

引用格式: LI Zhijiang, WANG Guoli, JIAO Zhihong, et al. Control of Polarization States of Atomic High-order Harmonic Generation[J]. Acta Photonica Sinica, 2021, 50(6):0602002

李志江, 王国利, 焦志宏, 等. 原子发射高次谐波偏振态的调控[J]. 光子学报, 2021, 50(6):0602002

原子发射高次谐波偏振态的调控

李志江¹, 王国利¹, 焦志宏¹, 李小勇², 周效信¹

(1 西北师范大学 物理与电子工程学院, 兰州 730070)

(2 西北民族大学 电气工程学院, 兰州 730070)

摘 要: 利用分裂算符法数值求解二维含时薛定谔方程研究了 He 原子在反旋双色组合激光场(由椭圆极化的基频场与圆极化的三倍频场构成)中产生高次谐波的偏振特性。研究结果表明, 改变基频场的椭圆率、强度及相位可实现对高次谐波偏振态从圆偏振到椭圆偏振以及线偏振的完全调控, 为实验室产生偏振态可控的紫外-软 X 射线光源提供了参考。

关键词: 高次谐波; 反旋双色激光场; 偏振态; 调控

中图分类号: O562.4

文献标识码: A

doi: 10.3788/gzxb20215006.0602002

Control of Polarization States of Atomic High-order Harmonic Generation

LI Zhijiang¹, WANG Guoli¹, JIAO Zhihong¹, LI Xiaoyong², ZHOU Xiaoxin¹

(1 College of Physics and Electronic Engineering, Northwest Normal University, Lanzhou 730070, China)

(2 Electrical Engineering College of Northwest University for Nationalities, Northwest Minzu University, Lanzhou 730070, China)

Abstract: The polarization of high-order harmonics radiated from He driven by counter-rotating two-color laser field, which consists of a elliptically polarized fundamental field and its counter-rotating circular third harmonic pulse, are investigated by numerically solving the two-dimensional time-dependent Schrödinger equation with split operator method. The simulations show that the polarization state of harmonics can be fully controlled from circular polarization, through elliptically, to linearly polarized harmonics, by adjusting the ellipticity, intensity and phase of the fundamental field. This research is helpful for the generation of extreme utilityvehicle and X-ray sources with controllable polarization states in the experiment.

Key words: High-order harmonics; Counter-rotating two-color laser field; Polarization state; Control

OCIS Codes: 020.2649; 020.4180; 190.2620; 140.7090; 320.7120

0 引言

将强激光作用于惰性气体出现的一种重要的非线性现象是可以辐射出宽频的高能光子—高次谐波^[1]。单原子发射高次谐波的过程可以根据半经典三步模型^[2]来理解: 最外层电子首先通过隧穿电离变为自由电子, 随后在激光场的作用下运动, 最后当激光场变向时自由电子返回至母核并被母离子俘获同时向外辐射出高次谐波。高次谐波的特点是具有很宽的频谱(其波段可覆盖紫外一直到软 X 射线), 并有很好的空间相干性, 且已在相干衍射成像^[3]、提取原子分子结构信息^[4]、超快手性分子的识别^[5-6]、时间分辨的磁圆二向色

基金项目: 国家自然科学基金(Nos. 11864037, 91850209, 11765018, 11964033), 西北师范大学基金(No. NWNNU-LKQN-17-1)

第一作者: 李志江(1995—), 男, 硕士研究生, 主要研究方向为原子高次谐波产生。Email: 1445805351@qq.com

导师(通讯作者): 王国利(1978—), 男, 教授, 博士, 主要研究方向为强场中高次谐波和太赫兹波产生。Email: wanggl@nwnu.edu.cn

收稿日期: 2021-01-22; 录用日期: 2021-03-01

<http://www.photon.ac.cn>

性^[7-8]等方面表现出了广阔的应用前景;另外,利用高次谐波还可以获得极短的阿秒脉冲,是目前实验室产生阿秒脉冲的最有效途径之一^[9-10],因此高次谐波作为一种小型相干的短波光源或超短脉冲光源引起了人们极大的兴趣。

