

# 非均匀线偏激光场驱动下原子椭圆孤立阿秒脉冲的产生\*

涂乔舒 张晓凡<sup>†</sup> 占诗羽 秦梅艳 柯少林 廖青

(武汉工程大学, 光学信息与模式识别湖北省重点实验室, 武汉 430200)

(2025年7月17日收到; 2025年8月10日收到修改稿)

椭圆阿秒脉冲作为融合超短时间尺度(阿秒)与椭圆偏振特性的光场,在探究物质超快手性动力学过程及X射线磁圆二色性等前沿方向具有重要应用价值.本研究基于含时薛定谔方程的数值求解,通过设计非均匀线偏振驱动激光场与Ne相互作用,系统地研究了驱动激光场的非均匀度以及初始轨道的轨道角动量对孤立椭圆阿秒脉冲产生的调控规律.本文计算了不同非均匀度的驱动激光场作用下的氖原子的高次谐波谱,结果表明非均匀度参数的调节显著影响了高次谐波谱平滑程度以及频谱展宽程度,进一步影响了辐射的阿秒脉冲的性质.此外,研究结果表明初始轨道的轨道角动量特性对脉冲偏振态起决定性作用,当初始轨道角动量为零(如1s轨道)时,辐射的阿秒脉冲是线偏振,而当初始轨道角动量不为零(如环流态2p轨道)时,辐射的脉冲则为椭圆偏振.该研究结果为非均匀线偏激光场驱动下原子孤立椭圆阿秒脉冲的实现及偏振特性调控提供了理论依据.

**关键词:** 高次谐波, 椭圆孤立阿秒脉冲, 环流态, 非均匀场

**PACS:** 42.65.Ky, 42.65.Re, 33.20.Xx

**DOI:** 10.7498/aps.74.20250948

**CSTR:** 32037.14.aps.74.20250948

## 1 引言

阿秒脉冲作为当前超快光学领域的核心研究对象,因其超短脉宽( $10^{-18}$  s量级)和高光子能量特性,已被广泛应用于原子分子电离、固体能带结构探测及化学反应实时追踪等领域<sup>[1]</sup>,为人类探索电子超快动力学过程提供了前所未有的时间分辨工具.当前,基于气体介质的高次谐波产生是生成阿秒脉冲的主要方法之一<sup>[2-11]</sup>.其物理过程可以用半经典的三步模型来描述:强场诱导电子隧穿电离、激光场加速及与母核再碰撞辐射<sup>[12]</sup>.然而,传统高次谐波产生(HHG)技术受限于驱动激光场的对称性,通常只能产生线性偏振的阿秒脉冲,极大

地限制了其在手性敏感体系<sup>[13]</sup>(如生物分子、磁性材料)及X射线磁圆二色性中<sup>[14-16]</sup>的直接应用.基于此,如何产生更高自由度的椭圆阿秒脉冲已经成为了一大热门话题.

基于三步模型,当前有关椭圆偏振阿秒脉冲的研究主要集中在设计二维合成驱动场<sup>[17-21]</sup>和制备目标特殊态<sup>[22-24]</sup>两方面.在设计二维合成驱动场方面,Kfir等<sup>[14]</sup>在2015年将800 nm(水平偏振)和400 nm(垂直偏振)激光以小角度非共线方式聚焦到氦气靶上,利用非共线几何打破对称性,产生椭圆偏振高次谐波,实现了宽带椭圆偏振高次谐波,可直接合成椭圆偏振阿秒脉冲链,且效率比传统同轴双色场更高;Weber等<sup>[25]</sup>在2021年设计使用双椭圆正交双色激光场产生椭圆偏振的

\* 国家自然科学基金(批准号:11904269,12174295)和湖北省自然科学基金(批准号:2021CFB300)资助的课题.

<sup>†</sup> 通信作者. E-mail: zhangxiaofan@wit.edu.cn

高次谐波, 所使用的两束椭圆偏振光的椭圆率相同, 强度相同, 角频率比为 1:2, 旋向相反, 即使驱动场的椭圆率很小时, 如 0.0005, 所产生的高次谐波椭圆率也能达到 0.12. 最近, 使用二维合成激光场的实验工作, 例如, 反向旋转双色驱动场 (CRBD) 和惰性气体原子相互作用<sup>[20]</sup>. 使用 CRBD 驱动场已经被认为是克服高次谐波椭圆率高但是效率低的一种有效方案. 然而, 根据选择规则<sup>[20,26]</sup>, 生成的高次谐波谱由双峰组成, 左、右旋谐波交替<sup>[13-15,27-31]</sup>. 由于相反的螺旋性高次谐波, 那么合成的阿秒脉冲的椭圆率降低. 在制备目标特殊态方面, Zhou 等<sup>[22]</sup> 在 2009 年利用预先排列的  $N_2$  分子靶标可以产生椭圆高次谐波, 但高次谐波的椭圆率不高; Le 等<sup>[32]</sup> 在 2010 年利用线偏光和经过排列的线性分子  $N_2$ ,  $CO_2$ ,  $O_2$  相互作用, 最终产生了椭圆高次谐波. 环流态是量子系统中具有非零轨道角动量的特殊态, 其电子概率流密度呈涡旋分布, 表现为波函数携带相位涡旋, Zhang 等<sup>[33]</sup> 利用线偏振激光场和原子环流态相互作用产生孤立椭圆阿秒脉冲, 通过改变光周期的驱动场的载波包络相位来调控阿秒脉冲的时域特性, 然而所得的信号只达到了紫外波段. 综上, 想要进一步获得极紫外甚至软 X 射线谱段的大椭圆阿秒脉冲, 以及单独调控辐射的阿秒脉冲的椭圆率和时域特性, 仍有待研究.

目前, 一些研究工作已经表明<sup>[34]</sup>, 通过空间非均匀分布的激光场, 优化电子运动轨迹和高次谐波辐射特性, 能够极大地拓宽高次谐波谱段, 波长能达到极紫外甚至软 X 射线, 最终也可以实现孤立阿秒脉冲的高效生成. 例如, 在空间梯度场中, 电子会向场强更高的区域偏转, 增加其加速路径的有效长度. 电子返回母离子时, 其动能转换为高次谐波光子能量. 并且, 特定运动方向的电子被抑制回复, 最终得到超连续谱<sup>[35]</sup>, 进而获得孤立的阿秒脉冲. 然后通过改变非均匀场的非均匀度能够调控高次谐波谱的谱宽, 可以进一步调控产生的阿秒脉冲的谱宽. 此外, 对比上述二维偏振双色场和环流态等方案, 空间非均匀激光场局域场强增强, 根据 ADK 模型<sup>[36]</sup>, 电子的隧穿电离率能够大幅度提高, 相应的电子回复概率也会增加, 根据高次谐波的产生原理, 利用非均匀场方案产生的高次谐波效率增强. 由于非均匀场能够极大地拓宽高次谐波的谱段, 那么非均匀场方案为获得大椭圆极紫外甚至软 X 射线谱段光源提供了技术路径.

本文数值模拟了 Ne 原子的 1s 和环流态 2p 轨道与线偏振非均匀场的相互作用, 系统研究了高次谐波对初始轨道角动量以及非均匀度参数的依赖关系. 数值结果揭示了驱动场非均匀度参数对高次谐波谱平滑性以及阿秒脉冲脉宽缩短的显著影响. 此外, 我们还给出了理论模型对轨道角动量在脉冲偏振态调控中的决定性作用进行解释.

## 2 理论模型

为了精确模拟非均匀场中氖原子的高次谐波产生过程, 本文在直角坐标系下对二维含时薛定谔方程进行数值求解<sup>[31,37]</sup>:

$$i \frac{\partial}{\partial t} |\Psi(x, y, t)\rangle = H(x, y, t) |\Psi(x, y, t)\rangle, \quad (1)$$

其中,

$$H(x, y, t) = T_r(x, y) + V_c(x, y) + H_L(x, y),$$

$$T_r(x, y) = -\frac{1}{2} \left( \frac{\partial}{\partial x} \mathbf{i} + \frac{\partial}{\partial y} \mathbf{j} \right)^2.$$

$T_r(x, y)$  表示原子的动能项,  $\mathbf{i}$  和  $\mathbf{j}$  为  $x$  和  $y$  方向的单位矢量. 氖原子的库仑势表示为

$$V_c(\mathbf{r}) = -\frac{Z(\mathbf{r})}{\sqrt{|\mathbf{r}|^2 + \alpha}},$$

其中  $\mathbf{r} = (x, y)$  表示二维空间中电子位置,  $Z(\mathbf{r}) = 1 + 9 \exp(-|\mathbf{r}|^2)$ , 选择软核参数  $\alpha = 2.88172$  去除库仑奇点, 并通过软核势模型得到和 2p 轨道相同的电离能<sup>[21]</sup>,  $I_p$  为初始轨道的电离能.  $H_L(x, y) = xE(x, t)$  为原子与驱动场的相互作用项. 使用的非均匀场的电场形式如下:

$$E(x, t) = E_0 (1 + \kappa x) f(t) \cos(\omega t + \phi), \quad (2)$$

其中  $E_0$  是激光场强度  $I = 1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  对应的振幅;  $\kappa$  为电场的空间非均匀度;  $T_0$  是 1300 nm 的光周期;  $\omega$  是 1300 nm 驱动场对应角频率;  $\phi$  是载波包络相位 (CEP), 其值为零;  $f(t)$  为  $\sin^2$  包络, 脉冲全宽为  $3T_0$ ,  $T_0$  为驱动场光周期.

