

含有径向节点的拉盖尔-高斯光束产生涡旋高次谐波的特征

汪倍羽, 韩嘉鑫, 金 成

(南京理工大学理学院, 江苏南京 210094)

摘要: 利用红外超快涡旋激光脉冲与气体介质相互作用可以产生携带轨道角动量的极紫外高次谐波。采用含有径向节点的拉盖尔-高斯 (LG) 光束作为驱动光, 利用定量重散射模型计算单原子响应, 通过求解谐波场在介质中传播的三维麦克斯韦方程以及在傍轴近似下的惠更斯积分, 分别获得近场和远场高次谐波的强度和相位分布。结果表明: 随着驱动光的径向节点数增加, 高次谐波的强度分布呈现多环结构, 相位分布上出现节点结构, 强度分布的空间范围在近场减小, 而在远场增大。相位匹配分析显示, 短轨道和长轨道高次谐波的空间相干长度分布图对驱动激光的模式非常敏感, 与高次谐波场在气体介质内的演化图像定性一致, 解释了有径向节点的 LG 光束作用下产生的涡旋高次谐波的特征。
关键词: 高次谐波; 拉盖尔-高斯光束; 径向节点; 相位匹配; 长短轨道
中图分类号: O437 **文献标志码:** A **DOI:** 10.3788/IRLA20210895

Features of vortex high harmonics generated by the Laguerre-Gaussian beam with nonzero radial node

Wang Beiyu, Han Jiabin, Jin Cheng

(School of Science, Nanjing University of Science and Technology, Nanjing 210094, China)

Abstract: High harmonic generation (HHG) with orbital angular momentum in the extreme ultraviolet could be produced by the interaction between vortex ultrafast infrared laser pulse and gas medium. In this paper, Laguerre-Gaussian (LG) beam with nonzero radial node was used as the driving laser. And through computing the single-atom response with the quantitative rescattering model, distributions of intensity and phase of HHG in the near and far fields were obtained by solving the three-dimensional Maxwell's equation in the medium and the Huygens' integral in the paraxial approximation, respectively. With the increase of the radial node in the driving laser, it is indicated that the distribution of HHG intensity shows the multiple-ring structure, the radial-node structure appears in the distribution of HHG phase, and the spatial region of intensity distribution is decreased in the near field, but increased in the far field. The phase-matching analysis showed that maps of spatial coherence length of short- and long-trajectory HHG are very sensitive to the mode of driving laser, qualitatively consistent with the maps of evolution of HHG field inside gas medium, which explained the features of vortex HHG under the LG beam with nonzero radial node.

Key words: high harmonic generation (HHG); Laguerre-Gaussian (LG) beam; radial node; phase matching; long and short trajectories

收稿日期: 2021-11-20; 修订日期: 2021-12-10

基金项目: 国家自然科学基金 (91950102, 11774175, 11834004)

作者简介: 汪倍羽, 女, 硕士生, 主要从事涡旋阿秒光源方面的研究。

导师简介: 金成, 男, 教授, 博士生导师, 博士, 主要从事强场物理和阿秒科学方面的研究。

0 引言

1992 年, Allen 等人的实验结果揭示了拉盖尔-高斯 (LG) 光束具有独立于自旋角动量 (SAM) 的轨道角动量 (OAM)^[1]。角向节点数为 l 和径向节点数为 p 的 LG 光束具有螺旋相位和螺旋波前。波前围绕传播轴的方位角的相位变化为 $2\pi l$, 每一个光子带有 $l\hbar$ 的轨道角动量 (\hbar 为约化普朗克常数), l 也称为拓扑荷数, 螺旋相位波前使得光束在中央产生相位奇点, 从而形成了空心的光强分布。具有轨道角动量的 LG 光束已经被应用到许多不同的领域^[2-5], 如光学操作、空间光通信、量子编码等。

在红外和可见光谱范围内, 可以利用光学元件产生具有 OAM 的光束, 但是同样的技术很难产生极紫外 (XUV) 或软 X 射线 (SXR) 波段范围内的涡旋光束^[6]。利用红外或中红外波段范围内的超快涡旋激光脉冲与气体或者固体相互作用, 可以产生波长在 XUV 或者 SXR 范围内的高次谐波^[7-8], 因此, 如何有效产生携带 OAM 的涡旋高次谐波光源就成为了近年来实验上关注的热点问题^[9]。第一个相关实验由 Zürich 等在 2012 年完成, 实验中产生的具有低拓扑荷数的 XUV 涡旋光的相位不随谐波阶数而改变^[10]。之后, Garipey 等用干涉测量技术测量了 XUV 涡旋光的相位, 证明了高次谐波的 OAM 满足轨道角动量守恒定律, 与谐波阶数成正比^[11]。此外, R. Géneaux 和 Kong 等利用两束具有不同波长和携带不同 OAM 的非平行激光脉冲作为驱动光源来调控高次谐波的拓扑荷数^[12-13]。其他一些实验研究还集中在标定阿秒尺度的涡旋脉冲^[14]、产生 OAM 随时间变化的 XUV 涡旋光^[9]、分解 XUV 高次谐波中的涡旋模式^[15] 和考察极紫外高次谐波的涡旋光束特性^[16] 等问题。

近年来, 理论上也密切关注 XUV 波段内涡旋高次谐波的产生和性质等问题。2013 年, Hernandez-Garcia 等计算了 LG 光束产生的不同阶次高次谐波与驱动光 OAM 之间的倍数关系以及它们相似的发散角^[17]。2016 年, Rego 等理论研究了非纯模式的 LG 光束激发的高次谐波, 揭示了 XUV 波段范围内 OAM 谱的非微扰行为^[18]。2018 年, Willi 等利用双色反螺旋 LG 光束产生具有一定 OAM 的高次谐波, 之后, 相干叠加不同偏振态的 LG 光束产生高次谐波并控制其携带

的 OAM 值^[19], 还计算了具有非零轨道角动量的线偏振 LG 光束产生高次谐波的相位匹配图像^[20]。最近, Jin 等通过求解高次谐波场在气体介质内的三维麦克斯韦方程, 揭示了 LG 光束驱动产生高次谐波的相位匹配机制^[21]。然而, 在上述理论研究中, LG 驱动光束的径向节点数均为 0, 主要关注它的轨道角动量 (或角向节点数 l) 对高次谐波产生过程的影响。文中研究在 LG 驱动光束的径向节点数不为 0 时产生的涡旋 XUV 高次谐波的特点, 同时, 利用相位匹配图像来分析不同径向节点数对高次谐波在气体介质内相位匹配机制的影响。

1 理论方法

1.1 高次谐波场在气体介质中的传播

产生高次谐波的驱动光为线性偏振的单色 LG 光束, 因此, 涡旋高次谐波场是线性偏振的。当气体压强较小和激光强度较低时, 介质对高次谐波的吸收效应和自由电子的色散效应可以忽略, 高次谐波的电场分量在介质中的演化可用麦克斯韦方程来描述:

$$\nabla^2 E_h(x, y, z, t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E_h(x, y, z, t)}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 P_{nl}(x, y, z, t)}{\partial t^2} \quad (1)$$

