arXiv:2301.02525v1 [physics.atom-ph] 6 Jan 2023

利用振幅偏振红外脉冲扭转阿秒脉冲串

Enrique G. Neyra,[1,*] Fabi´án Videla,[1,2] Demian A. Biasetti,[1] Marcelo F. Ciappina,[3,4,5,†] 和 Lorena Reb´ón[6,7,‡]

[1]光学研究中心（CIC BA-CONICET-UNLP），Cno. Parque Centenario y 506，邮政信箱 3，1897 Gonnet，阿根廷

[2]拉普拉塔国立大学工程学院基础科学系，1 y 47，拉普拉塔，阿根廷

[3]广东以色列理工学院物理系，中国广东汕头大学路 241 号，邮编 515063

[4]以色列理工学院，以色列海法，邮编 32000

[5]广东以色列理工学院广东省能源转换材料与技术重点实验室，中国广东汕头大学路 241 号，邮编 515063

[6]拉普拉塔国立大学 FCE 物理系，邮政信箱 67，1900 拉普拉塔，阿根廷

[7]拉普拉塔物理研究所，UNLP - CONICET，阿根廷

（日期：2023年1月9日）

摘要

从本质上说，原子和分子过程发生在亚飞秒时间尺度上。为了追踪并捕捉这一时间尺度上的电子运动，我们需要合适的“探针”。阿秒脉冲是实现这一目的的理想工具。这些超短光脉冲簇由强激光场与物质相互作用产生，同时生成驱动光源的高次谐波。本文提出了一种扭转阿秒脉冲列的方法。在我们的方案中，脉冲列中的每个阿秒脉冲都具有明确的线偏振，但彼此之间的偏振角各不相同。为实现这一目标，我们采用具有特定偏振态（称为振幅偏振）的红外脉冲。这类脉冲已在先前的工作中通过实验合成。随后，我们利用该激光光源对原子系统进行非线性驱动，通过高次谐波产生过程获得扭转的阿秒脉冲列。我们实现了对超短相干极紫外辐射偏振的高度控制。借助量子力学模拟，并辅以信号处理工具，我们得以剖析产生过程背后的物理机制。我们相信，这些经偏振塑形的极紫外光源将在未来的泵浦-探测实验中发挥关键作用。

经典电动力学和量子力学是描述许多自然现象的基础。通过测量波长和光速，电磁学为我们提供了提取光场振荡速度的工具。同样，量子力学将电子运动的快慢与已占据量子态的能量分布联系起来。通过适当调节光源，可以通过光子吸收和发射访问这些量子态。光振荡和电子动力学的固有时间尺度都处于阿秒范围。这些基本过程构成了材料和软物质物理、化学及生物性质发生任何变化的基本步骤。因此，实时捕捉并操控这些过程，对于开发新型材料和技术，以及理解由光场引发的基本原子和分子现象都至关重要 [1, 2]。

自首次测量到阿秒脉冲列（APT）以来 [3], ，阿秒科学取得了长足发展：从获得孤立阿秒脉冲（IAP） [4] 到

产生光学阿秒脉冲 [5], ，并基于这些光源实现了大量应用 [6–8]。众所周知，阿秒脉冲列源自高次谐波产生（HHG）现象。在这一过程中，高强度红外（IR）激光脉冲与气体系统相互作用，每半个激光周期都会产生一阵极紫外（XUV）辐射，即形成一列超短XUV脉冲。阿秒脉冲列产生背后的物理机制植根于所谓的三步模型，即（i）隧穿电离、（ii）经典运动和（iii）复合。电子在激光连续态中运动时获得的能量，会在其与母离子复合时转化为高能光子。强场近似（SFA）可用于模拟高次谐波产生过程，进而模拟阿秒脉冲列的产生 [9]。此外，也可以采用基于含时薛定谔方程（TDSE）数值求解的完整量子力学模型¨，但这样会失去电子动力学与其相关基本过程之间清晰直观的联系。