通过理论模拟, 利用分裂算符谱方法求解方程 (1) 来获得含时波函数, 根据 Ehrenfest 理论进一步获得原子的含时偶极加速度:

$$A_x(t) = \langle \psi(x, y, t) | -\frac{\partial V_0(x, y)}{\partial x} + E(t) | \psi(x, y, t) \rangle, \quad (3)$$

$$A_y(t) = \langle \psi(x, y, t) | -\frac{\partial V_0(x, y)}{\partial y} + E(t) | \psi(x, y, t) \rangle. \quad (4)$$

然后, 通过傅里叶变换得到高次谐波谱:

$$a_{x,y}(\omega) = \int A_{x,y}(t) e^{-in\omega t} dt, \quad (5)$$

$$D_{x,y} = |a_{x,y}(\omega)|^2, \quad (6)$$

其中  $n$  是整数并且对应于谐波阶次. 阿秒脉冲可以通过合成  $[q_1, q_2]$  阶次的高次谐波来获得

$$I(t) = \left| \int_{q_1}^{q_2} a_{x,y}(\omega) e^{-in\omega t} \right|^2. \quad (7)$$

### 3 结果与讨论

本文首先通过求解虚时间传播的含时薛定谔方程, 计算出氦原子的不同初始轨道  $1s$  和  $2p_-$ . 根据图 1(a) 和图 1(c) 所示,  $1s$  轨道的概率密度分布呈球对称分布, 中心位置密度最大, 随着半径增大迅速衰减.  $2p_-$  轨道的概率密度分布呈圆环分布, 展现典型的面包圈型结构, 中心位置密度最小. 图 1(b)

和图 1(d) 展示了  $1s$  和  $2p_-$  轨道的相位分布. 图 1(b) 整体呈现黄色,  $1s$  轨道在显示区域具有单一相位值, 其数值为  $\pi$ . 图 1(d) 中相位分布和图 1(b) 完全不同, 相位从  $-\pi$  至  $+\pi$  逆时针变化, 表明  $2p_-$  轨道不同区域存在相位差异, 具有空间不对称性. 另外, 根据原子轨道理论, 相位的变化对应着非零轨道角动量.

随后通过数值模拟, 对  $1s$  轨道和  $2p_-$  轨道施加不同  $\kappa$  值的非均匀线偏激光场, 得到原子高次谐波谱如图 2 所示, 其中  $a_+$  是频域偶极加速度的左旋分量 (红色的点划线表示),  $a_-$  是频域偶极加速度的右旋分量 (蓝色实线表示),  $a_{\pm} = (a_x \pm ia_y)/\sqrt{2}$ ,  $a_x, a_y$  见 (5) 式. 首先, 对比两个轨道的总的高次谐波效率, 我们发现  $2p_-$  轨道的高次谐波效率显著高于  $1s$  轨道的高次谐波效率, 这是由于两个轨道的概率密度分布不同导致了电离效率之间的差异,  $2p_-$  轨道具有非零轨道角动量, 其电子云呈面包圈状分布, 波函数相比于  $1s$  轨道在远核区仍有显著振幅, 原子核对电子的束缚力度没有  $1s$  轨道的强, 这种特性使得  $2p_-$  轨道电子在强激光场中的电离效

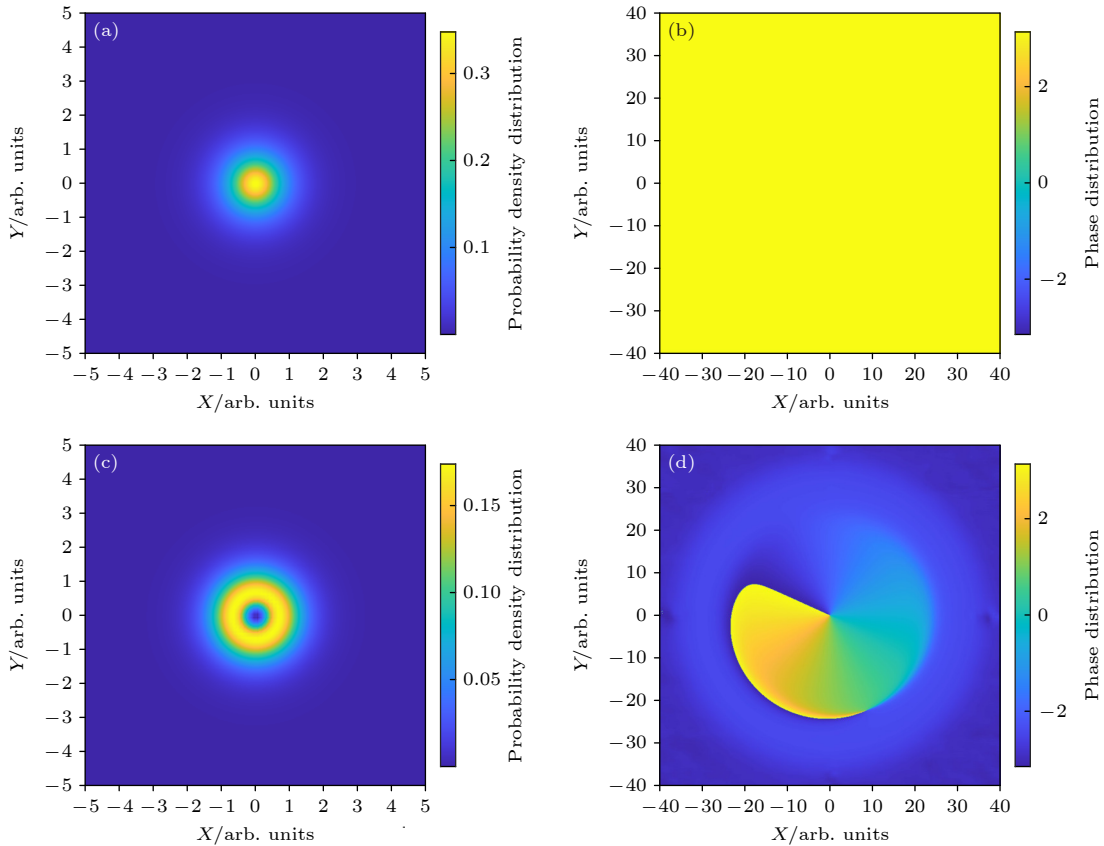


图 1 (a)  $1s$  轨道概率密度空间分布图; (b)  $1s$  轨道相位空间分布图; (c)  $2p_-$  轨道概率密度空间分布图; (d)  $2p_-$  轨道相位空间分布图  
 Fig. 1. (a) Probability density space distribution graph of the  $1s$  orbital; (b) phase space distribution diagram of the  $1s$  orbital; (c) probability density space distribution graph of the  $2p_-$  orbital; (d) phase space distribution diagram of the  $2p_-$  orbital.

率要高于 1s 轨道电子的电离效率. 其次, 对比分析两个轨道的高次谐波分量, 对于 1s 轨道来说, 不论非均匀度  $\kappa$  的数值是多少, 左旋分量和右旋分量能够完全重合, 因此 1s 轨道所辐射的高次谐波谱的椭偏率为零, 而对于 2p 轨道来讲, 不论  $\kappa$  的值是多少, 左右旋分量没有完全重合, 并且在平台区高次谐波谱的右旋分量效率要高于左旋分量的效率, 因此, 对于 2p 轨道的高次谐波谱的椭偏率不为零. 另外, 当两电子轨道与  $\kappa$  为 0 的均匀线偏驱动场相互作用时, 1s 轨道和 2p 轨道下产生高次谐波的截止阶次都为 75 阶 (见图 2(a) 和图 2(e) 灰色虚线), 这一计算结果刚好满足截止经验公式:  $N_{\max}\omega = I_p + 3.17U_p$ , 其中  $I_p$  是原子电离能,  $U_p$  是激光场的有质动力势能. 当  $\kappa = 0.001$  的时候, 对于 1s 和 2p 轨道的高次谐波谱的截止区会拓宽, 截止区拓宽到 87 阶, 这是由于部分电子在更高激光强度区域获得额外能量, 从而产生更高能量的光子, 拓宽截止区 [38].