式中: $E_h(x, y, z, t)$ 为高次谐波的电场。 $P_{nl}(x, y, z, t)$ 为非线性极化率, 可表示为:

$$P_{nl}(x, y, z, t) = [n_0 - n_e(x, y, z, t)] D(x, y, z, t) \quad (2)$$

$$n_e(t) = n_0 \left\{ 1 - \exp \left[- \int_{-\infty}^t w(\tau) d\tau \right] \right\} \quad (3)$$

式中: n_0 为中性粒子密度; n_e 为自由电子密度; $w(\tau)$ 为隧道电离率; $D(x, y, z, t)$ 为驱动激光作用下产生的诱导偶极矩。

通过求解公式 (1), 得到在气体介质出口面上 (近场) 高次谐波场的电场分量, 其在真空中的传播过程利用惠更斯积分来进行计算, 得到远场高次谐波的电场分量 (包括强度和相位)。

1.2 定量重散射 (QRS) 模型

在偶极近似下, 利用 QRS 模型来精确和高效地计算局域激光场作用下的诱导偶极矩, 即公式 (2) 中的 $D(t)$ 。在 QRS 模型中, 诱导偶极矩 $D(\omega)$ 在频域上表达 [对 $D(t)$ 做傅里叶变化即可得到 $D(\omega)$], 表示为:

$$D(\omega) = \sqrt{N} W(\omega) d(\omega) \quad (4)$$

式中: N 为电离率; $d(\omega)$ 为光复合跃迁偶极矩阵元; $W(\omega)$ 为返回波包。公式 (4) 是诱导偶极矩的普遍表

示形式,适用于不同的计算模型,比如数值求解含时薛定谔方程 (TDSE) 或者强场近似 (SFA) 模型,其中 $d(\omega)$ 与气体原子的结构相关, $W(\omega)$ 只与激光的性质有关,因此,相同激光作用下不同模型中计算的 $W(\omega)$ 都是一致的。在应用 QRS 模型时,为减少计算量,通常利用 SFA 模型来计算 $W(\omega)$, 诱导偶极距可表示为:

$$D^{qrs}(\omega) = D^{sfa}(\omega) \sqrt{\frac{N^{qrs} d^{qrs}(\omega)}{N^{sfa} d^{sfa}(\omega)}} \quad (5)$$

式中: $D^{sfa}(\omega)$ 为 SFA 模型下得到的诱导偶极距; $d^{sfa}(\omega)$ 为假定连续态为平面波时得到的光复合跃迁矩阵元; N^{sfa} 和 N^{qrs} 为分别利用 SFA 模型和 ADK 模型计算的电离几率 (激光脉冲结束时); $d^{qrs}(\omega)$ 可以在单个活性电子近似 (SAE) 下通过求解不含时的薛定谔方程获得准确的束缚态和连续态波函数而计算得到。

1.3 拉盖尔-高斯光束表达式

在傍轴和横向振幅的缓变近似下, LG 光束的电场可以表示为^[21]:

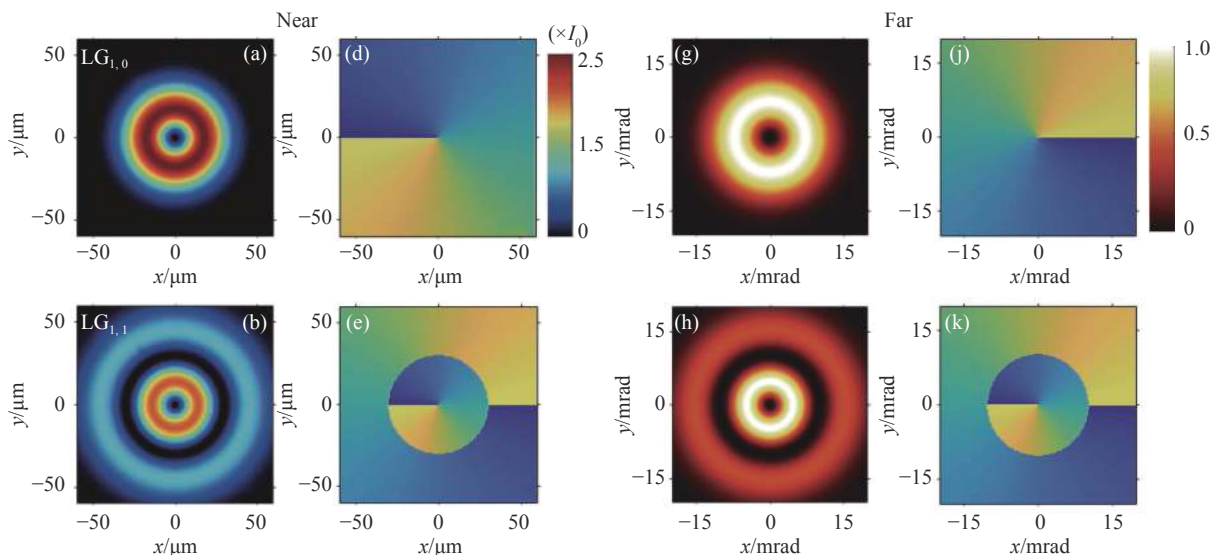
$$LG_{l,p}(r, \phi, z') = E_0 \frac{w_0}{w(z')} \left(\frac{r}{w(z')} \right)^{|l|} L_p^{|l|} \left(\frac{2r^2}{w^2(z')} \right) \exp\left(-\frac{r^2}{w^2(z')}\right) \times \exp\left(-ik_0 \frac{r^2}{2R(z')} - i\zeta(z') - il\phi\right) \quad (6)$$

式中: w_0 为光束在焦平面上的光腰; $w(z') = w_0 \sqrt{1 + (z'/z_0)^2}$ 为随着传播距离 z' 变化的光束宽度; z_0 为瑞利长度; λ_0 为驱动光波长; $L_p^{|l|}$ 为拉盖尔多项式; $R(z') = z' [1 + (z_0/z')^2]$ 为波前的曲率半径; $\zeta(z') = -(|l| + 2p + 1) \arctan(z'/z_0)$ 为古依相移, 其中 l 为角向节点数; p 为径向节点数 (由于该式是在移动坐标系下, 所以 LG 光束电场表达

式中的相位 $e^{-ik_0 z}$ 被省略)。

选择三个不同模式的 LG 光束, 即 $LG_{1,0}$ 、 $LG_{1,1}$ 和 $LG_{1,2}$, 分别作为驱动光束来产生高次谐波, 波长固定为 800 nm, 光腰 w_0 设定为 25 μm , 激光脉冲宽度 (半高全宽) 设为 26.7 fs (10 个 800 nm 激光的光学周期)。假定气体介质内原子密度均匀分布, 沿传播方向的长度为 1 mm, 气体介质的中心放置于激光焦点之后 2 mm 处, 三种 LG 光束在气体介质中心截面上最强环的峰值强度都固定为 $1.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 。

