[J]. *Nature Photonics*, 2021, 15(8): 608-613.
- [56] Chen Z Y, Hu R H, Zhang S, et al. Relativistic high-order harmonic generation of spatiotemporal optical vortices[J]. *Physical Review A*, 2022, 106(1): 013516.
- [57] Zhang L G, Ji L L, Shen B F. Intense harmonic generation driven by a relativistic spatiotemporal vortex beam[J]. *High Power Laser Science and Engineering*, 2022, 10: e46.
- [58] Ballantine K E, Donegan J F, Eastham P R. There are many ways to spin a photon: half-quantization of a total optical angular momentum[J]. *Science Advances*, 2016, 2(4): e1501748.
- [59] Pisanty E, Machado G J, Vicuña-Hernández V, et al. Knotting fractional-order knots with the polarization state of light[J]. *Nature Photonics*, 2019, 13(8): 569-574.
- [60] Pisanty E, Rego L, San Román J, et al. Conservation of torus-knot angular momentum in high-order harmonic generation[J]. *Physical Review Letters*, 2019, 122(20): 203201.
- [61] Dorney K M, Rego L, Brooks N J, et al. Controlling the polarization and vortex charge of attosecond high-harmonic beams via simultaneous spin - orbit momentum conservation[J]. *Nature Photonics*, 2019, 13(2): 123-130.
- [62] Minneker B, Böning B, Weber A, et al. Torus-knot angular momentum in twisted attosecond pulses from high-order harmonic generation[J]. *Physical Review A*, 2021, 104(5): 053116.
- [63] Hernández-García C, Turpin A, Román J S, et al. Extreme ultraviolet vector beams driven by infrared lasers[J]. *Optica*, 2017, 4(5): 520-526.
- [64] Kong F, Zhang C, Larocque H, et al. Vectorizing the spatial structure of high-harmonic radiation from gas[J]. *Nature Communications*, 2019, 10(1): 1-6.
- [65] Kong F, Zhang C, Larocque H, et al. Spin-constrained orbital-angular-momentum control in high-harmonic generation[J]. *Physical Review Research*, 2019, 1(3): 032008.
- [66] 谢端, 银燕, 周泓宇. 基于强激光与等离子体波导激发高亮度、圆偏振高次谐波理论[J]. *光学学报*, 2022, 42(21): 2114001.
- Xie D, Yin Y, Zhou H Y. Theoretical investigation of high-brightness and circularly polarized high order harmonics excited by intense laser and plasma waveguide[J]. *Acta Optica Sinica*, 2022, 42(21): 2114001.
- [67] Ye L Z, Yang L Q, Zheng X, et al. Enhancing circular dichroism signals with vector beams[J]. *Physical Review Letters*, 2021, 126(12): 123001.