当  $\kappa$  继续增大到 0.002 时, 两个轨道的高次谐波的截止区也进一步拓宽到 106 阶. 根据图 2(a)—(g) 所示, 发现虽然高次谐波谱的截止区会随着非均匀场的非均匀度增大而拓宽, 但是高次谐波谱的平台区并没有出现很平滑的谱段, 进一步增大非均匀度到  $\kappa = 0.003$ , 如图 2(d) 和图 2(h) 所示, 在高次谐波谱的截止区进一步拓宽的同时, 高次谐波平台区出现了比较平滑的高次谐波谱段, 这是由于非均匀场的空间不对称性, 对电子运动的调制起到了关键作用.

为阐释不同轨道在非均匀场  $\kappa$  增大时出现的频谱展宽并趋于平滑现象, 图 3 给出了不同轨道以及不同非均匀度参数下的高次谐波辐射的时频结构图. 当  $\kappa = 0$  的时候, 对于两个轨道来讲, 有 3 个明显的脉冲峰辐射, 最高峰对应的是 75 阶次, 这里对应的是截止区, 和图 2(a), (e) 相一致, 另外两个次高峰对应的阶次分别为 70 阶和 58 阶. 左边次

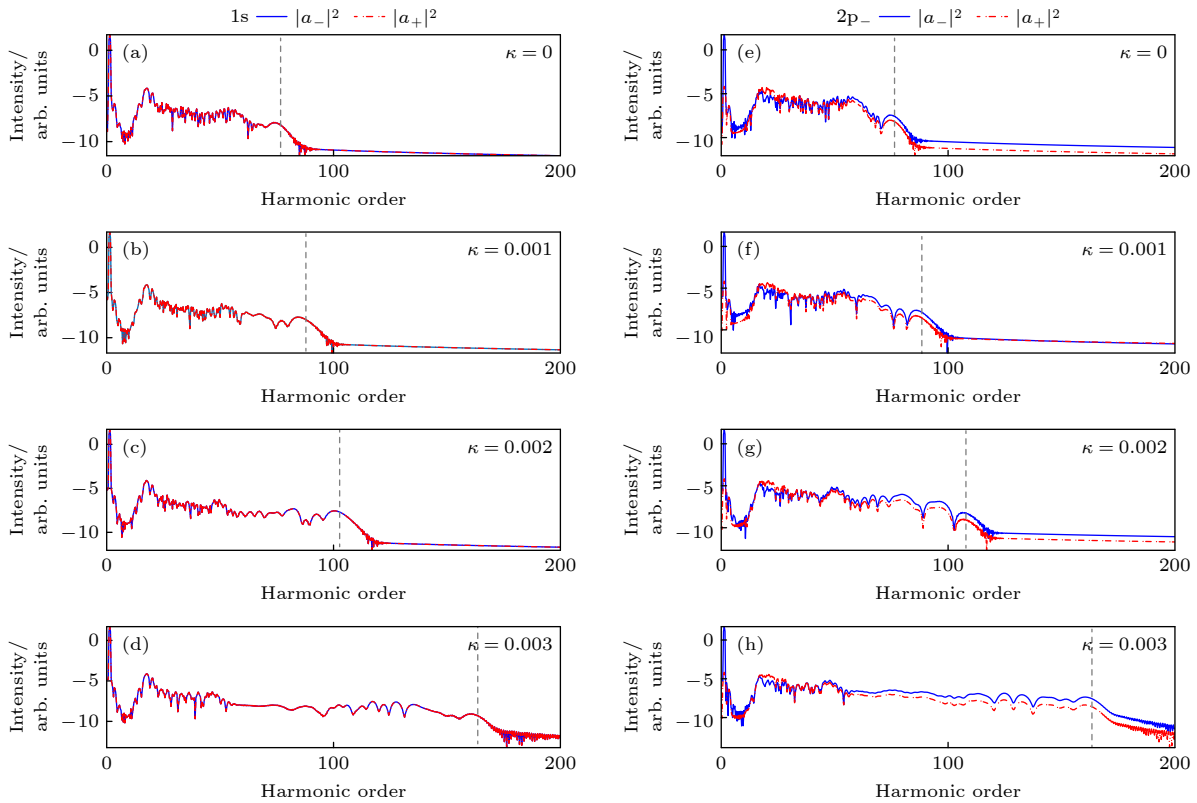


图 2 不同  $\kappa$  值驱动场下 1s 轨道和 2p 轨道产生的高次谐波谱 (a)  $\kappa = 0$ , 1s 轨道; (b)  $\kappa = 0.001$ , 1s 轨道; (c)  $\kappa = 0.002$ , 1s 轨道; (d)  $\kappa = 0.003$ , 1s 轨道; (e)  $\kappa = 0$ , 2p 轨道; (f)  $\kappa = 0.001$ , 2p 轨道; (g)  $\kappa = 0.002$ , 2p 轨道; (h)  $\kappa = 0.003$ , 2p 轨道 (蓝色实线和红色虚线分别表示高次谐波的右、左旋分量)

Fig. 2. High-order harmonic spectra generated by 1s and 2p orbitals under different  $\kappa$  value of driving fields: (a)  $\kappa = 0$ , 1s orbital; (b)  $\kappa = 0.001$ , 1s orbital; (c)  $\kappa = 0.002$ , 1s orbital; (d)  $\kappa = 0.003$ , 1s orbital; (e)  $\kappa = 0$ , 2p orbital; (f)  $\kappa = 0.001$ , 2p orbital; (g)  $\kappa = 0.002$ , 2p orbital; (h)  $\kappa = 0.003$ , 2p orbital (Blue solid line and the red dashed line, respectively, represent the left- and right-handed circular components of the higher-order harmonics).

高峰的效率比其他脉冲峰效率高. 并且每半个光周期内有两个轨道贡献高次谐波信号, 左边为短轨道, 右边为长轨道, 因此, 在高次谐波谱上表现出了明显的调制现象, 如图 2(a), (e) 所示; 当  $\kappa = 0.001$  和  $\kappa = 0.002$  时, 最高峰对应的阶次逐渐变大, 而左右两侧的两个次高峰逐渐被抑制, 但是每半个光周期仍然由两个轨道贡献高次谐波信号, 左边为短轨道, 右边为长轨道, 所以在高次谐波谱上仍然表现出了明显的调制现象, 如图 2(b), (c), (f), (g) 所示; 当非均匀度进一步增大到  $\kappa = 0.003$  时, 发现脉冲峰几乎只剩下一个最高峰, 峰值对应的高次谐波阶次为 162 阶, 另外两个次高峰几乎被完全抑制, 并且最高峰只由左边的短轨道贡献, 因此, 所辐射的高次谐波信号会出现比较平滑的超连续谱, 如图 2(d), (h) 所示. 根据图 3 的结果, 当  $\kappa$  由 0 (均匀场) 增至 0.003 (非均匀场) 时, 高次谐波辐射峰数量从 3 个减少至 1 个, 长轨道贡献的阿秒脉冲信号逐渐减弱并消失, 最终只剩下由短轨道所贡献的阿秒脉冲信号, 根据高次谐波辐射的经典模型, 我

们知道, 由于非均匀场驱动下的电子能够再加速, 该过程能够使得电子在和母核复合之前获得更高的能量, 复合之后所辐射的光子能量也会更高, 因此辐射的信号峰值对应的阶次也会随着  $\kappa$  的增大而增大. 此外, 电场的空间特性对电子的运动轨迹也起到了关键作用, 使得贡献高次谐波信号的长轨道被抑制, 只剩下短轨道的贡献, 最终产生了超宽带的平滑超连续谱, 如图 2 所示.