调节公式 (6) 中的电场 E_0 , 可以得到三种不同模式的 LG 光束的强度和相位分布图, 如图 1 所示。左边两列为光束在 $z' = 0 \text{ mm}$ (即激光聚焦平面, 又称为近场) 的形态, 右边两列分别为光束在 $z' \rightarrow \infty$ (即远场) 的强度和相位的平面分布。由图 1 可以看出, $p = 0$ 时, 近场 LG 光束的强度分布为单一的圆环形状, 如图 (a) 所示; 随着 p 增加, 光束的强度分布从单环状逐渐增加到多环状, 环数为 $p + 1$, 同时, 强度最大环的半径逐渐减小, 见图 (b) 和 (c)。在远场时, 不同 p 值下 LG 光束的强度分布与其近场分布一致, 环数没有改变, 见图 (g)~(i)。由此还可以看出, 由于 $l = 1$, 近场 LG 光束的相位随角度 ϕ 的变化为 2π , p 不等于 0 时, 相邻环之间的相位跳变为 π , 见图 (d)~(f)。不同 p 值下远场 LG 光束的相位分布与其近场分布相似, 但是相差一个常数值。从公式 (6) 可知, 光束从 $z' = 0 \text{ mm}$ 自由传播到 $z' \rightarrow \infty$, 额外增加的相位为 $-\zeta(z')$, 当角向节点数 l 固定为 1, 不同 p 值下相位的增加量不同, 当 $p = 0$ 时, 相位从图 (d)~(j) 增加了 π , 当 $p = 1$ 时, 相位增加量为



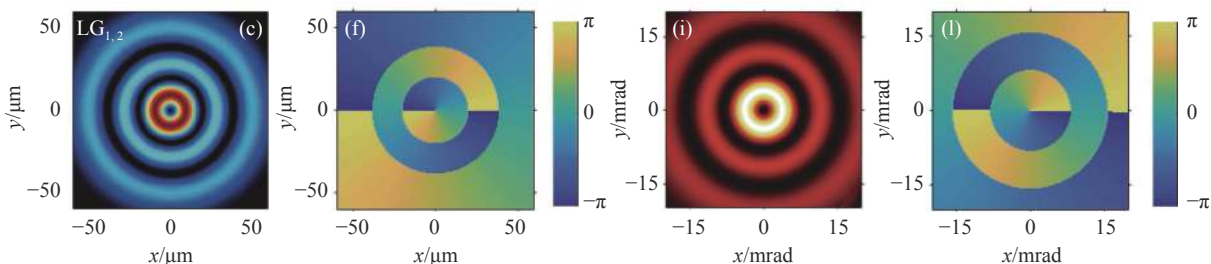


图 1 三种不同模式的 LG 光束在近场和远场的强度和相位分布图。(a)~(c) 为近场 ($z = 0$ mm) 的强度, 单位为 $I_0 = 10^{14}$ W/cm²; (d)~(f) 为相位; (g)~(i) 为远场 ($z = \infty$) 的强度; (j)~(l) 为相位, 强度进行了归一化, 相位定义在 $[-\pi, \pi]$ 范围内

Fig.1 Distributions of laser intensity and phase in the near and far fields for three LG beams with different modes. (a) - (c) Near-field ($z = 0$ mm) intensity, the unit is $I_0 = 10^{14}$ W/cm²; (d) - (f) Phase; (g) - (i) Far-field ($z = \infty$) intensity; (j) - (l) Phase, the intensity has been normalized, the phase is defined within $[-\pi, \pi]$

2π , 当 $p = 2$ 时, 相位增加量为 3π , 见图 (k) 和 (l)。

2 拉盖尔-高斯光束产生的高次谐波

选用氩原子气体作为产生高次谐波的气体介质, 利用单原子高次谐波的截止能量公式:

$$\hbar\omega = I_p + 3.17U_p \quad (7)$$

式中: I_p 为原子的电离势; U_p 为有质动力能, 可知强度

为 1.5×10^{14} W/cm², 波长为 800 nm 的激光产生的高次谐波的截止能量为 44.15 eV (即阶数为 31)。选择平台区的 15 和 23 次谐波和截止区的 31 次谐波, 分别考察不同模式的 LG 光束产生的谐波强度和相位的空间分布。

图 2 给出了 15 次谐波在近场 (即气体介质出射表面) 和远场 (即距离气体介质足够远的收集光谱

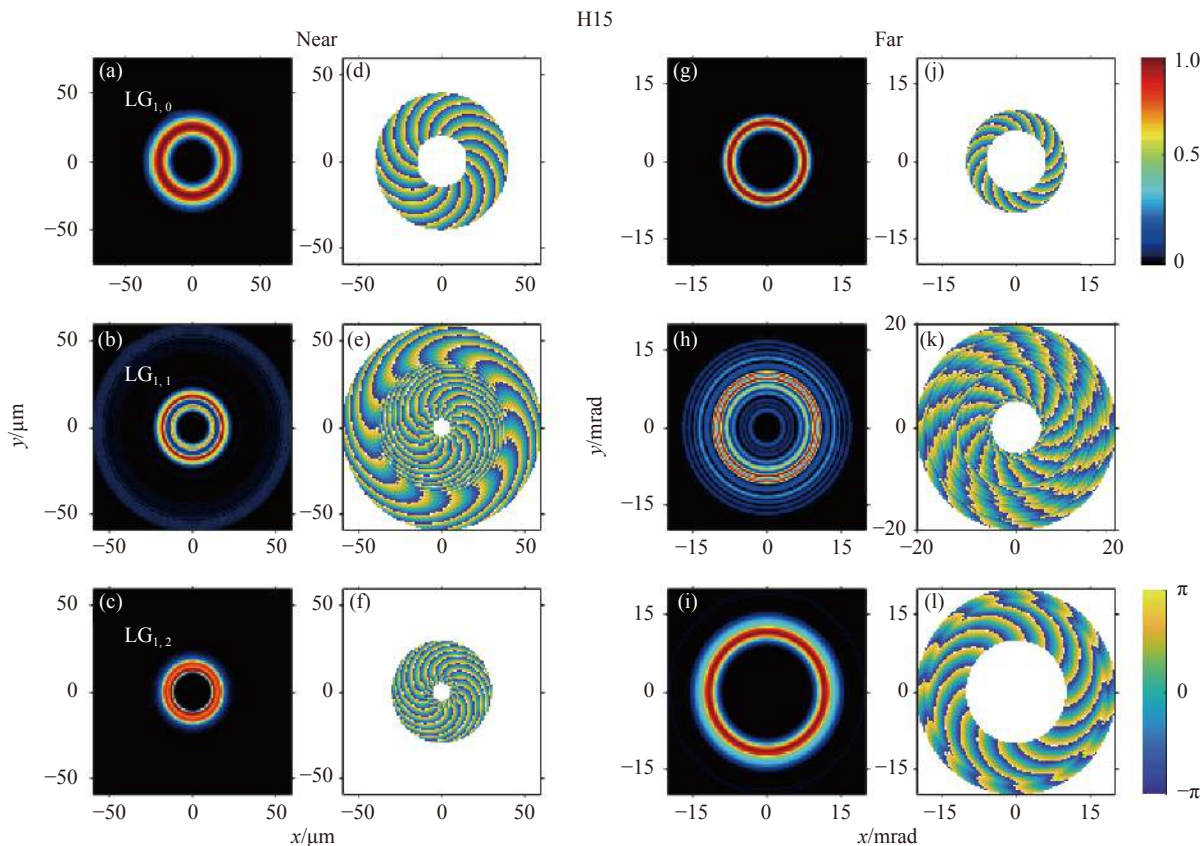


图 2 三种不同模式的拉盖尔-高斯光束产生的第 15 阶次谐波在近场和远场的强度和相位的空间分布

Fig.2 Spatial distributions of intensity and phase of the 15th harmonic generated by the three different modes of LG beams in the near and far fields