极化是电磁波的一种基本属性,如何产生任意偏振态的高次谐波是一个基本而又重要的问题。对于可见光而言,已有比较成熟的方法用以产生线偏振光、椭圆偏振光和圆偏振光(如利用晶体起偏器、波片等),但是对于波长更短的电磁波,如真空紫外直至软X射线的电磁波而言,要想得到任意偏振态的电磁波并不十分容易^[11]。而原子发射高次谐波的频率范围刚好就在该频段范围内,通过控制高次谐波的偏振态,就能实现该频段范围内不同偏振态电磁波的输出。对于原子发射高次谐波的偏振态,由高次谐波产生的微观机理可知,高次谐波的产生是一个电子与母核发生重散射的过程,因此谐波的辐射强度强烈依赖于驱动激光的偏振程度,单色线偏振激光驱动下原子产生的线极化谐波场最强,椭圆偏振激光驱动原子能发射椭圆率较小的谐波,且强度很弱,而圆偏振激光则完全无法辐射谐波。对圆偏振的高次谐波则需利用反向旋转的双色圆偏振激光驱动原子来实现。1995年,一些研究小组证明了利用双色双圆飞秒激光场(由圆偏振基频激光场与其二次谐波场构成,二者电矢量的旋转方向相反)可以产生很强的谐波辐射^[12-14]。2014年,实验证实了反向旋转的双色圆偏振激光场产生的高次谐波偏振态为圆偏振^[15]。因此双圆组合场与原子、分子的作用成为强场物理的一个新的热点研究领域^[16-17]。一些研究工作也指出采用其它形式的激光场也可能产生较强椭圆极化的谐波,如正交双色双椭圆场^[18-19]、线极化激光结合椭圆激光(偏振平面垂直于线极化矢量)^[20]、圆偏振场与椭圆偏振场构成的组合场^[15,21]等。特别是文献[15]给出了对谐波极化程度进行完全调控的可能性,但所采用的激光场为非倍频组合场,波长分别为800 nm和410 nm,相比由基频场与其谐波场组合而成的激光场而言,该驱动场在实验中实现的难度较大。本文提出利用椭圆偏振的基频场与圆偏振的三次谐波场构成的反旋双色组合场与He原子相互作用,通过改变基频场的椭圆率、强度以及相位可产生任意偏振态的高次谐波。本方案简单易实现,可为高次谐波在成像、光谱学等方面的应用,特别是分子、磁性材料和拓扑绝缘体圆二色性的超快测量提供一种新的光源产生方法。

1 理论方法

研究原子在激光场中辐射的高次谐波可通过求解原子的含时薛定谔方程(Time-Dependent Schrödinger Equation, TDSE)得到。由于驱动激光使得电子运动于二维平面中,为了减小数值计算量,本文采用二维原子模型,但所得结果与求解三维TDSE并无明显差别。在偶极近似和长度规范下,原子的二维TDSE可以写为(除非另有说明,全文都使用原子单位)

$$i \frac{\partial}{\partial t} \psi(x, y, t) = [\hat{H}_0 + \hat{I}(x, y, t)] \psi(x, y, t) \quad (1)$$

式中, \hat{H}_0 是He原子的哈密顿量

$$\hat{H}_0 = -\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} - \frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial y^2} + V(x, y) \quad (2)$$

$\hat{I}(x, y, t)$ 是与时间相关的原子与激光场相互作用项

$$\hat{I}(x, y, t) = -xE_x(t) - yE_y(t) \quad (3)$$

式(2)中 $V(x, y)$ 是He原子的模型势: $V(x, y) = \frac{q}{\sqrt{x^2 + y^2 + a_0}}$,取 $q = -1.5, a_0 = 0.6$ 可得到He原子

初始基态的精确电离势(24.59 eV)。

驱动激光可写为 $E(t) = E_\omega(t) + E_{3\omega}(t)$, $E_\omega(t)$ 和 $E_{3\omega}(t)$ 的具体形式为

$$\begin{aligned} E_\omega(t) &= f(t) E_\omega [\cos(\omega t + \varphi_\omega) \hat{e}_x + \xi \sin(\omega t + \varphi_\omega) \hat{e}_y] / \sqrt{1 + \xi^2} \\ E_{3\omega}(t) &= f(t) E_{3\omega} [\cos(3\omega t + \varphi_{3\omega}) \hat{e}_x - \sin(3\omega t + \varphi_{3\omega}) \hat{e}_y] / \sqrt{2} \end{aligned} \quad (4)$$