接下来探究 1s 轨道和 2p 轨道产生高次谐波的椭偏率的差异, 还计算了两轨道下高次谐波谱的椭偏率随  $\kappa$  值的分布. 高次谐波的椭偏率<sup>[39]</sup> 计算如下:

$$\epsilon = (|a_+| - |a_-|) / (|a_+| + |a_-|). \quad (8)$$

图 4(a)—(d) 展示了轨道角动量为 0 的 1s 轨道在具有不同非均匀度  $\kappa$  的线偏光作用下的椭偏率, 我们发现椭偏率的值均为零, 并且不随高次谐波阶次和  $\kappa$  变化, 这表明所辐射的高次谐波是线性偏振的. 图 4(e)—(h) 展示了轨道角动量不为 0 的

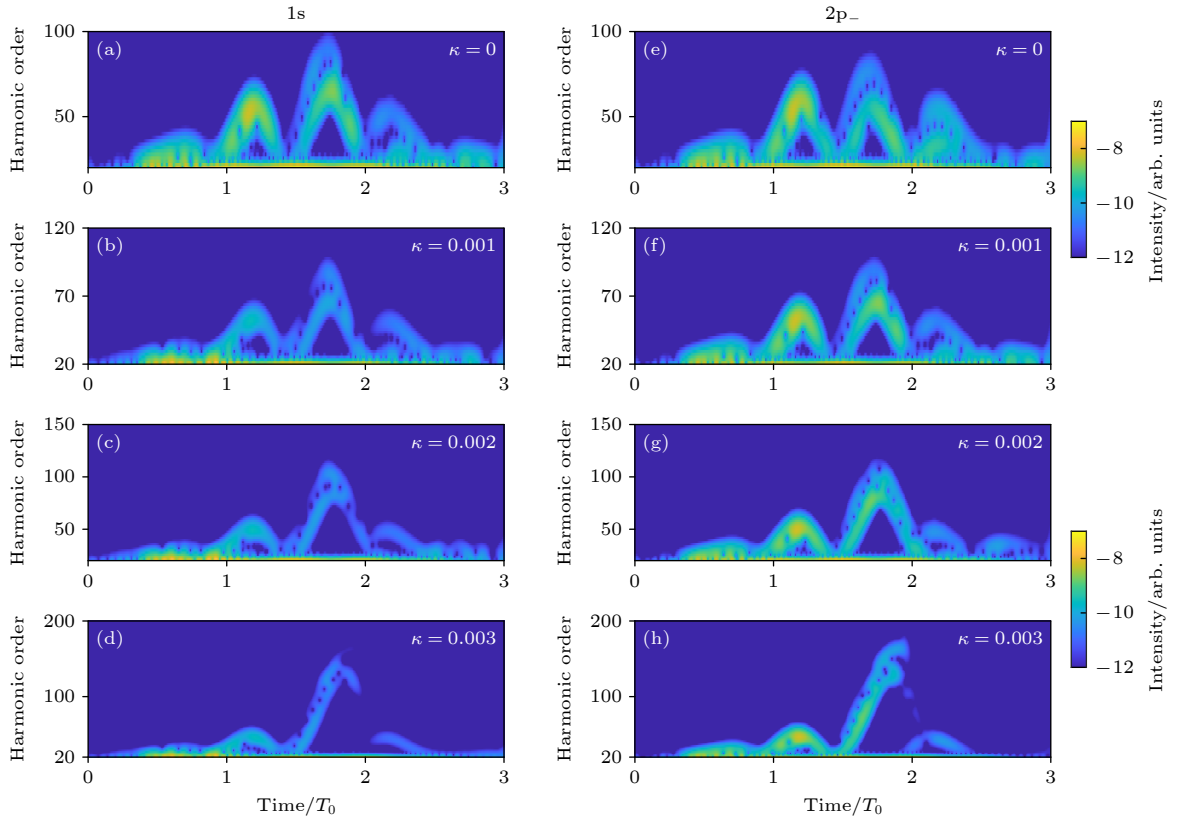


图 3 高次谐波的时频分析图 (a)  $\kappa = 0$ , 1s 轨道; (b)  $\kappa = 0.001$ , 1s 轨道; (c)  $\kappa = 0.002$ , 1s 轨道; (d)  $\kappa = 0.003$ , 1s 轨道; (e)  $\kappa = 0$ , 2p 轨道; (f)  $\kappa = 0.001$ , 2p 轨道; (g)  $\kappa = 0.002$ , 2p 轨道; (h)  $\kappa = 0.003$ , 2p 轨道

Fig. 3. Time-frequency analysis diagram of high-order harmonics: (a)  $\kappa = 0$ , 1s orbital; (b)  $\kappa = 0.001$ , 1s orbital; (c)  $\kappa = 0.002$ , 1s orbital; (d)  $\kappa = 0.003$ , 1s orbital; (e)  $\kappa = 0$ , 2p. orbital; (f)  $\kappa = 0.001$ , 2p. orbital; (g)  $\kappa = 0.002$ , 2p. orbital; (h)  $\kappa = 0.003$ , 2p. orbital.

环流态 2p<sub>-</sub> 轨道在具有不同的非均匀度  $k$  的线偏光作用下的椭偏率, 我们发现椭偏率的值不为零, 并且, 随着高次谐波阶次的增加, 平台区高次谐波的椭偏率由正椭偏率 ( $\epsilon > 0$ ) 变为负椭偏率 ( $\epsilon < 0$ ), 高次谐波由左旋变为右旋, 与图 2 中在低阈值谱段, 左旋高次谐波谱分量效率要高于右旋高次谐波谱效率, 在平台区谱段, 效率强弱相反的现象相一致. 图 4 结果表明轨道角动量对高次谐波椭偏率具有决定性作用.

接下来将给出一个理论模型分析该决定性的作用. 根据强场近似, 偶极矩阵元为

$$\mathbf{d} = \left\langle \psi(\mathbf{r}, 0) \left| \mathbf{r} \right| \frac{1}{2\pi} \exp(-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) \right\rangle, \quad (9)$$

其中  $\psi(\mathbf{r}, 0)$  可以写成  $f(r) e^{im\varphi}$ ,  $m$  是磁量子数,  $f(r)$  是径向波函数,  $\varphi$  是方位角. 因为线性驱动场是偏振的沿  $x$  轴, 所以  $e^{-i\mathbf{k}\mathbf{r}}$  可以写成  $e^{-ikr\cos\varphi}$ . 应用贝塞尔展开式:

$$e^{-ikr\cos\varphi} = \sum_n (-i)^n e^{-in\varphi} J_n(kr), \quad (10)$$

$$B_n = \langle f(r) | r | J_n(kr) \rangle. \quad (11)$$

贝塞尔函数满足以下关系式  $J_{-n}(kr) = (-1)^n \times J_n(kr)$ . 则  $d$  的  $x$  和  $y$  分量分别表示为

$$d_x = \frac{1}{4\pi} (-i)^{m+1} [iB_{m+1} - iB_{m-1}], \quad (12)$$

$$d_y = \frac{1}{4\pi} (-i)^{m+1} [iB_{m+1} + iB_{m-1}]. \quad (13)$$

$d$  的逆时针 (+) 和顺时针 (-) 表示为

$$d_{\pm} = \mp \frac{\sqrt{2}}{4\pi} (-i)^{m+1} B_{m\mp 1}. \quad (14)$$

故椭偏率可以写为

$$\epsilon = \frac{|B_{m-1}| - |B_{m+1}|}{|B_{m-1}| + |B_{m+1}|}. \quad (15)$$

如果  $m \neq 0$ ,  $B_{m-1}$  或者  $B_{m+1}$  占优, 则  $\epsilon$  不为零; 如果  $m = 0$ ,  $|B_1| = |-B_{-1}|$ , 则  $\epsilon$  为零, 表示高次谐波是线性偏振的.

另外根据数值结果分析了不同轨道所辐射的高次谐波椭偏率不同. 图 5 展示了  $\kappa = 0.001$  的非均匀场作用下的 1s 和 2p<sub>-</sub> 轨道的高次谐波谱的  $x$ ,  $y$  两个分量的时频结构. 图 5(a), (c) 分别代表 1s 轨道的  $x$ ,  $y$  分量时频图; 图 5(b), (d) 分别代表 2p<sub>-</sub> 轨道的  $x$ ,  $y$  分量时频图. 可以看到, 对于 1s 轨道辐