处)的强度和相位分布图。对比图(a)~(c)可以看到, $LG_{1,0}$ 作用下 15 次谐波发射的最强环的半径约为 $25\ \mu\text{m}$, $LG_{1,1}$ 作用下约为 $18\ \mu\text{m}$, $LG_{1,2}$ 作用下约为 $15\ \mu\text{m}$, 随着径向节点数的增加, 谐波发射最强环的半径逐渐减小。同时, $LG_{1,0}$ 作用下的谐波强度分布在近场为单环结构, 相位沿径向方向连续变化, 见图(d); $LG_{1,2}$ 作用下也有相似的单环结构, 但是强度半径却小于 $LG_{1,0}$ 产生的谐波, 相位在径向上也是连续变化, 见图(f)。二者在远场的强度分布呈现出单环结构, 见图(g)和(i), 相位分布比较规则, 见图(j)和(l); 另外, 由于古依相位的影响, 远场相位的分布呈现出与近场不同的结构, 如 $LG_{1,0}$ 作用下谐波在近场的顺时针相位分布会改变为远场的逆时针相位分布。对于 $LG_{1,1}$ 驱动光下的谐波, 近场的强度分布在图(b)的半径较小范围内呈现多环结构, 而在真空中传播到远场之后, 由于谐波场的聚焦效应导致的古依相移和长、短轨道之间的干涉, 远场谐波强度的分布呈现更加复杂的结构, 见图(h)。近场和远场的相位分布沿径向方向均呈现出不连续的结构, 见图(e)和(k), 这是光场中含有多个

径向节点的典型特征。在有或者无径向节点的 LG 光束条件下, 15 次谐波的相位在行进一周的变化量都是 30π , 即为驱动激光的 15 倍。

图 3 给出了 23 次谐波在近场和远场的强度和相位分布图。在图(a)~(c)中, $LG_{1,0}$ 作用下谐波强度最强环的半径约为 $25\ \mu\text{m}$, $LG_{1,1}$ 作用下约为 $20\ \mu\text{m}$, 而 $LG_{1,2}$ 作用下则处于最内部, 约为 $15\ \mu\text{m}$, 体现出和 15 阶次谐波同样的规律, 即随着驱动激光径向节点数的增加, 谐波强度的最强环半径逐渐减小。 $LG_{1,0}$ 作用下的谐波强度分布依旧保持单环结构, 相位在径向上连续变化, 见图(d); 而 $LG_{1,1}$ 和 $LG_{1,2}$ 作用下的谐波强度分布则呈现复杂的多环结构, 相位在径向上出现了不连续变化的特征, 见图(e)和(f)。在远场时, 由于谐波光束的发散特性, 近场聚焦紧会导致在远场发散大, 因此, 随着驱动光径向节点数增加, 远场谐波强度分布范围从图(g)~(i)逐渐增加。从这些图还可以看出, $LG_{1,0}$ 作用下的远场谐波分布保持单环结构, $LG_{1,1}$ 作用下出现多环结构且只有一个最强环, 而 $LG_{1,2}$ 作用下不仅出现更大范围的多环结构, 而且出

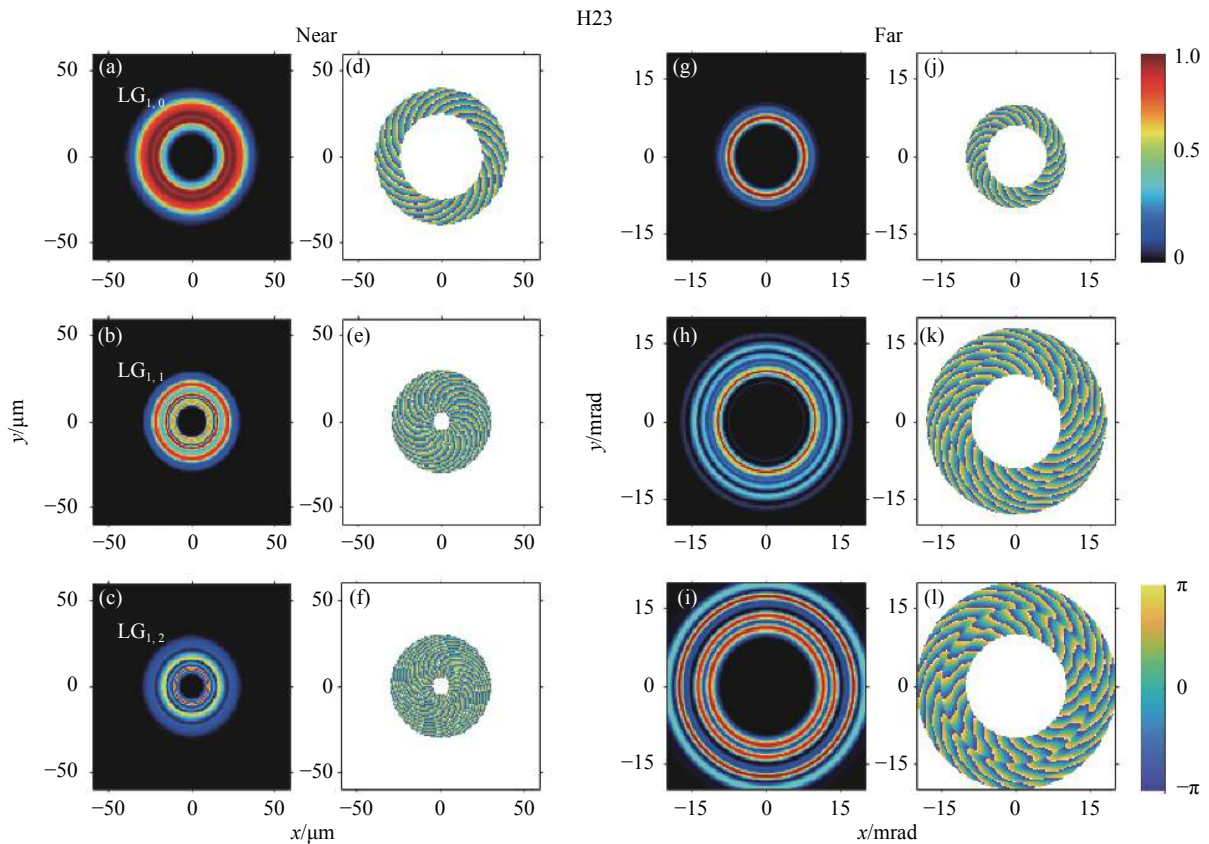


图 3 三种不同模式的拉盖尔-高斯光束产生的第 23 阶谐波在近场和远场的强度和相位的空间分布

Fig.3 Spatial distributions of intensity and phase of the 23th harmonic generated by the three different modes of LG beams in the near and far fields

现多个强度相似的环。图 (j)~(l) 中相位分布与强度分布中的节点结构一致。

截止区的 31 次谐波的强度和相位分布情况如图 4 所示。近场时,在图 (a) 和 (d) 中, $LG_{1,0}$ 作用下的谐波强度依旧保持着单环结构和相位在径向方向的连续分布,而图 (b) 中, $LG_{1,1}$ 作用下的谐波强度在半径为约 $18 \mu\text{m}$ 出现最强单环,在半径在 $18\sim 40 \mu\text{m}$ 范围内存在强度较小的连续环结构,在相位分布图 (e) 中没有明显节点结构,表明谐波强度分布实际是单环结构,中间环强度远大于外环。 $LG_{1,2}$ 作用下的谐波强度分布的环状结构与 $LG_{1,1}$ 类似。远场时,在图 (g) 和 (j) 中, $LG_{1,0}$ 作用下的谐波保持和近场相似