即基频场为左旋正椭圆激光,三倍频场为右旋圆偏振激光,其中 ξ 为基频场的椭圆率(ellipticity,定义为电矢量构成椭圆的短轴与长轴大小之比, $0 \leq \xi \leq 1$;若乘以电矢量旋度则称为signed ellipticity, $\xi \in [-1, 1]$); $f(t)$ 是梯形包络,共8个基频场光学周期,其中上升沿和下降沿各为一个周期; φ_ω 与 $\varphi_{3\omega}$ 分别为基频场和倍频

场的相位。在计算中,激光脉冲总强度取为 $2.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$,基频场的波长 $\lambda_\omega = 800 \text{ nm}$,三倍频场的波长 $\lambda_{3\omega} = 267 \text{ nm}$ 。在实验中,通过常用的 Ti:sapphire 激光器并结合 BBO 晶体、1/4 波片等光学元件便可实现上述驱动激光^[15]。

使用虚时演化法得到初始基态的本征值和波函数^[22],通过分裂算符法求解含时薛定谔方程,得到波函数 $\Psi(x, y, t)$ 。根据 Ehrenfest 定理求得在 x 和 y 方向上含时的诱导偶极加速度

$$\begin{aligned} d_{Ax}(t) &= \left\langle \Psi(x, y, t) \left| -\frac{\partial V(x, y)}{\partial x} + E_x(t) \right| \Psi(x, y, t) \right\rangle \\ d_{Ay}(t) &= \left\langle \Psi(x, y, t) \left| -\frac{\partial V(x, y)}{\partial y} + E_y(t) \right| \Psi(x, y, t) \right\rangle \end{aligned} \quad (5)$$

高次谐波功率谱则正比于 $d_A(t)$ 的傅里叶变换的模平方

$$\begin{aligned} P_{Ax}(\omega) &= \left| \frac{1}{t_f - t_i} \frac{1}{\omega^2} \int_{t_i}^{t_f} d_{Ax}(t) e^{-i\omega t} dt \right|^2 \\ P_{Ay}(\omega) &= \left| \frac{1}{t_f - t_i} \frac{1}{\omega^2} \int_{t_i}^{t_f} d_{Ay}(t) e^{-i\omega t} dt \right|^2 \end{aligned} \quad (6)$$

总高次谐波谱 $P_A(\omega)$ 通过 $P_A(\omega) = P_{Ax}(\omega) + P_{Ay}(\omega)$ 计算得到。

对任意阶次谐波辐射作逆傅里叶变换,便可得到该谐波时域的谐波场,进而获得谐波的偏振特性,其中谐波椭圆率 ε 为

$$\varepsilon = \tan\chi \quad (7)$$

$$\sin 2\chi = \sin(2\alpha) \sin\delta \quad (8)$$

$$\tan \alpha = E_y^{\text{THz}} / E_x^{\text{THz}} \quad (9)$$

式中, δ 为 y, x 方向太赫兹辐射的相位差。此处椭圆率已考虑了电矢量的螺旋性, $\varepsilon \in [-1, 1]$ 。

2 结果与讨论

2.1 谐波偏振态与基频激光场椭圆率的依赖关系

首先取两束激光脉冲的强度比为 $I_\omega : I_{3\omega} = 1 : 1$ 、相位 $\varphi_\omega = \varphi_{3\omega} = 0$, 计算基频场取不同椭圆率 ξ 情况下 He 原子产生的谐波辐射,图 1(a) 给出了 ξ 分别为 1.0、0.8、0.6、0.4 和 0.2 时所对应的高次谐波谱。从图中可以看出,不同 ξ 的激光场所辐射出的谐波频率相同,均为 $4q \pm 1$ ($q=1, 2, 3, \dots$), 而且谐波的强度并不会随 ξ 的改变而发生显著的衰减。对不同阶谐波的偏振特性进行分析,得到图 1(b) 的结果,可以看出,谐波椭圆率与 ξ 的取值具有明显的依赖关系。当基频场椭圆率 $\xi = 1$ 时,驱动激光为双圆场,所产生所有阶次谐波的椭圆率均为 ± 1 (即为圆偏振),其中 $4q+1$ 阶谐波与基频场的旋性相同(左旋), $4q-1$ 阶谐波与倍频场的旋性相同(右旋)。当改变 ξ 时,谐波的极化程度也随之改变,如对于第 23 阶谐波(H23)来说, $\xi = 0.8, 0.6, 0.4, 0.2$