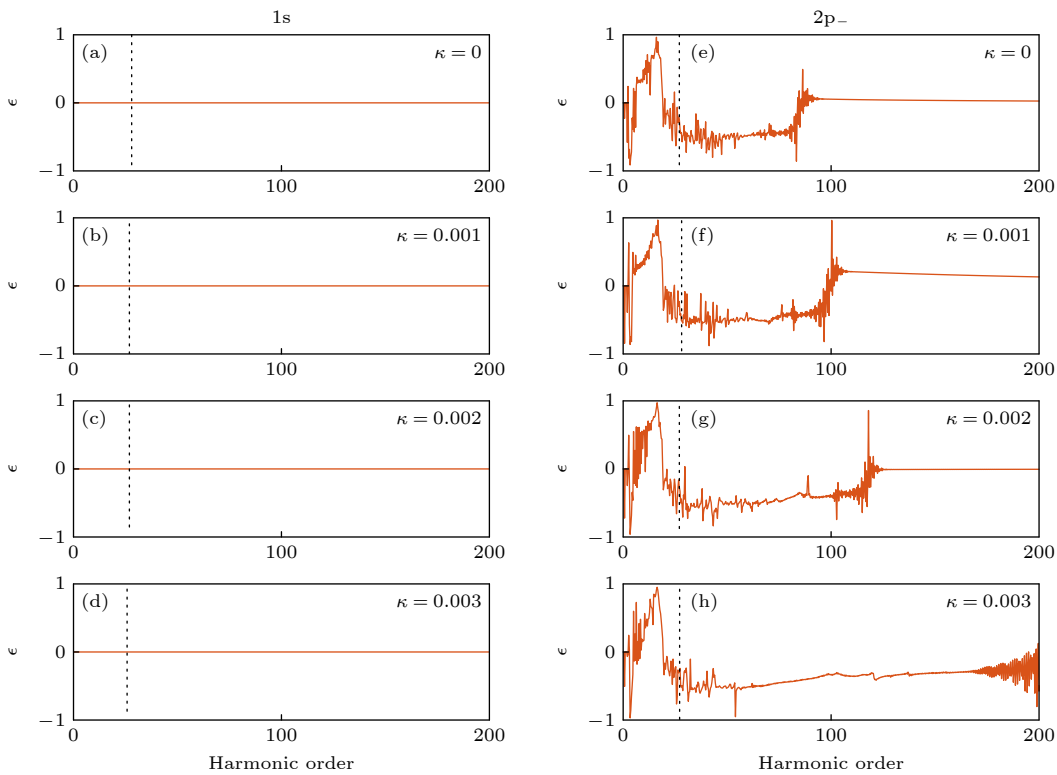


图 4 高次谐波椭偏率 (a)  $\kappa = 0$ , 1s 轨道; (b)  $\kappa = 0.001$ , 1s 轨道; (c)  $\kappa = 0.002$ , 1s 轨道; (d)  $\kappa = 0.003$ , 1s 轨道; (e)  $\kappa = 0$ , 2p<sub>-</sub> 轨道; (f)  $\kappa = 0.001$ , 2p<sub>-</sub> 轨道; (g)  $\kappa = 0.002$ , 2p<sub>-</sub> 轨道; (h)  $\kappa = 0.003$ , 2p<sub>-</sub> 轨道

Fig. 4. Ellipticity of high harmonics: (a)  $\kappa = 0$ , 1s orbital; (b)  $\kappa = 0.001$ , 1s orbital; (c)  $\kappa = 0.002$ , 1s orbital; (d)  $\kappa = 0.003$ , 1s orbital; (e)  $\kappa = 0$ , 2p<sub>-</sub> orbital; (f)  $\kappa = 0.001$ , 2p<sub>-</sub> orbital; (g)  $\kappa = 0.002$ , 2p<sub>-</sub> orbital; (h)  $\kappa = 0.003$ , 2p<sub>-</sub> orbital.

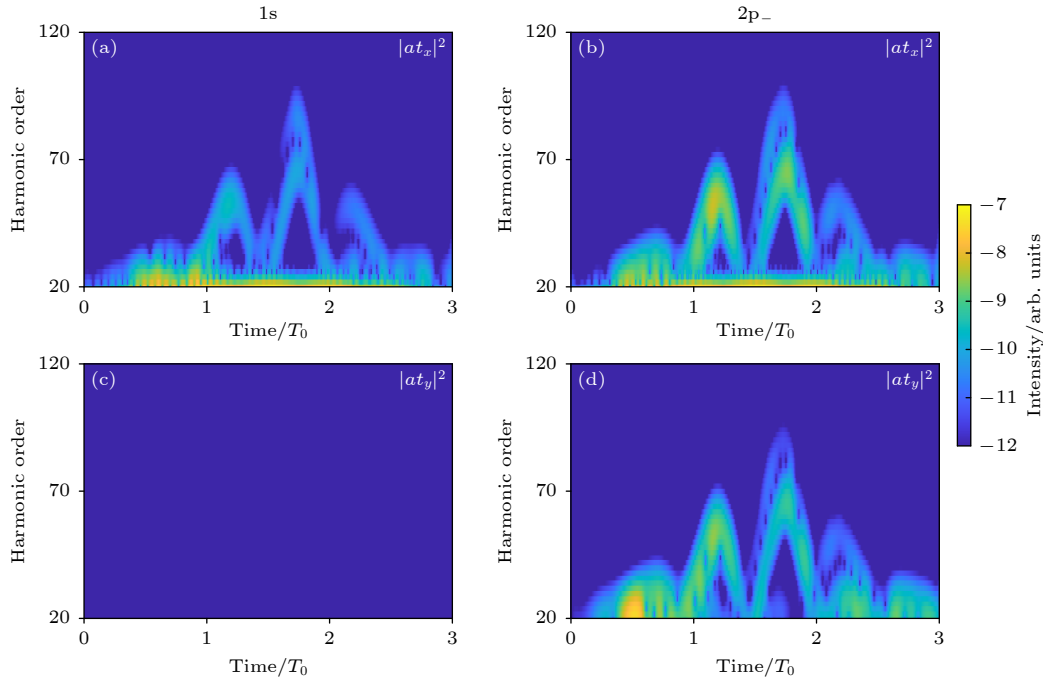


图 5 高次谐波的时频分析图 (a)  $\kappa = 0.001$ , 1s 轨道  $x$  分量; (b)  $\kappa = 0.001$ , 2p<sub>-</sub> 轨道  $x$  分量; (c)  $\kappa = 0.001$ , 1s 轨道  $y$  分量; (d)  $\kappa = 0.001$ , 2p<sub>-</sub> 轨道  $y$  分量

Fig. 5. Time-frequency analysis diagram of high-order harmonics: (a)  $\kappa = 0.001$ ,  $x$  component of 1s orbital; (b)  $\kappa = 0.001$ ,  $x$  component of 2p<sub>-</sub> orbital; (c)  $\kappa = 0.001$ ,  $y$  component of 1s orbital; (d)  $\kappa = 0.001$ ,  $y$  component of 2p<sub>-</sub> orbital.

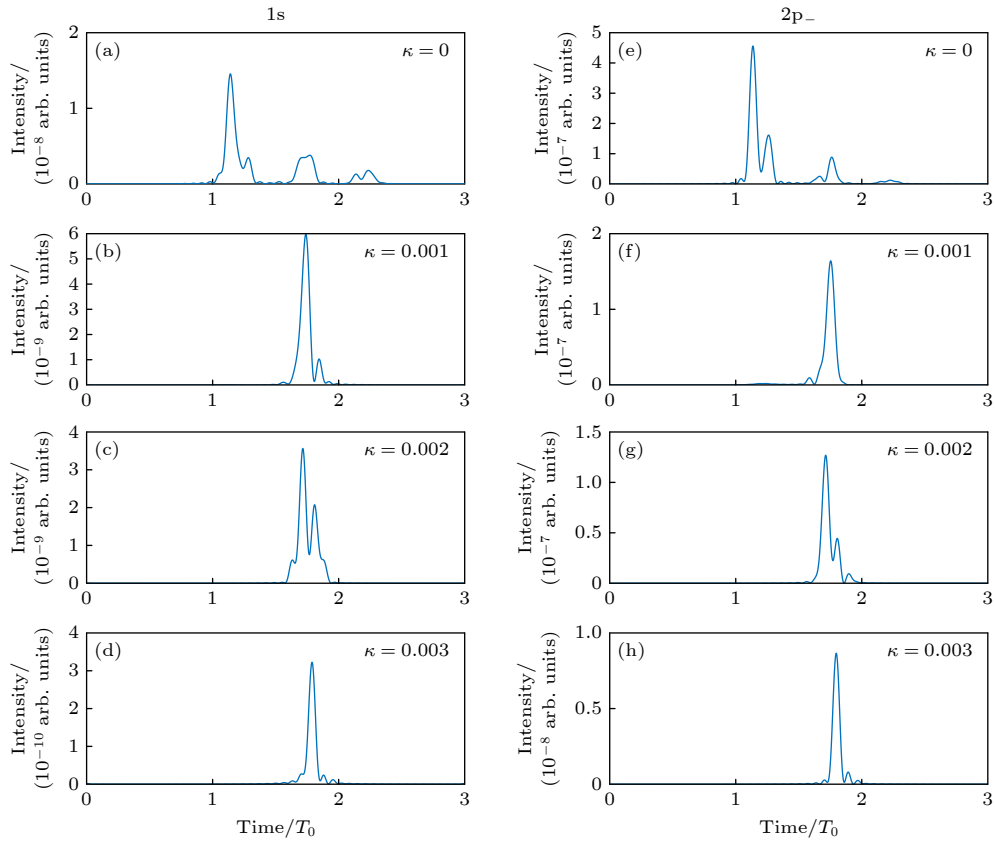


图 6 阿秒脉冲时域包络 (a)  $\kappa = 0$ , 1s 轨道; (b)  $\kappa = 0.001$ , 1s 轨道; (c)  $\kappa = 0.002$ , 1s 轨道; (d)  $\kappa = 0.003$ , 1s 轨道; (e)  $\kappa = 0$ , 2p<sub>-</sub> 轨道; (f)  $\kappa = 0.001$ , 2p<sub>-</sub> 轨道; (g)  $\kappa = 0.002$ , 2p<sub>-</sub> 轨道; (h)  $\kappa = 0.003$ , 2p<sub>-</sub> 轨道

Fig. 6. Time-domain envelope of attosecond pulses: (a)  $\kappa = 0$ , 1s orbital; (b)  $\kappa = 0.001$ , 1s orbital; (c)  $\kappa = 0.002$ , 1s orbital; (d)  $\kappa = 0.003$ , 1s orbital; (e)  $\kappa = 0$ , 2p<sub>-</sub> orbital; (f)  $\kappa = 0.001$ , 2p<sub>-</sub> orbital; (g)  $\kappa = 0.002$ , 2p<sub>-</sub> orbital; (h)  $\kappa = 0.003$ , 2p<sub>-</sub> orbital.