的单环强度分布以及无径向节点结构的相位分布,而图 (h) 中 $LG_{1,1}$ 作用下的谐波强度呈现出多环结构,其中最强环出现在半径约为 13 mrad 处,图 (i) 中, $LG_{1,2}$ 作用下的谐波强度分布多环结构中,最强环出现在半径约为 15 mrad 处,多环结构变变更明显,分布范围更大。

综上,当谐波强度分布出现多环结构时,相应的相位分布在径向则会产生突变,表现为典型的节点结构。随着驱动光径向节点数的增加,近场高次谐波强度的最强环半径减小,在远场中高次谐波强度分布呈现复杂的多环结构且最强环半径增加。

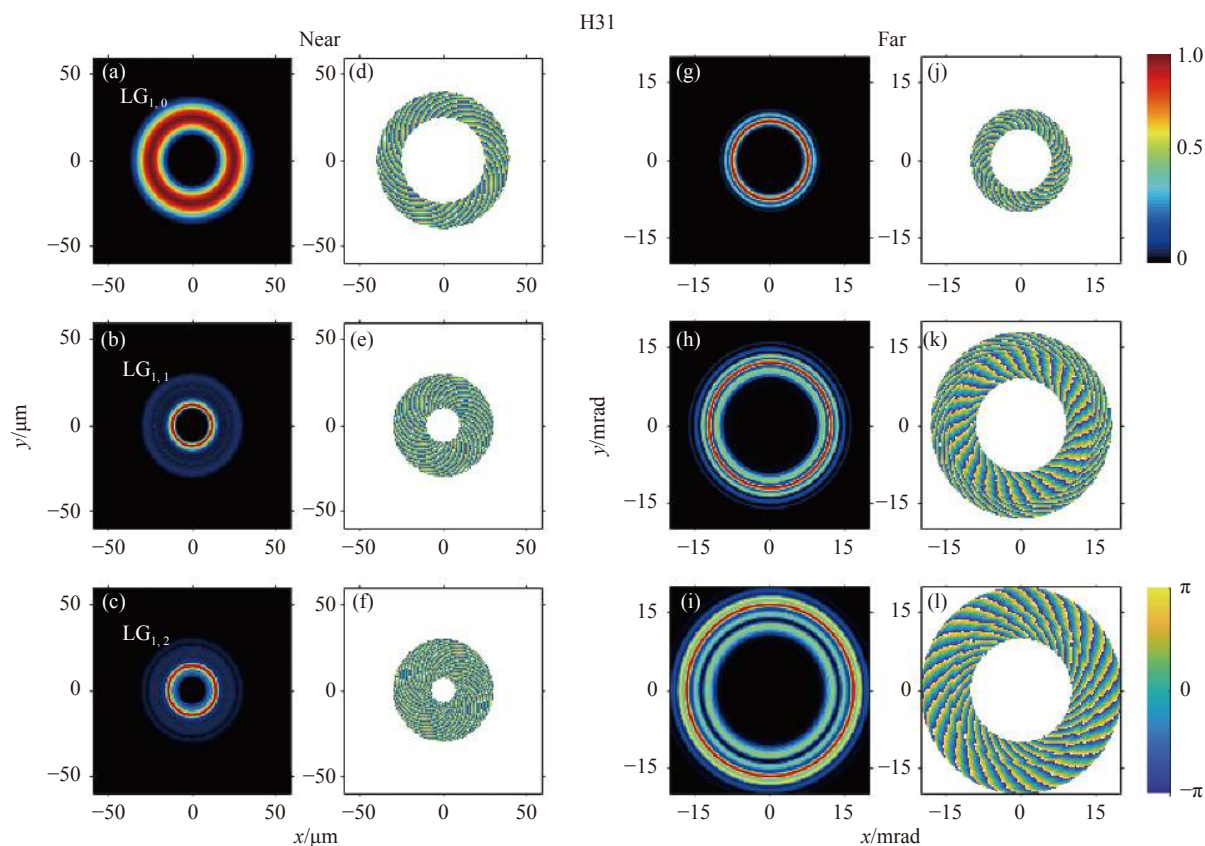


图 4 三种不同模式的拉盖尔-高斯光束产生的第 31 阶次谐波在近场和远场的强度和相位的空间分布

Fig.4 Spatial distributions of intensity and phase of the 31th harmonic generated by the three different modes of LG beams in the near and far fields

3 高次谐波在介质中的相位匹配分析

3.1 高次谐波的相位匹配公式

为了分析高次谐波在介质中的相位匹配,在低气体压强和低电场强度下,只考虑驱动光的空间相位和

单原子响应中电子运动积累的相位对相位匹配的贡献,忽略其余相位的贡献,如中性原子色散和等离子体自散焦效应等。

第 q 阶次谐波与驱动激光之间的相位失配量为:

$$\delta k_q(r, z) = k_q - |qk_1 + K| \quad (8)$$

$$K(r, z) = \nabla \varphi_{q,dip}(r, z) \quad (9)$$

$$\varphi_{q,dip}(r, z) = -\alpha_i^q I(r, z) \quad (10)$$

式中： $k_q = q\omega_0/c$ 为 q 阶次谐波的波矢量； k_1 为 LG 光束波矢量； $K(r, z)$ 为单原子响应； $I(r, z)$ 是空间分布的激光强度； α_i^q 与电子运动轨道相关，在平台区的 15 和 23 次谐波时 $\alpha_{i=S}^q \approx 1 \times 10^{-14} \text{ rad} \cdot \text{cm}^2/\text{W}$ ， $\alpha_{i=L}^q \approx 24 \times 10^{-14} \text{ rad} \cdot \text{cm}^2/\text{W}$ ，在截止区的 31 次谐波时 $\alpha_{i=S,L}^q \approx 13.7 \times 10^{-14} \text{ rad} \cdot \text{cm}^2/\text{W}$ 。

相干长度定义为^[21]：

$$L_{q,coh}(r, z) = \frac{\pi}{|\delta k_q(r, z)|} \quad (11)$$

3.2 高次谐波的相干长度图

在文中计算中气体介质的长度为 1 mm，因此，当相干长度大于或等于气体介质长度时，高次谐波的强

度在介质内持续增加，达到相位匹配良好的条件。相干长度大于或等于 1 mm 在图 5 和图 6 中统一用黄色表示。

图 5 给出了不同模式的 LG 光束作用下，在单原子响应中分别只考虑短轨道或长轨道贡献时，平台区的 15 阶次和 23 阶次谐波的相干长度在气体介质空间中的变化情况。由图 5 (a) 和 (b) 可以看出，LG_{1,0} 光束驱动下的 15 阶次和 23 阶次谐波在气体介质的作用范围内 (即 $z = 1.5 \sim 2.5 \text{ mm}$) 短轨道具有较好的相位匹配，都由黄色区域环绕了椭圆形浅蓝色区域。考虑到激光强度的空间分布，见图 6 (d)， $r = 25 \mu\text{m}$ 附近由于良好的相位匹配条件，短轨道谐波的发射效率高，对应于图 2 (a) 和图 3 (a) 中的谐波强度分布的单环结构。随着驱动激光径向节点数的增加，在图 5 (c)~(f) 中，LG_{1,1} 和 LG_{1,2} 光束驱动下短轨道谐波在 $z =$