获得孤立阿秒脉冲是探索电子在其自然时间尺度上的动力学的关键 [4]。尽管在实验上生成孤立阿秒脉冲比生成阿秒脉冲列要求高得多，但可以采用多种技术来分离单个阿秒脉冲，包括振幅门控、灯塔效应、电离门控以及不同的偏振门控装置 [10, 11], 。另一方面，操控激光脉冲的时空特性或偏振态，可以为激光-物质相互作用增加新的自由度，而不仅限于辐射的频率和振幅。为实现这一目标，人们开发了种类繁多的脉冲整形技术 [12–14] ，这些技术需要使用波片、空间光调制器、声光调制器、干涉仪系统等光学元件和设备，它们能够在电磁波谱的可见光和红外区域工作。然而，要像控制可见光-红外区域那样控制极紫外相干辐射极具挑战性，因为通常没有专为该波长范围设计的简单物理器件。因此，对通过高次谐波产生生成的极紫外相干辐射的各种属性进行控制，应通过操控红外驱动脉冲来实现。

迄今已采用多种方案和光源，实现对所产生极紫外辐射的高度控制，例如阿秒光涡旋 [15, 16], 携带光学角动量（OAM）的结构光束 [17], 可控光学角动量光源 [18, 19], 非线性光学中的手性 [20] 以及其他方案 [21, 22]。特别是，通过使用双色反向

旋转圆偏振脉冲，可以在气体介质中产生圆偏振高次谐波 [23–26]。在时间域中，这类谐波会形成阿秒脉冲列，其中每个阿秒脉冲的偏振态取决于描述双色驱动场的利萨如曲线；这些曲线呈花朵状，其花瓣沿圆周等距分布。此外，这些阿秒脉冲的时间结构具有一定周期，该周期取决于双色场中的频率比 [25, 27–31]。该频率比还决定了利萨如曲线中的花瓣数量及其间的夹角。通过操控阿秒脉冲列中每个阿秒脉冲的偏振态，可以更深入地研究和理解极紫外区域的超快磁学 [32] ，无论是在分子 [33] 还是固体系统 [34]中。此外，这也为探索手性系统 [35] 以及对圆偏振高次谐波场进行层析重建 [36]提供了可能。

本文研究了由两个彼此存在时间延迟的单色正交偏振脉冲驱动气体靶时的高次谐波产生。我们在单活性电子近似下，通过数值求解三维含时薛定谔方程 (三维含时薛定谔方程) 来模拟激光与物质相互作用的非线性电子动力学。我们还借助信号处理和经典工具，分析所产生阿秒脉冲列的偏振特性及其时间结构。我们将展示一种扭转阿秒脉冲列的方法：产生一列阿秒脉冲，使其中每个阿秒脉冲都具有明确的线偏振，但彼此之间的偏振角各不相同。由于我们合成的偏振脉冲具有独特特性，这项技术在时间域内与双色反向旋转圆偏振脉冲类似，但其主要优势在于实验装置更简单：只需一个单色驱动脉冲，即可控制脉冲列中各阿秒脉冲之间的偏振角。

结果

振幅偏振脉冲

当一个线偏振激光脉冲的电场为 $\boldsymbol{E}(t)$、载波频率为 ω_0、场包络为 $f(t)$、全局相位为 ϕ时，若其入射到双折射介质上，且其偏振