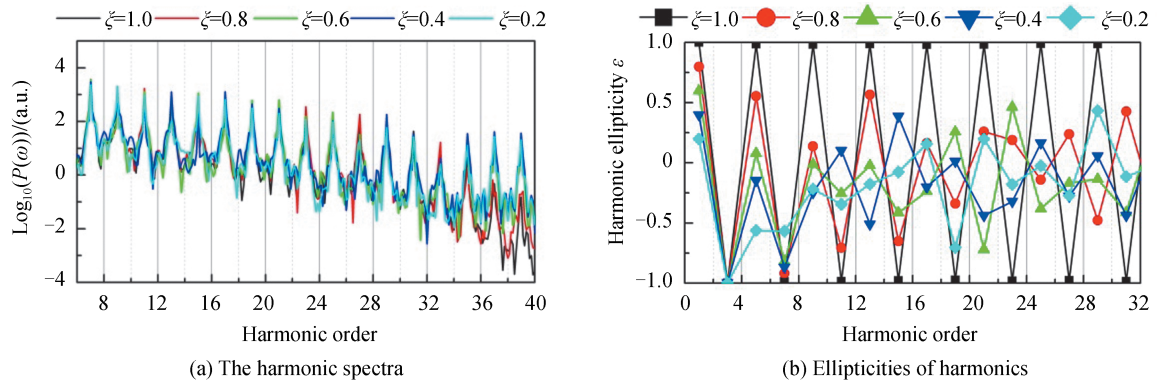


图1 具有不同椭圆率 ξ 的激光场驱动 He 原子产生的谐波辐射

Fig.1 The harmonics generated from He driven by two-color driving pulse with different ξ for fundamental pulse

所对应的谐波椭圆偏率分别为0.19、0.46、-0.32、-0.18。由此可见,通过改变基频场的椭圆偏率,在不明显降低谐波强度的情况下,能够实现谐波极化性质的改变。模拟还发现,对于基频场与其二次谐波构成的组合场来说,也能在一定程度上对谐波的偏振态进行调控,但是随着 ξ 值的增大会出现新频率的谐波^[21],在此不做讨论。

为了清楚地说明 ξ 值对于谐波偏振态的影响,以 $\xi=1.0$ 和0.8为例,对产生的第23阶谐波进行分析,图2(a)~2(d)展示了驱动激光场和23阶谐波的电场分布。由图2(a)和2(b)可以看出,两种激光场并无明显不同,与双圆场 $[\xi=1.0, \text{图} 2(a)]$ 的情况相比, $\xi=0.8$ 时激光场的 y 分量振幅稍有减弱。但是从谐波场来看[图2(c)、2(d)],二者差别明显。对于 $\xi=1.0$, x 、 y 方向谐波的振幅相等, y 方向电矢量振动比 x 方向振动超前 $\pi/2$,合电矢量随时间顺时针旋转。当 $\xi=0.8$ 时, x 、 y 方向谐波振幅差别明显(x 方向远弱于 y 方向), x 方向电矢量振动超前 y 方向约 $\pi/2$,合电矢量随时间逆时针旋转,而且其在 x - y 平面的轨迹为一椭圆。图2(e)给出了更多 ξ 值对应的23阶谐波的电场分布(电矢量在 x - y 平面的投影)。从中可以清楚地看出,通过改变基频场的偏振程度很好地实现了对谐波偏振态的调控:产生了圆偏振、椭圆偏振和线偏振谐波,而且谐波的极化方向和电矢量旋转方向也都可以通过基频场的 ξ 值进行控制。对于线偏振的谐波,并不需要采用线偏振的激光场来驱动。