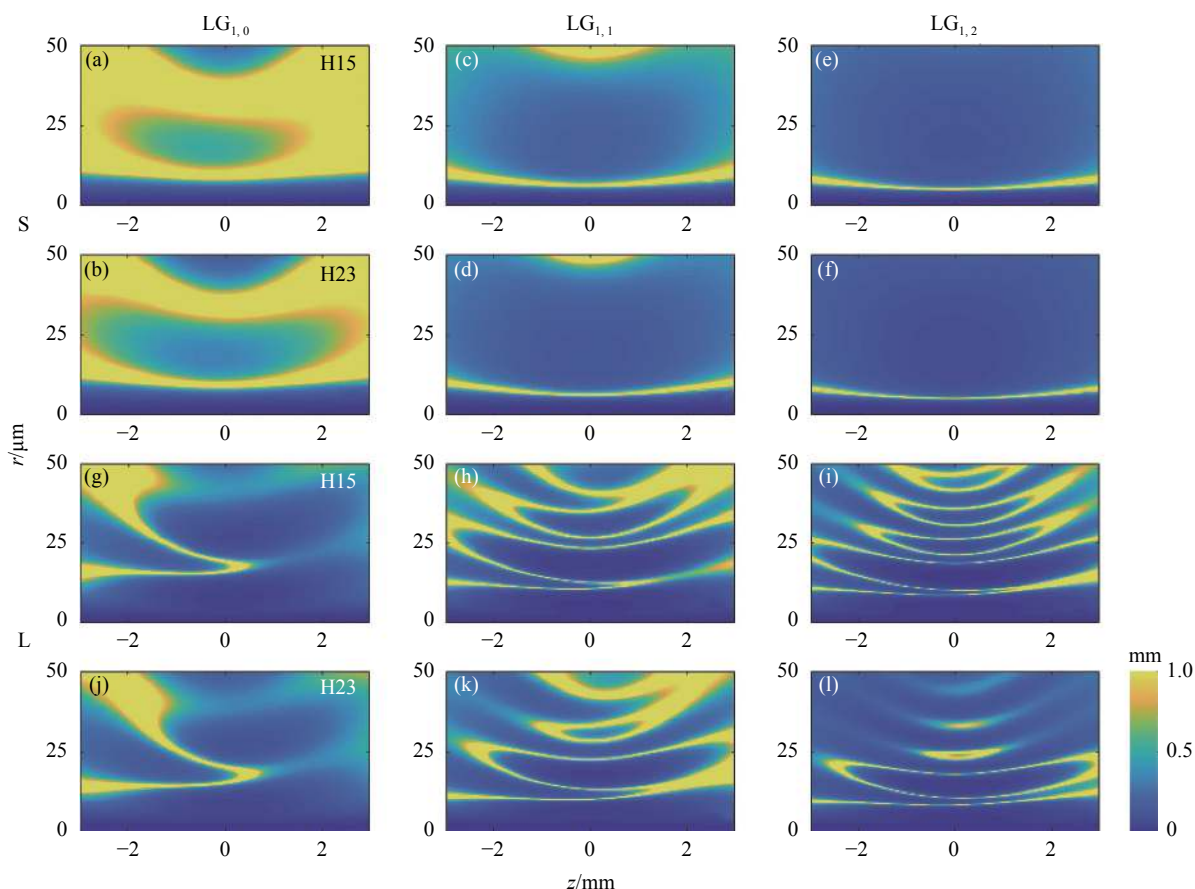


图 5 不同模式的拉盖尔-高斯光束产生的第 15 (H15) 和第 23 (H23) 阶次谐波的相干长度空间分布图。前两行和后两行分别是短轨道和长轨道谐波的相干长度图。黄色表示谐波的相干长度大于或等于 1 mm

Fig.5 Spatial distributions of coherence length of the 15th and 23th harmonics generated by the different modes of LG beams. The first two rows and the last two rows are shown the coherence lengths for short and long trajectories, respectively. Yellow color means the coherence length of harmonic is equal to or larger than 1 mm

1.5 ~ 2.5 mm 范围内相位匹配的区域大大减小,且相位匹配良好区域集中在近轴区域。比较图 5 (c) 和 (e) 可以看出, $LG_{1,1}$ 作用下在 $r = 10 \mu\text{m}$ 左右黄色区域比 $LG_{1,2}$ 作用下宽,即相位匹配条件好。随着谐波阶数的增长,相位匹配良好的区域变得更加狭窄,见图 5 (d) 和 (f)。对比图 2 (b) 和 (c) 或者图 3 (b) 和 (c) 可以发现, $LG_{1,1}$ 作用下近场谐波的分布范围比 $LG_{1,0}$ 小,却比 $LG_{1,2}$ 大,这和短轨道谐波相位匹配的图像一致。

近场谐波强度的分布和谐波与驱动光在气体介质内相位匹配的情况相关。在驱动光与气体介质相互作用的空间区域内,当相位匹配条件不良时,新产生的谐波场与之前产生的谐波场会发生相消干涉,导致谐波场的强度无法积累;当相位匹配的条件良好时,新产生的谐波场与在气体介质中传播的谐波场发生相长干涉,使得谐波场的强度不断增加。随着驱动光径向节点数的增加,谐波与驱动光之间的相位失配量增大,表现为图 5 中的相干长度减小,导致不同径

向节点数下获得的近场谐波强度的分布不同。

由图 5 (g) 和 (j) 可以看出,虽然 $LG_{1,0}$ 光束作用下长轨道谐波在 $z = 1.5 \sim 2.5 \text{ mm}$, $r = 25 \mu\text{m}$ 附近的相位匹配条件较差,但是长轨道谐波的发射效率要远大于短轨道,因此,长轨道谐波对于近场的谐波产生也会有一定贡献。在图 5 (h)~(l) 中, $LG_{1,1}$ 和 $LG_{1,2}$ 光束作用下的长轨道谐波在气体介质的作用范围内有多个相位匹配良好的区域,呈现为黄色区域包围椭圆状蓝色区域,与图 2 (b) 和 (c) 以及图 3 (b) 和 (c) 中谐波强度分布的多环结构相对应。图 5 中,不管是在短轨道还是长轨道情况下, $LG_{1,1}$ 作用下的 15 阶次和 23 阶次的相位匹配情况都优于 $LG_{1,2}$,结合 $LG_{1,1}$ 和 $LG_{1,2}$ 两个激光束在空间分布的差异,见图 6 (e) 和 (f),因此 $LG_{1,1}$ 产生的高次谐波强度的空间分布范围大于 $LG_{1,2}$ 。由于长轨道和短轨道产生的高次谐波之间会发生干涉,并且两者在气体介质内传播过程的相位匹配条件不同,它们都影响近场谐波强度的最终分布。