射的信号, 只有  $x$  方向的分量,  $y$  方向的分量几乎为零, 所以对于 1s 轨道其高次谐波谱为线性偏振, 偏振方向和驱动激光场的方向一致都是沿着  $x$  方向. 而对于 2p 轨道, 其辐射的高次谐波信号  $x, y$  两个方向的分量都不为零并且强度相当, 那么最终得到的高次谐波偏振和驱动场的不同, 为椭圆偏振.

此外, 进一步探究了阿秒脉冲的时域特性, 结果如图 6 所示. 当激光场为均匀场  $\kappa = 0$  时, 选取了 45 阶—60 阶的高次谐波进行阿秒脉冲合成, 该区间合成的阿秒脉冲呈现脉冲链形态, 强度最高的阿秒脉冲对应的辐射时间大约为  $1.14 T_0$ , 与图 3(a)

和图 3(e) 结果一致, 1s 轨道的脉宽为 325 as, 2p 轨道的脉宽为 269 as; 当  $\kappa = 0.001$  时, 选取 60 阶—75 阶的高次谐波进行阿秒脉冲合成, 强度最高的阿秒脉冲辐射的时间为  $1.75 T_0$ , 并且发现在其他时间段辐射的阿秒脉冲信号强度减弱, 与图 3(b) 和图 3(f) 一致, 由于合成的高次谐波谱段宽度相当, 合成的阿秒脉冲的脉宽也相当, 1s 轨道的脉宽变为 316 as, 2p 轨道的脉宽变为 321 as; 当  $\kappa = 0.002$  时, 选取了 70 阶—85 阶的高次谐波进行阿秒脉冲合成, 强度最高的阿秒脉冲辐射的时间为  $1.71 T_0$ , 其他时间段的阿秒脉冲信号进一步减弱, 1s 轨道的脉宽为 260 as, 2p 轨道的脉宽为 277 as;

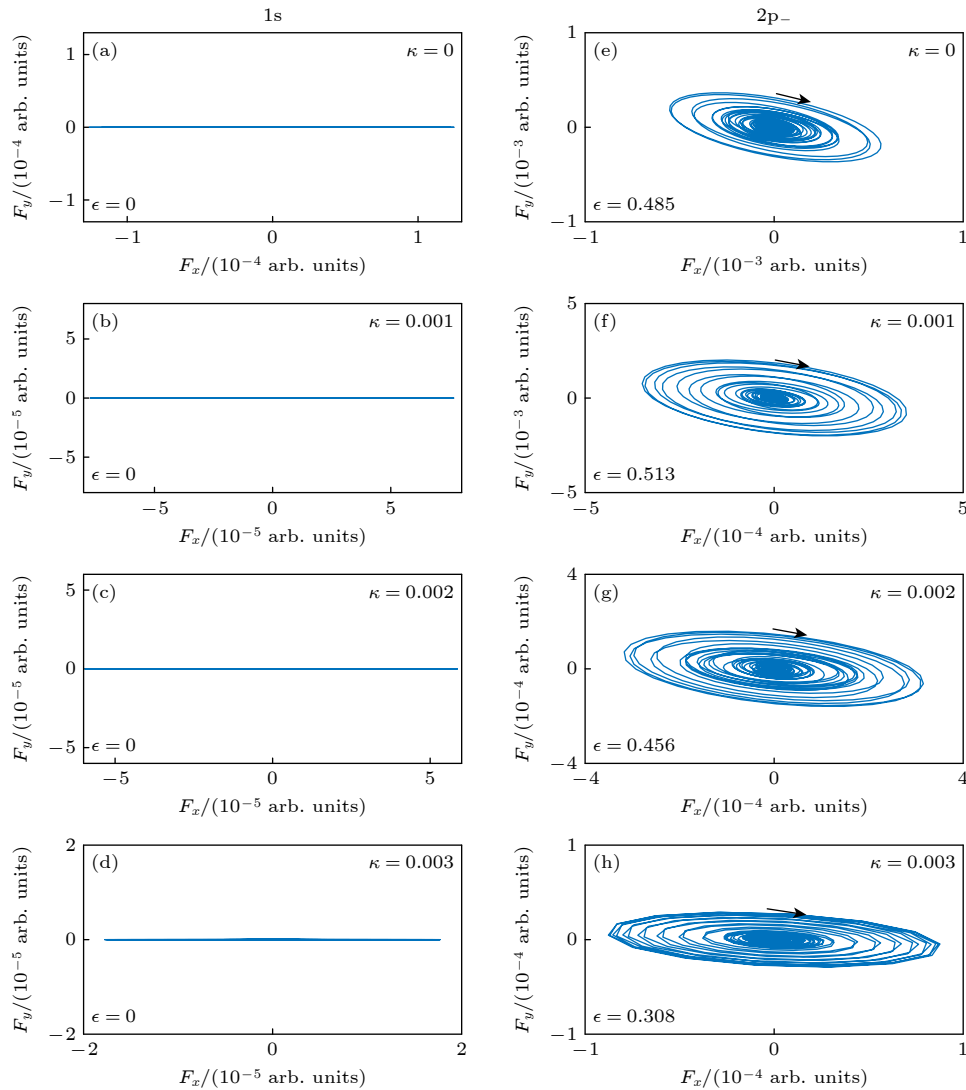


图 7 阿秒脉冲时域电场形式 (a)  $\kappa = 0$ , 1s 轨道; (b)  $\kappa = 0.001$ , 1s 轨道; (c)  $\kappa = 0.002$ , 1s 轨道; (d)  $\kappa = 0.003$ , 1s 轨道; (e)  $\kappa = 0$ , 2p 轨道; (f)  $\kappa = 0.001$ , 2p 轨道; (g)  $\kappa = 0.002$ , 2p 轨道; (h)  $\kappa = 0.003$ , 2p 轨道

Fig. 7. Time-domain electric field forms of attosecond pulses: (a)  $\kappa = 0$ , 1s orbital; (b)  $\kappa = 0.001$ , 1s orbital; (c)  $\kappa = 0.002$ , 1s orbital; (d)  $\kappa = 0.003$ , 1s orbital; (e)  $\kappa = 0$ , 2p orbital; (f)  $\kappa = 0.001$ , 2p orbital; (g)  $\kappa = 0.002$ , 2p orbital; (h)  $\kappa = 0.003$ , 2p orbital.

当  $\kappa$  值进一步增加到 0.003 时, 选取了 140 阶—155 阶的高次谐波进行阿秒脉冲合成, 电场空间非均匀性增强, 仅辐射出单个孤立阿秒脉冲, 辐射的时间为  $1.8 T_0$ , 这时, 其他时间段辐射的阿秒脉冲完全被抑制, 1s 轨道的脉宽为 264 as, 2p 轨道的脉宽为 260 as. 图 6 中阿秒脉冲的时域结构特征与图 3 的分析结论相互印证.