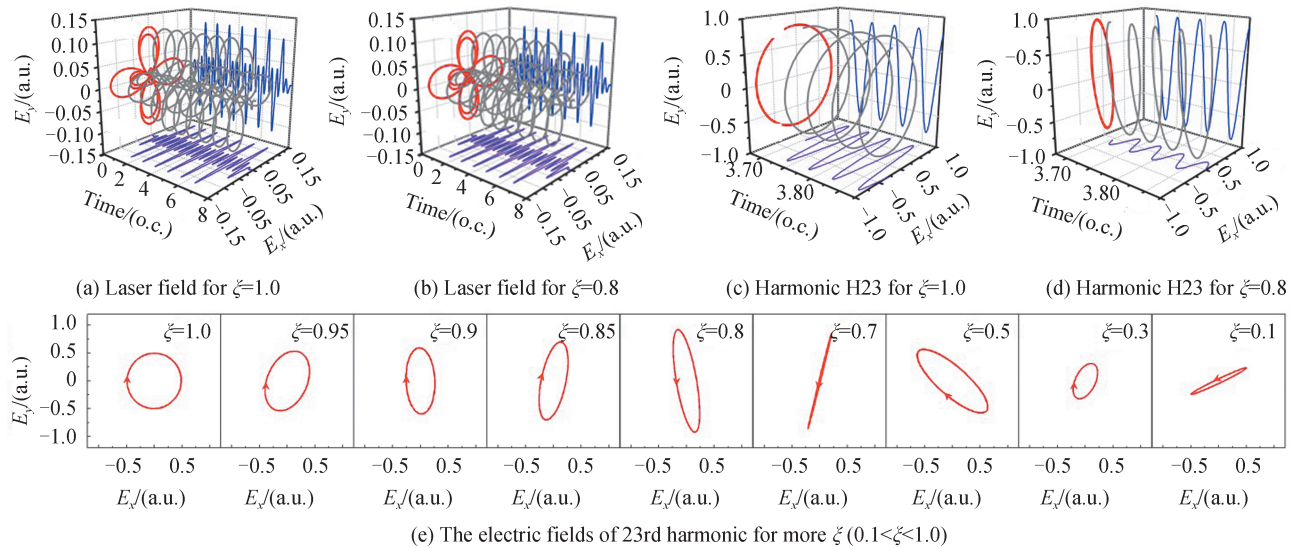
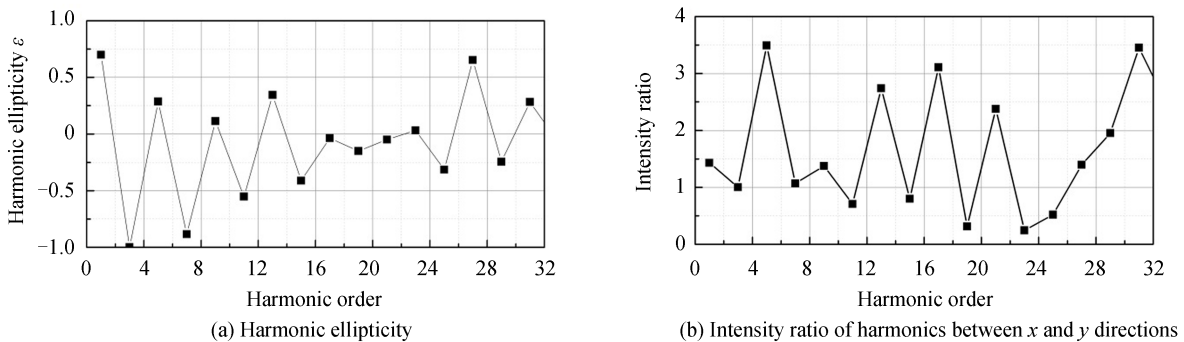


图2 驱动激光场和23阶谐波的电场分布(o.c.为基频场的光学周期)

Fig.2 The waveforms of electric fields for driving laser field and 23rd harmonic (o.c. is the optical cycle of fundamental pulse)

电磁波的偏振态决定于其两个正交分量之间的相位差和强度比。为了理解图2所示谐波偏振调控的原因,以 $\xi=0.7$ 为例,图3给出了该激光场驱动下原子发射谐波的椭圆偏率以及 x 、 y 方向谐波的强度比和位相差。可以看出,两个方向谐波辐射的强度比和相位差都依赖于谐波阶次。当相位差为0(如23阶)或者 π (17阶、21阶)时,谐波为线偏振。若强度比 ~ 1 、相位差 $\sim \pm 0.5\pi$,则谐波为圆偏振(椭圆偏率接近 ± 1 ,第7阶)。同