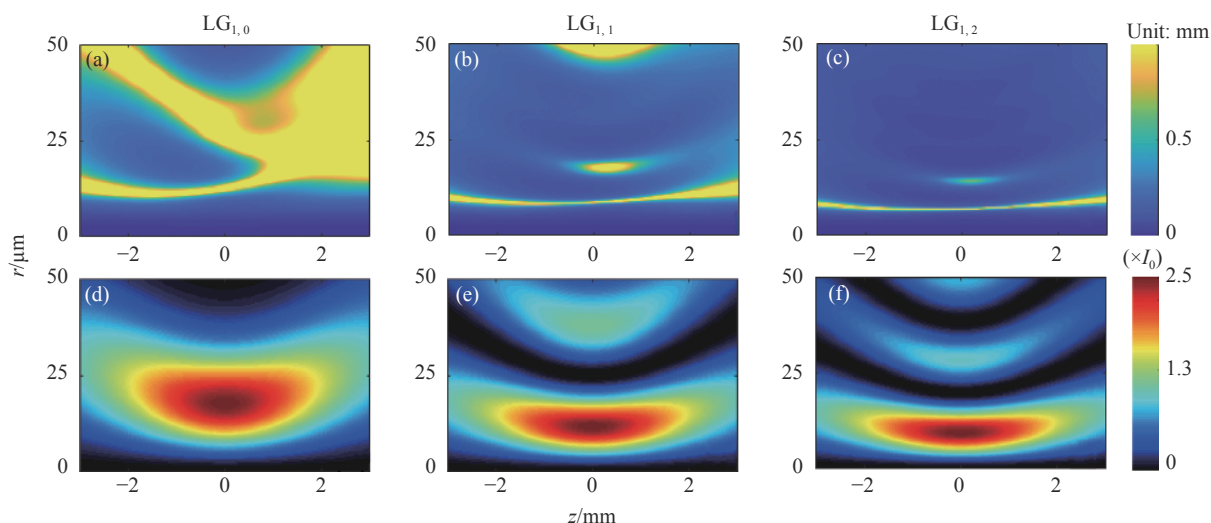


图 6 (a)~(c) 为 $LG_{1,0}$ 、 $LG_{1,1}$ 以及 $LG_{1,2}$ 光束作用下第 31 阶次谐波的相干长度图; (d)~(f) 三种不同模式的拉盖尔-高斯光束强度的空间分布,强度单位为 $I_0=10^{14} \text{ W/cm}^2$

Fig.6 (a)-(c) Map of coherence length of the 31st harmonic under the $LG_{1,0}$, $LG_{1,1}$ and $LG_{1,2}$ beams; (d)-(f) Spatial intensity distribution of three different modes of LG beams. The unit of intensity is $I_0 = 10^{14} \text{ W/cm}^2$

在高次谐波的截止区域,长、短轨道合并为同一个轨道,图 6 给出了第 31 阶次谐波的相干长度分布图。在气体介质的作用范围内, $LG_{1,0}$ 光束作用下的谐波在图 6 (a) 中的相位匹配条件良好,随着驱动激光径向节点数目增加,谐波在图 6 (b) 和 (c) 中的相位匹配区域变窄且集中在近轴区域,对应于图 4 (b) 和 (c) 中谐波强度分布中的最强环半径减小。

4 高次谐波在介质中的演化过程

图 5 和图 6 反映了高次谐波在空间各点的相位匹配情况,包括与气体介质相互作用的范围,而相位匹配条件的好坏决定了谐波场如何在介质内演化和积累。通过求解三维的麦克斯韦方程,不仅可以获得气体介质发射表面的谐波信息,还可以得到谐波在介

质内部的演化信息, 图 7 给出了不同阶次的谐波场在三种不同模式 LG 光束作用下在 1 mm 长介质内部的演化图像。由于 LG 光束的强度分布具有柱对称性, 可将空间直角坐标系 (x, y, z) 转化为柱坐标系 (r, z, ϕ) , 谐波强度不依赖角度 ϕ , 因此, 在平面 (r, z) 内就可以给出谐波场强度的空间分布。

由图 7 (a)~(c) 可以看出, 在 $LG_{1,0}$ 光束作用下谐波场的强度基本随着气体介质长度的增加而逐渐增大, 在出口面连续分布, 对应图 2 (a)、图 3 (a) 和图 4 (a) 中强度分布的单环结构。在图 7 (d)~(f) 中, $LG_{1,1}$ 作用下的谐波场强度并不随着介质长度增加而单调递增, 而是在介质内部经历一次或多次振荡, 使得强度在出口面衰减, 表现为不连续的分布, 对应图 2 (b)、图 3 (b) 和图 4 (b) 中强度分布的多环结构。对比图 5 中, $LG_{1,1}$

作用下短轨道或长轨道谐波的相干长度图中有若干相位匹配较差的区域出现, 因此, 发射的高次谐波无法在气体介质内持续累积。在图 7 (g)~(i) 中, $LG_{1,2}$ 作用下三个选定阶次的高次谐波强度的演化与 $LG_{1,1}$ 类似。比较图 7 (a)、(d) 和 (g) 可以看出, 随着驱动激光径向节点数的增加, 15 阶次谐波的发射信号越来越集中于出口面靠近传播轴, 对应于近场谐波强度的最强环半径逐渐减小。对于其他两阶次的谐波, 高次谐波强度在介质内部的分布表现出相似的特征。

由此可知, 谐波强度在气体介质内的演化图像是与谐波产生过程中的相干长度 (或相位匹配条件) 紧密相关的, 增加驱动光的径向节点数或者调节宏观条件都会影响不同电子轨道作用下的相位匹配条件, 进而影响在气体介质表面谐波强度的最终分布情况。