方向与光轴成一定角度，则场分量 $E_x(t)$ 和$E_y(t)$在该介质中的传播速度不同。因此，它们之间会产生时间延迟 τ。具体而言，当偏振方向与光轴成 45° 角时，该电场可用数学形式描述为 $\boldsymbol{E}(t) = E_x(t)\,\check{}e_x + E_y(t)\,\check{}e_y = E_0\ f(t)\cos(\omega_0 t+\phi_x)\,\check{}e_x + E_0\ f(t-\tau)\cos(\omega_0 t+\phi_y)\,\check{}e_y$，其中 E_0为激光电场峰值振幅，而相位 ϕ_x 和 ϕ_y 则考虑了电场 ϕ的全局相位。一般而言，当相位差 $\Delta\phi = \phi_y - \phi_x = -\omega_0\tau \neq n\pi\ (n \in \mathbb{Z})$ 时，称该脉冲具有圆偏振（$\Delta\phi = \pm\ \pi/2$）或椭圆偏振（ $\Delta\phi$的其他任意值），圆偏振（椭圆偏振）对应的椭圆率为 $\epsilon = 1(0 < \epsilon < 1)$。需要指出的是，在所考虑的情形（$\Delta\phi \neq n\pi$）下，由于场包络存在时间延迟 τ，脉冲的椭圆率 $\epsilon(t)$随时间变化。随即便会产生一个问题： $\epsilon(t)$的变化有多快？答案如下：鉴于 $\epsilon(t)$取决于脉冲带宽 $\Delta\omega$，变化快慢分别取决于 $\Delta\omega \approx \omega_0$ 或 $\Delta\omega \ll \omega_0$。

另一方面，当相位差为 $\Delta\phi = n\pi$ 时，对电场的数学描述为 $\boldsymbol{E}(t) = E_0\ f(t)\cos(\omega_0 t+\phi)\,\check{}e_x + E_0\ f(t-\tau)\cos(\omega_0 t+n\pi+\phi)\,\check{}e_y = E_0(f(t)\,\check{}e_x + f(t-\tau)\,\check{}e_y)\cos(\omega_0 t+\phi)$，其中 n 为偶数；若 n 为奇数，则为 $\boldsymbol{E}(t) = E_0(f(t)\,\check{}e_x - f(t-\tau)\,\check{}e_y)\cos(\omega_0 t+\phi)$。值得一提的是，电场必须以这种方式表示，因为该脉冲具有带宽 $\Delta\omega \neq 0$。相反，对于单色场，时间平移 $\tau = \frac{n\pi}{\omega_0}$ 不会改变两种正交偏振之间的振幅比。

在实验上，上述偏振方案已在文献 [37], 中提出并合成，用于控制 N_2 分子的角动量取向。此后，研究人员还探讨了其他分子情形 [38–43]。这种偏振应与线偏振、圆偏振或椭圆偏振归为不同类别；考虑到其数学表达形式，我们将其称为振幅偏振（AP）。然而，文献中对它的称谓并不统一，不同作者有不同的叫法，例如单向偏振 [39],扭曲偏振 [38], 偏振整形脉冲 [40], 以及偏振倾斜 [41, 44]。

接下来，我们将展示如何利用这一 AP 场扭曲阿秒脉冲列。在图 1 中，可以看到产生阿秒脉冲所需实验装置的示意图；通过气体系统中的高次谐波产生，即可得到扭曲阿秒脉冲列。首先，利用多阶波片（MOWP）和贝瑞克补偿器产生 IR–AP 脉冲

（BC）。两者置于单束光的传播路径上，该光相对于 MOWP 的光轴以 45° 线偏振 [37]。与其他用于产生或操控阿秒脉冲的偏振合成方案相比，这种配置具有显著优势；其他方案需要双色脉冲和复杂的干涉系统 [25, 27–29, 34, 36]。在我们的方案中，先前合成的 IR–AP 脉冲穿过超音速气体射流，产生高次谐波，其偏振由 IR–AP 脉冲的特性塑造。经过适当滤波后，所得阿秒脉冲列可用于驱动原子、分子或固体样品，并以阿秒时间分辨率追踪多维电子动力学。