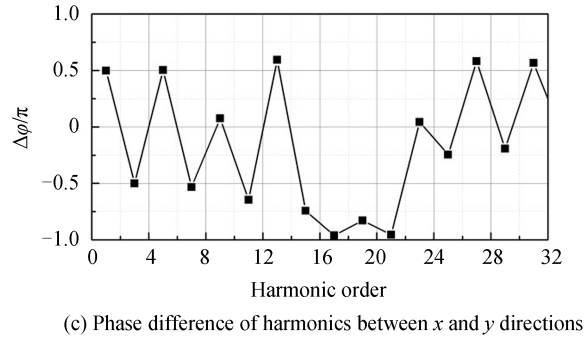

 图3 基频场椭圆率 $\xi=0.7$ 的双色场产生谐波的辐射特性

 Fig.3 The emission characters of harmonics generated by driving laser field with $\xi=0.7$ for fundamental pulse

时, x 、 y 方向谐波的强度比和相位差又依赖于 ξ , 因此可以通过 ξ 调控不同阶次谐波的偏振。

2.2 双色场强度比对谐波偏振态的调控

上面的结果都是在两束激光的强度相等的情况下给出的, 同样, 当两束激光的 x 、 y 方向的电场分量强度不同时, x 和 y 方向谐波的强度比、相位差亦会变化, 也能够实现对高次谐波偏振态的调控, 为此, 计算了两束激光的强度比不同时, 原子所发射高次谐波的偏振情况。图 4(a)、4(b) 分别给出了强度比 $I_\omega : I_{3\omega}$ 分别为 1:1、1:3、1:7 和 1:9 的激光场驱动 He 原子产生的高次谐波谱和对应的谐波椭圆率(基频场 ξ 固定为 0.8, $\varphi_\omega = \varphi_{3\omega} = 0$)。由图可以看出, 减小基频场强度时, 高次谐波的强度变化较小, 但是各阶谐波的偏振程度与强度比 $I_\omega : I_{3\omega}$ 具有较强的依赖关系, 可以通过改变 $I_\omega : I_{3\omega}$ 的大小获得特定谐波椭圆率。数值模拟的结果发现, 增强基频场的相对强度时 ($I_\omega : I_{3\omega} > 1$), 也可控制谐波椭圆率的大小, 但是谐波的强度衰减比较明显(特别是高阶谐波)。图 4(c) 以及图 4(d) 分别展示了第 11 阶和第 19 阶谐波的电场随 $I_\omega : I_{3\omega}$ 的变化情况。可以看出, 改变 $I_\omega : I_{3\omega}$ 时, 谐波可在椭圆偏振和线偏振间任意调控, 而且极化方向和电矢量旋转方向也可以得到控制。需要说明的是, 虽然在由基频场转换三次谐波的过程中, 转换效率通常小于 1, 而在此要求 $I_\omega : I_{3\omega} < 1$, 但是目前的实验技术很容易实现总激光强度远大于本文的强度值 ($2.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$), 因此在产生两束激光后改变它们各自的强度就可以实现本文的强度比方案。