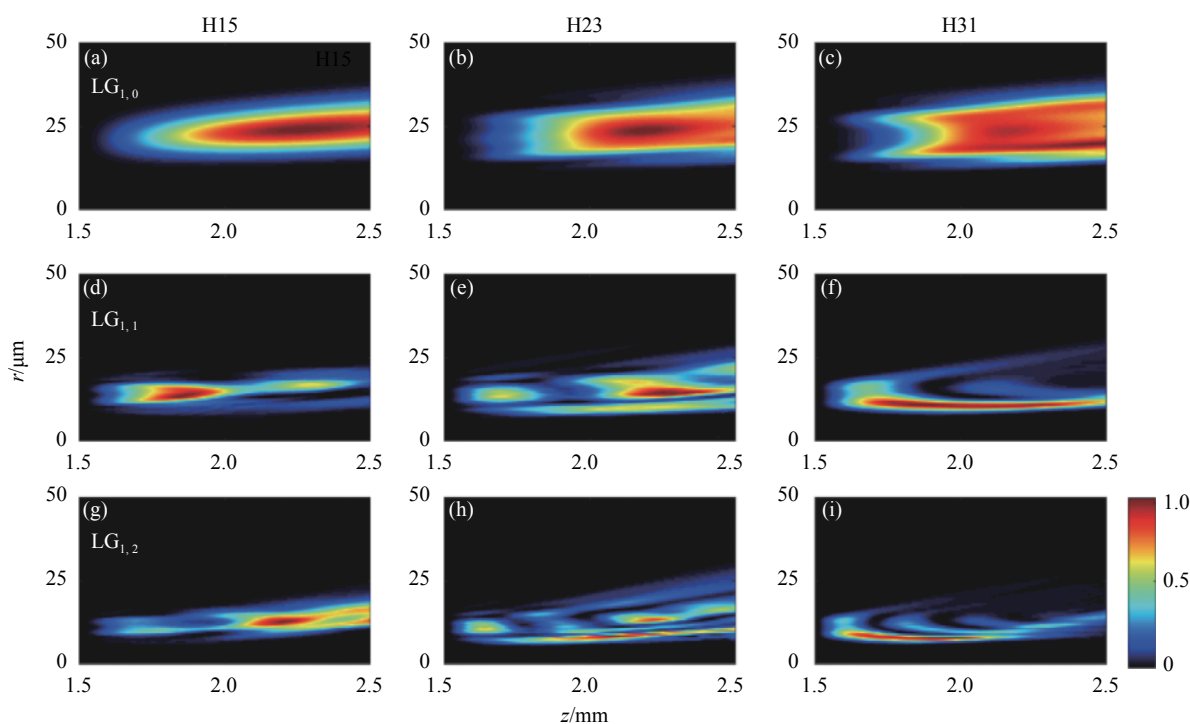


图 7 不同模式的拉盖尔-高斯光束产生的 15(第一列)、23(第二列) 和 31(第三列) 阶次谐波场在气体介质内的空间演化。第一、二和三行分别是 $LG_{1,0}$ 、 $LG_{1,1}$ 和 $LG_{1,2}$ 的结果。谐波场的强度进行了归一化

Fig.7 Spatial evolution of harmonic field inside the gas medium for the 15th (first column), 23th (second column) and 31th (third column) order generated by the different modes of LG beams. In the first, second and third rows, the results are given for the $LG_{1,0}$, $LG_{1,1}$ and $LG_{1,2}$ beams, respectively. The intensity of harmonic field has been normalized

5 结 论

文中利用波长为 800 nm, 脉冲宽度为 26.7 fs 的线性偏振拉盖尔-高斯 (LG) 光束与低气压的氩原子气体

介质相互作用产生涡旋高次谐波, 在 LG 光束为低峰值强度和紧密聚焦的情况下, 通过调整径向节点数 p 值来控制它的强度和相位在空间的分布。利用定量重散射模型计算了激光束作用在局域空间内产生的

单原子响应,通过求解高次谐波场在气体介质内传播的三维麦克斯韦方程,得到了在 $LG_{1,0}$ 、 $LG_{1,1}$ 以及 $LG_{1,2}$ 三种光束作用下的近场高次谐波的强度和相位分布,同时,高次谐波在远场的强度和相位分布可以通过在傍轴近似下的惠更斯积分得到。结果表明,当 LG 光束中的径向节点数 p 值增加时,产生的近场和远场高次谐波强度分布呈现复杂的多环结构,且相位分布上出现节点结构,同时,近场高次谐波的强度分布范围会随着驱动光径向节点数的增加而减小,远场高次谐波的强度分布范围会相应增大。对于高次谐波产生过程中的相位匹配条件,通过两种方法进行了分析,一是利用高次谐波与驱动光之间的相位失配量,计算了高次谐波的相干长度在空间的分布图;二是通过求解三维麦克斯韦方程,计算了谐波场的强度在气体介质内部的演化图。分析表明,长短轨道发射高次谐波的相位匹配条件在三种不同 LG 模式下表现出不同的特征,两种轨道之间的干涉和各自相位匹配良好区域在空间的分布可以解释 LG 光束的径向节点数增加时高次谐波强度分布的多环结构以及分布范围减小的特征。高次谐波场在介质内的演化图与相干长度的图像定性一致。

参考文献:

- [1] Allen L, Beijersbergen M W, Spreeuw R J C, et al. Orbital angular momentum of light and the transformation of Laguerre-Gaussian laser modes [J]. *Physical Review A*, 2019, 45: 8185-8189.
- [2] Fu S Y, Huang L, Lv Y L, et al. Advances on the measurement of orbital angular momentum spectra for laser beams (Invited) [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2021, 50(9): 20210145. (in Chinese)
- [3] Tian W L, Han K, Zhu J F, et al. Research progress of 2-5 μm mid-IR femtosecond optical parametric oscillator (Invited) [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2021, 50(8): 20210350. (in Chinese)
- [4] He L, Tian K, Yang X M, et al. Development and application of mid-infrared high-energy, high-power, few-cycle optical parametric chirped pulse amplifier (Invited) [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2021, 50(8): 20210396. (in Chinese)
- [5] Dang W J, Gao Q, L Z, et al. Research progress of tunable fiber light sources with wavelength near 1 μm [J]. *Chinese Optics*, 2021, 14(5): 1120-1132. (in Chinese)
- [6] Lee J, Alexander S J, Kevan S D, et al. Laguerre Gauss and Hermite Gauss soft X-ray states generated using diffractive optics [J]. *Nature Photonics*, 2019, 13(3): 205-209.
- [7] Xia H J, Gu R R, Pan C L, et al. Signal processing method for displacement measurement interferometry using vortex beams [J]. *Optics and Precision Engineering*, 2020, 28(9): 1905-1912. (in Chinese)
- [8] Gauthier D, Kaassamani S, Franz D, et al. Orbital angular momentum from semiconductor high-order harmonics [J]. *Optics Letters*, 2019, 44: 546-549.
- [9] 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): 9486.
- [10] Zürich M, Kern C, Hansinger P, et al. Strong-field physics with singular light beams [J]. *Nature Physics*, 2012, 8(10): 743-746.
- [11] Garipey 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.
- [12] Kong F, Zhang C, Bouchard F, et al. Controlling the orbital angular momentum of high harmonic vortices [J]. *Nature Communications*, 2017, 8: 14970.
- [13] Gauthier D, Ribi P R, Adhikary G, et al. Tunable orbital angular momentum in high-harmonic generation [J]. *Nature Communications*, 2017, 8: 14971.
- [14] Généaux, R, Camper A, Auguste T, et al. Synthesis and characterization of attosecond light vortices in the extreme ultraviolet [J]. *Nature Communications*, 2016, 7: 12583.
- [15] Sanson F, Pandey A K, Harms F, et al. Highly multimodal structure of high topological charge extreme ultraviolet vortex beams [J]. *Optics Letters*, 2020, 45: 4790-4793.
- [16] Fan X, Liang H, Shan L, et al. Extreme ultraviolet polarization vortex beam based on high harmonic generation [J]. *Acta Physica Sinica*, 2020, 69(4): 044203. (in Chinese)
- [17] Hernandez-Garcia C, Picon A, Roman J S, et al. Attosecond extreme ultraviolet vortices from high-order harmonic generation [J]. *Physical Review Letters*, 2013, 111(8): 083602.
- [18] 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: 163202.
- [19] Willi P, Birger B, Stephan F. High harmonic generation with Laguerre-Gaussian beams [J]. *Journal of Optics*, 2019, 21(9): 094001.
- [20] Willi P, Birger B, Stephan F. Coherence control in high-order harmonic generation with Laguerre-Gaussian beams [J]. *Physical Review A*, 2019, 100: 013422.
- [21] Jin C, Li B, Wang K, et al. Phase-matching analysis in high-order harmonic generation with nonzero orbital angular momentum Laguerre-Gaussian beams [J]. *Physical Review A*, 2020, 102(3): 033113.