为直观地呈现不同  $\kappa$  值下阿秒脉冲的偏振特征, 图 7 展示了合成阿秒脉冲电场在特定平面的投影. 同时, 通过计算椭圆阿秒脉冲短轴与长轴的比值, 定量标定了其椭圆率. 随着  $\kappa$  值从 0 增大直至 0.003, 1s 轨道辐射的光场只在  $x$  方向上有信号, 而在  $y$  方向为零, 因此光场沿着  $x$  方向偏振, 即椭圆率  $\epsilon = 0$ . 而对于 2p 轨道, 当  $\kappa = 0, 0.001, 0.002, 0.003$  时, 辐射的光场均呈现椭圆分布, 即椭圆偏振, 对应的椭圆率分别为  $\epsilon = 0.485, 0.513, 0.456, 0.308$ , 电场的偏振方向为顺时针方向, 根据图 2 中

左右旋分量的高次谐波谱的相对效率, 对于 2p 轨道的高次谐波的右旋分量效率高于左旋分量, 因此总的高次谐波电场信号的偏振也会呈现右旋偏振, 即顺时针方向. 根据图 7 的结果, 即使我们使用的是线偏振的驱动激光场, 由于所用的初始轨道的轨道角动量不为零, 仍然能够得到椭偏的阿秒脉冲, 见 (8) 式—(14) 式的推导. 此外, 阿秒脉冲的时域特性, 例如阿秒脉冲的脉宽以及所辐射的脉冲个数, 能够通过驱动激光场的非均匀度进行调控.

最后, 系统分析了驱动激光场波长对环流态高次谐波谱截止区能量、时域阿秒脉冲的脉宽以及光场椭圆率的影响, 结果如图 8(a)—(c) 所示. 我们发现, 高次谐波截止区能量随激光场波长增大而增大, 当波长增大到 2000 nm 时, 高次截止区能量能够达到 650 eV. 不同波长参数下, 我们选取的高次谐波阶次都为 15 阶来合成阿秒脉冲, 脉冲脉宽大概都在 220—430 as 范围内, 合成的都为椭圆阿秒

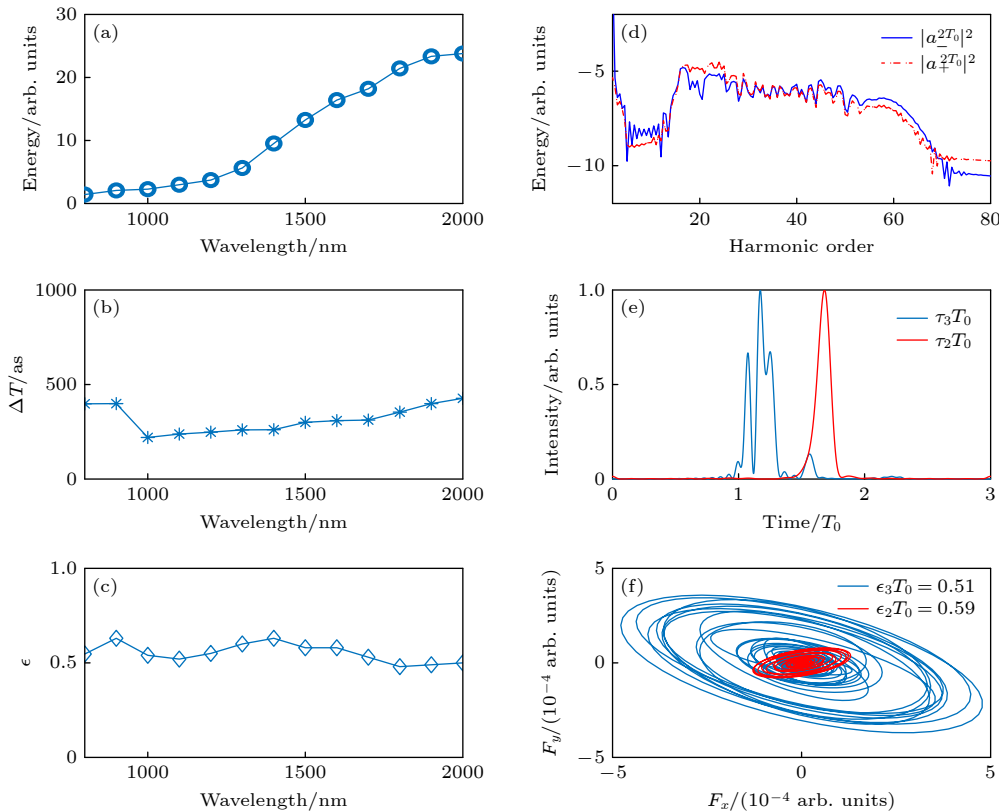


图 8 (a)—(c) 2p 轨道高次谐波截止区能量、合成的阿秒脉冲脉宽以及椭圆率随驱动激光场波长的变化; (d)—(f) 驱动激光光周期为  $2T_0$  时的高次谐波谱、合成的阿秒脉冲以及时域电场 (红色实线表示光周期为  $3T_0$  的结果), 合成的高次谐波谱段均为 35 阶—50 阶. 其余参数与图 2(h) 相同

Fig. 8. (a)—(c) Cut-off energy of high harmonic spectra of the 2p. orbital, pulse duration and ellipticity versus the wavelength; (d)—(f) the high harmonic spectra, attosecond pulses and time-domain electric field for the driving field with  $2T_0$  (The red solid lines represent the results for the driving field with  $3T_0$ ). The attosecond pulses synthesized by the harmonics of 35th—40th. Other parameters are the same as those in Fig. 2(h).

脉冲, 椭圆率至少为 0.5. 此外, 还计算了  $2T_0$  的驱动场作用下的高次谐波, 如图 8(d)–(f) 所示, 和  $3T_0$  的结果对比, 发现不同激光场的光周期也会影响高次谐波截止区能量, 光周期越长, 电子在电场中演化的时间越久, 积累的能量越大截止区能量越高, 选取 35 阶—50 阶谐波合成阿秒脉冲, 发现  $2T_0$  的结果是孤立的阿秒脉冲, 而  $3T_0$  是阿秒脉冲链, 这是由于少光周期电子回复的轨道路径减少, 并且  $2T_0$  的阿秒脉冲电场椭圆率大于  $3T_0$  的结果. 图 8 结果表明, 不同的光波长和光周期数均可产生椭圆阿秒脉冲, 适当放宽了实验条件.

## 4 结 论

本文围绕非均匀线偏激光场驱动下原子孤立椭圆阿秒脉冲的产生进行开展, 基于数值模拟的方法, 通过求解含时薛定谔方程, 系统计算了不同非均匀度下高次谐波的效率与椭圆率, 研究发现, 调节非均匀度可有效地拓宽高次谐波频谱并影响高次谐波的平滑程度. 进一步研究表明, 当非均匀场与携带轨道角动量的原子相互作用时, 通过优化  $\kappa$  参数, 不仅能够实现高次谐波谱的展宽与平滑性, 还可借助非均匀场与携带轨道角动量的原子轨道相互作用, 获得孤立的椭圆偏振阿秒脉冲. 这一发现不仅拓展了阿秒光源的偏振调控方法, 还为研究量子材料中的超快电子动力学行为提供了创新工具, 为后续的研究奠定基础.