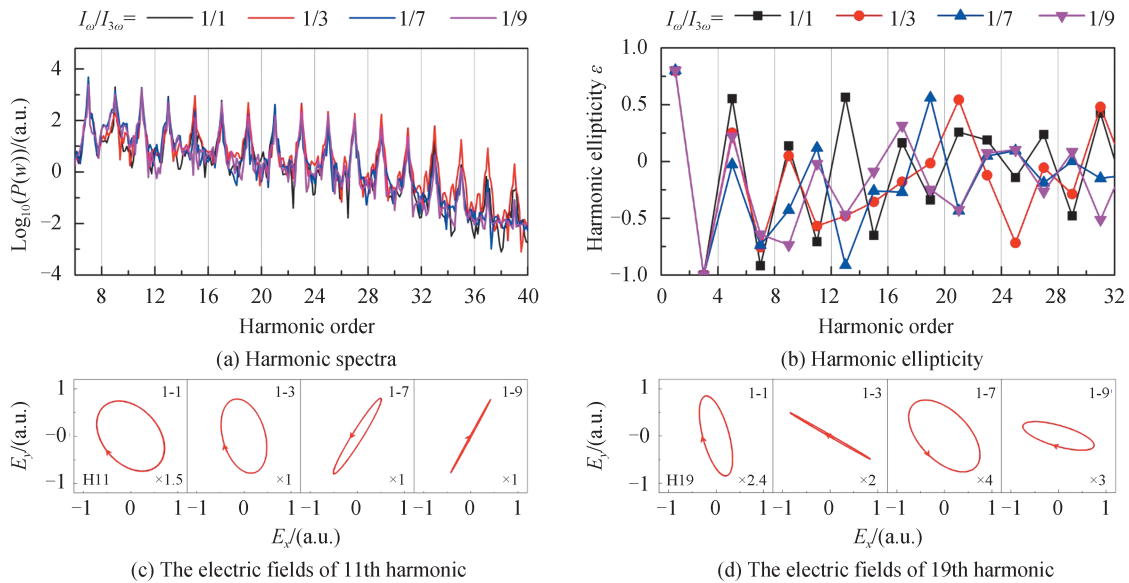

 图4 激光强度比对谐波的影响 ($I_\omega/I_{3\omega}=1:1, 1:3, 1:7, 1:9$)

 Fig.4 The impact of intensity ratio between two incident laser beams on harmonic emission ($I_\omega/I_{3\omega}=1:1, 1:3, 1:7$ and $1:9$)

2.3 通过改变双色场相对相位调控谐波椭圆率 ε

最后, 说明基频场与倍频场的相位也可对谐波偏振态产生影响。图 5 给出了 $\varphi_\omega = 0, \pi/2, \pi, 3\pi/2, 7\pi/4$

时产生谐波的椭圆偏率,其中基频激光场的椭圆偏率 ξ 恒取为0.7,谐波场的相位 $\varphi_{3\omega} = 0$,基频场与倍频激光场的强度比 $I_{\omega}:I_{3\omega}$ 恒为1:1。从图中可以看出任一阶谐波椭圆偏率与双色场之间的相对相位具有较明显的依赖关系,说明通过驱动激光场的相位也可以实现对谐波偏振态的调控。

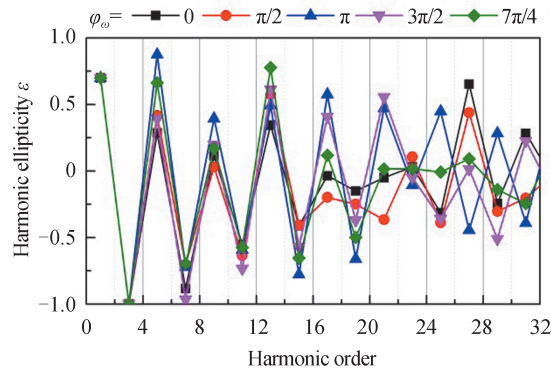


图5 激光相位 φ_{ω} 对谐波椭圆偏率的影响

Fig.5 The influence of laser phase φ_{ω} on ellipticity of harmonics

3 结论

通过数值求解反旋双色激光场驱动原子的含时薛定谔方程,研究了He原子发射高次谐波的特点。研究结果表明,原子在椭圆偏振基频场和圆极化三倍频组合场作用下,通过改变基频场的椭圆偏率,在高次谐波的强度变化不大的情况下,可以调控高次谐波的极化特性,实现具有不同椭圆偏率和极化方向高次谐波的输出,并且分析了高次谐波椭圆偏率变化的特征。此外,通过改变组合场的相对强度及相位也可以有效调控所产生高次谐波的偏振态。通过这种方法能够产生圆偏振、椭圆偏振和线偏振的谐波,从而能够实现从紫外到软X射线频率范围内不同偏振态电磁波的输出。