## 参考文献

- [1] Brabec T, Krausz F 2000 *Rev. Mod. Phys.* **72** 545
- [2] Paul P M, Toma E S, Breger P, Mullot G, Augé F, Balcou Ph, Müller H G, Agostini P 2001 *Science* **292** 1689
- [3] Gaumnitz T, Jain A, Pertot Y, Huppert M, Jordan I, Ardana-Lamas F, Wörner H J 2017 *Opt. Express* **25** 27506
- [4] Sansone G, Benedetti E, Calegari F, et al. 2006 *Science* **314** 443
- [5] Seres J, Yakovlev S V, Seres E, Strelcić C H, Wobrauschek P, Spielmann C H, Krausz F 2007 *Nat. Phys.* **3** 878
- [6] Goulielmakis E, Schultze M, Hofstetter M 2008 *Science* **320** 1614
- [7] Mairesse Y, Bohan D A, Frasinski J K, et al. 2003 *Science* **302** 1540
- [8] Li J, Ren X, Yin Y, et al. 2017 *Nat. Commun.* **8** 186
- [9] Kukkk E, Myllynen H, Nagaya K, et al. 2019 *Phys. Rev. A* **99** 023411
- [10] Mairesse Y, Higuier J, Dudovich N, et al. 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 229901
- [11] Chen Z J, Wang Y, Morishita T 2019 *Phys. Rev. A* **100** 023405
- [12] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [13] Ferré A, Handschin C, Dumergue M, et al. 2015 *Nat. Photonics* **9** 93
- [14] Kfir O, Grychto P, Turgut E, et al. 2015 *Nat. Photonics* **9** 99
- [15] Sinev I, Richter U F, Toftul I, Glebov N, Koshelev K, Hwang Y, Lancaster G D, Kivshar Y, Altug H 2025 *Nat. Commun.* **16** 6091
- [16] Valev K V, Engheta N, Pendry B J 2023 *Adv. Mater.* **35** e2306073
- [17] Shao R, Zhai C, Zhang Y, Sun N, Cao W, Lan P, Lu P 2020 *Opt. Express* **28** 15874
- [18] Lambert G, Vodungbo B, Gautier J, et al. 2015 *Nat. Commun.* **6** 6167
- [19] Yuan J K, Bandrauk D A 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 023003
- [20] Fleischer A, Kfir O, Diskin T, Sidorenko P, Cohen O 2014 *Nat. Photonics* **8** 543
- [21] Medišauskas L, Wragg J, van der Hart H, Yu. Ivanov M 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 153001
- [22] Zhou X, Lock R, Wagner N, Li W, Kapteyn C H, Murnane M M 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 073902
- [23] Niikura H, Dudovich N, Villeneuve M D, Corkum B P 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 053003
- [24] Xie X, Scrinzi A, Wickenhauser M, Baltuška A, Barth I, Kitzler M 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 033901
- [25] Weber A, Böning B, Minneker B, Fritzsche S 2021 *Phys. Rev. A* **104** 063118
- [26] Liu X, Zhu X, Li L, Li Y, Zhang Q, Lan P, Lu P 2016 *Phys. Rev. A* **94** 033410
- [27] Milošević B D 2015 *Phys. Rev. A* **92** 043827
- [28] Manger F, Bandrauk D A, Uzer T 2016 *J. Phys. B* **49** 10LT01
- [29] Hickstein D D, Dollar J F, Grychto P, et al. 2015 *Nat. Photonics* **9** 743
- [30] Dorney M K, Ellis L J, Hernández-García C, et al. 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 063201
- [31] Zhang X, Li L, Zhu X, Liu K, Liu X, Wang D, Lan P, Barth I, Lu P 2018 *Phys. Rev. A* **98** 023418
- [32] Le A T, Lucchese R R, Lin C D 2010 *Phys. Rev. A* **82** 023814
- [33] Zhang X F, Zhu X S, Liu X, Wang F, Qin M Y, Liao Q, Lu P X 2020 *Phys. Rev. A* **102** 033103
- [34] Ou T, Wang F, Yuan H, Yang C, Song J, Liao Q 2025 *Opt. Commun.* **574** 131183
- [35] Mandal A, Singh P K 2023 *Laser Phys.* **33** 015301
- [36] Ammosov M V, Delone N B, Krainov V P 1986 *Sov. Phys. JETP* **64** 1191
- [37] Ding Y, Wang K, Zhang X 2025 *Opt. Laser Technol.* **184** 112561
- [38] Luo J H 2014 *Ph. D. Dissertation* (Wuhan: Huazhong University of Science and Technology) (in Chinese) [罗江华 2014 博士学位论文(武汉: 华中科技大学)]
- [39] Zhang X F, Zhu X S, Liu X, Wang D, Zhang Q B, Lan P F, Lu P X 2017 *Opt. Lett.* **42** 1027

# Generation of elliptically polarized isolated attosecond pulses from atoms driven by non-uniform linearly polarized laser fields\*

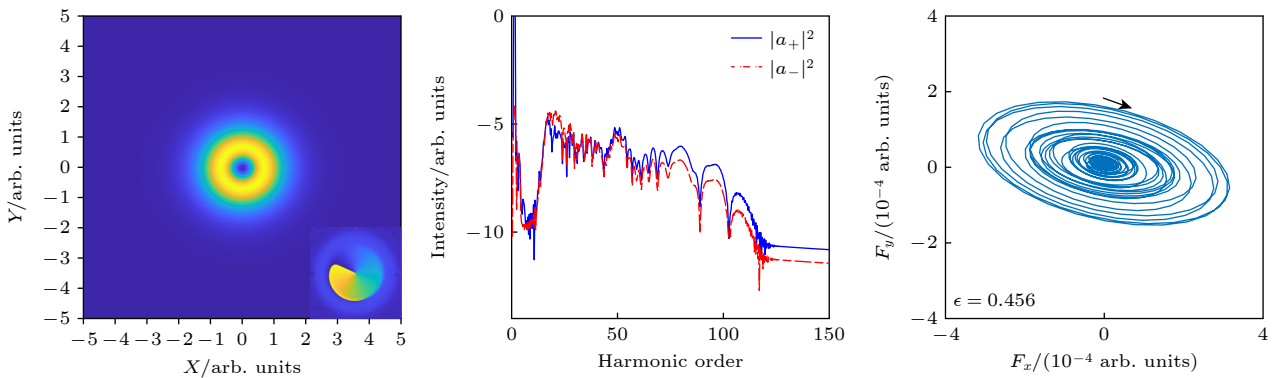
TU Qiaoshu    ZHANG Xiaofan<sup>†</sup>    ZHAN Shiyu    QIN Meiyuan  
 KE Shaolin    LIAO Qing

(Hubei Key Laboratory of Optical Information and Pattern Recognition, Wuhan Institute of Technology, Wuhan 430200, China)

( Received 17 July 2025; revised manuscript received 10 August 2025 )

## Abstract

Elliptically polarized attosecond pulse has significant applications in studying the ultrafast chiral dynamics and X-ray magnetic circular dichroism (XMCD) due to its ultrashort time-scale (attosecond) and elliptical polarization characteristics. In this work, the interaction between the non-uniform linearly polarized laser field and the Ne atoms is simulated by numerically solving the time-dependent Schrödinger equation. Specifically, the influences of the non-uniformity of the driving field and the orbital angular momentum (OAM) of the initial orbital on high-order harmonics (HHs) and attosecond pulses are revealed. HHs generated by the linearly polarized laser fields with different non-uniformities are calculated. The results indicate that the non-uniformity significantly influences the smoothness and spectral broadening of the harmonic spectra, consequently affecting the properties of the attosecond pulses. Moreover, our findings also reveal that the OAM of the initial orbital plays a significant role in the polarization state of the attosecond pulses. When the OAM is zero (e.g.,  $1s$  orbital), the radiated attosecond pulses are linearly polarized, whereas non-zero OAM (e.g., current carrying state  $2p_{-}$  orbital) leads to elliptically polarized emission. This study provides a theoretical foundation for generating and controlling elliptically polarized isolated attosecond pulses by using non-uniform linearly polarized laser fields, and offers new possibilities for ultrafast spectroscopy and magnetic material characterization.



**Keywords:** high order harmonic, elliptically polarized isolated attosecond pulse, current carrying state, non-uniform laser field

**PACS:** 42.65.Ky, 42.65.Re, 33.20.Xx

**DOI:** [10.7498/aps.74.20250948](https://doi.org/10.7498/aps.74.20250948)

**CSTR:** [32037.14.aps.74.20250948](https://cstr.cn/32037.14.aps.74.20250948)

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11904269, 12174295) and the Natural Science Foundation of Hubei Province, China (Grant No. 2021CFB300).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: [zhangxiaofan@wit.edu.cn](mailto:zhangxiaofan@wit.edu.cn)

非均匀线偏激光场驱动下原子椭圆孤立阿秒脉冲的产生

涂乔舒 张晓凡 占诗羽 秦梅艳 柯少林 廖青

**Generation of elliptically polarized isolated attosecond pulses from atoms driven by non-uniform linearly polarized laser fields**

TU Qiaoshu ZHANG Xiaofan ZHAN Shiyu QIN Meiyuan KE Shaolin LIAO Qing

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 74, 194203 (2025) DOI: 10.7498/aps.74.20250948

CSTR: 32037.14.aps.74.20250948

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250948>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

---

## 您可能感兴趣的其他文章

### Articles you may be interested in

优化双色近红外激光及其二次谐波场驱动原子产生孤立阿秒脉冲

Generation of isolated attosecond pulses from atoms driven by optimized two near-infrared pulses and their second harmonic fields

物理学报. 2022, 71(23): 233207 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221375>

优化组合激光场驱动原子产生高次谐波及单个超短阿秒脉冲理论研究

Theoretical study of high-order harmonics and single ultrashort attosecond pulse generated by optimized combination of laser field

物理学报. 2022, 71(23): 233204 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221298>

利用三色组合脉冲激光获得孤立阿秒脉冲发射

Isolated attosecond pulse generation from helium atom irradiated by a three-color laser pulse

物理学报. 2022, 71(5): 054204 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211502>

阿秒脉冲的发展及其在原子分子超快动力学中的应用

Development of attosecond pulses and their application to ultrafast dynamics of atoms and molecules

物理学报. 2023, 72(5): 053202 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20222436>

强激光等离子体相互作用驱动高次谐波与阿秒辐射研究进展

Research progress of high-order harmonics and attosecond radiation driven by interaction between intense lasers and plasma

物理学报. 2021, 70(8): 084206 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210339>

强激光与固体密度等离子体作用产生孤立阿秒脉冲的研究进展

Isolated attosecond pulse generation from the interaction of intense laser pulse with solid density plasma

物理学报. 2023, 72(5): 054207 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20222262>