参考文献

- [1] POPMINTCHEV T, ARPIN D, BROWN S, et al. Bright coherent ultrahigh harmonic in the keV X-ray regime from mid-infrared femtosecond lasers [J]. Science, 2012, 336(6086): 1287-1291.
- [2] KRAUSE J L, SCHAFFER K J, KULANDER K C. High-order harmonic generation from atoms and ions in the high intensity regime[J]. Physical Review Letters, 1992, 68(24): 3535-3538.
- [3] RAVASIO A, GAUTHIER D, MAIA F R N C, et al. Single-shot diffractive imaging with a table-top femtosecond soft x-ray laser-harmonics source[J]. Physical Review Letters, 2009, 103(2): 028104.
- [4] SHINER A D, SCHMIDT B E, TRALLERO-HERRER C, et al. Probing collective multi-electron dynamics in xenon with high-harmonic spectroscopy[J]. Nature Physics, 2011, 7: 464-467.
- [5] CIREASA R, BOGUSLAYSKIY A E, PONS B, et al. Probing molecular chirality on a sub-femtosecond timescale[J]. Nature Physics, 2015, 11(8): 654-658.
- [6] NEUFEID O, COHEN O. Optical chirality in nonlinear optics: application to high harmonic generation [J]. Physical Review Letters, 2018, 120(13): 133206.
- [7] FERRE A, HANDSCHIN C, DUMERGUE M, et al. A table-top ultrashort light source in the extreme ultraviolet for circular dichroism experiments[J]. Nature Photonics, 2014, 9(2): 93-98.
- [8] FAN 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: 14206.
- [9] WANG Xiaowei, WANG Li, XIAO Fan, et al. Generation of 88 as isolated attosecond pulses with double optical gating [J]. Chinese Physical Letters, 2020, 37: 023201.
- [10] XU Chenhui, CHEN Yanbo, HE Liwei, et al. Optimization of two-color chirped laser waveform for extending high-order harmonic cut-off energy and generating isolated attosecond pulse (Invited) [J]. Acta Photonica Sinica, 2020, 49(11): 1149007.
徐晨辉, 陈炎波, 何黎伟, 等. 优化两色啁啾激光波形来拓宽高次谐波截止能量和产生孤立阿秒脉冲(特邀)[J]. 光子学报, 2020, 49(11): 1149007.
- [11] KFIR O, GRYCHTOL P, TURGUT E, et al. Generation of bright phase-matched circularly polarized extreme ultraviolet high harmonics[J]. Nature Photonics, 2015, 9: 99-105.

- [12] EICHMANN H, EGBERT A, NOLTE S, et al. Polarization-dependent high-order two-color mixing [J]. *Physical Review A*, 1995, 51(5): R3414-R3417.
- [13] 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.
- [14] ZUO T, BANDRAUK A D. High-order harmonic generation in intense laser and magnetic fields[J]. *Journal of Nonlinear Optical Physics & Materials*, 1995, 4(3): 533-546.
- [15] FLEISCHER A, KFIR O, DISKIN T, et al. Spin angular momentum and tunable polarization in high-harmonic generation[J]. *Nature Photonics*, 2014, 8: 543-549.
- [16] MILOSEVIC D B. Atomic and molecular processes in a strong bicircular laser field[J]. *Atoms*, 2018, 6(4): 61.
- [17] VENZKE J, GEBRE Y, BECKER A, et al. Pathways to excitation of atoms with bicircular laser pulses[J]. *Physical Review A*, 2020, 101: 053425.
- [18] FLEISCHER A, SIDORENKO P, COHEN O. High-order harmonics of bichromatic counter-rotating elliptically polarized drivers: fully controlled polarization state and novel selection rules [C]. *Lasers & Electro-Optics*, 2013: QW1A.6.
- [19] MILOSEVIC D B, BECKER W. High-order harmonic generation by bi-elliptical orthogonally polarized two-color fields [J]. *Physical Review A*, 2020, 102: 023107.
- [20] FLEISCHER A, SIDORENKO P, COHEN O. Generation of high-order harmonics with controllable elliptical polarization[J]. *Optics Letters*, 2013, 38(2): 223-225.
- [21] ZHU Mufeng, WANG Gouli, ZHAO Songfeng, et al. Generating attosecond pulses with high ellipticity by use of He atoms[J]. *Journal of Modern Optics*, 2019, 66(14): 1467-1475.
- [22] BIAN Xuebin. Photoionization of atoms and molecules studied by the Crank-Nicolson method[J]. *Physical Review A*, 2014, 90(3): 033403.