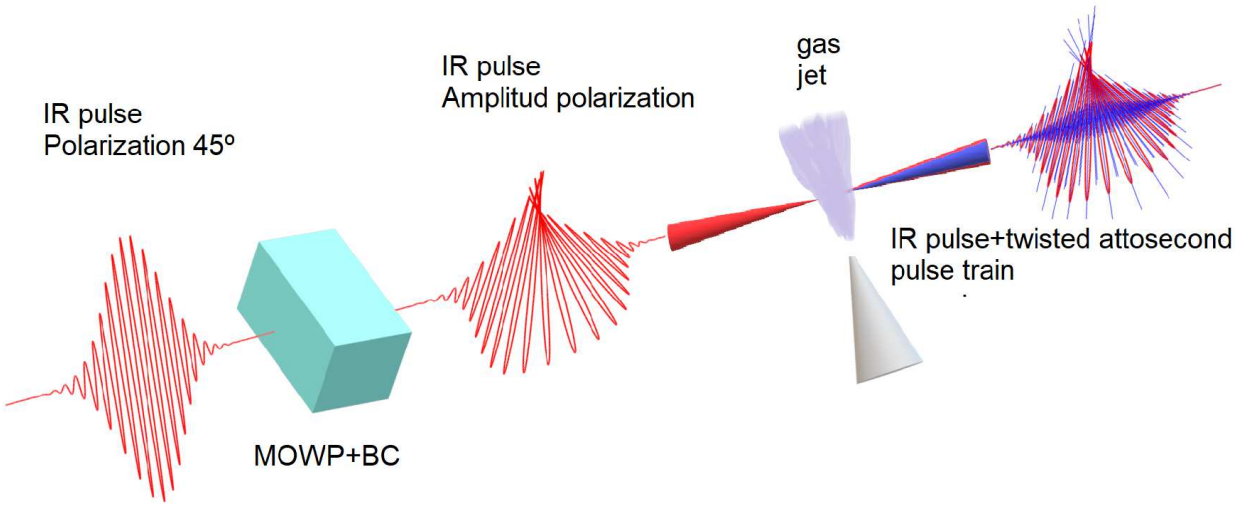

图 1. 实验装置示意图。红外阿秒脉冲由多阶波片（MOWP）和贝瑞克补偿器（BC）产生。这两个光学元件置于单束光的光路中。输入红外脉冲相对于 MOWP 的光轴呈线性偏振，夹角为 45°。合成后的红外阿秒脉冲穿过超音速原子气体射流，并产生高次谐波；其偏振由红外阿秒脉冲的特性控制。随后对产生的扭曲阿秒脉冲列进行滤波，便可用于研究自然时间尺度上的基本原子或分子过程。

扭曲阿秒脉冲列

我们的目标是理解红外–AP脉冲与原子靶相互作用的内在物理机制。为此，我们将计算不同

相关场参数取值下，典型原子系统的高次谐波产生光谱 .

我们可以先通过显式写出 AP电场 $\boldsymbol{E}(t)$ 的分量 $E_x(t)$ 和 $E_y(t)$ 来定义该电场。例如，假设其场包络为高斯场包络 $f(t)$，则可写为：

$$E_x(t) = E_0\, e^{-2\ln(2)\left(\frac{t+\tau/2}{\Delta t}\right)^2} \cos(\omega_0(t+\tau/2)+\phi) \tag{1a}$$

$$E_y(t) = E_0\, e^{-2\ln(2)\left(\frac{t-\tau/2}{\Delta t}\right)^2} \cos(\omega_0(t-\tau/2)+\phi), \tag{1b}$$

其中，Δt 为时间半高全宽（FWHM）。为简单起见，时间延迟 τ 以 $t=0$ 为中心对称表示。

根据方程（1a）和（1b）中的表达式，我们的数值计算采用了 $E_0 = 0.053$ a.u.，对应的激光强度为 $I_0 = 10^{14}$ W/cm^2, ，波长为 $\lambda = 800$ nm（$\omega_0 = 0.057$ a.u.）。我们分析了红外–AP脉冲在多周期和少周期区间内的相互作用。对于前一种情况，我们考虑了半高全宽为 $\Delta t = 5$ 个光学周期的脉冲（1 个光学周期 $= \frac{2\pi}{\omega_0} \approx 2.7$ fs）。对于后一种情况，我们将半高全宽设为 $\Delta t = 2$ 个光学周期。通过单活性电子（SAE）近似下的三维含时薛定谔方程（3D–TDSE）（详情参见文献 [45, 46] ），我们计算了由 $\boldsymbol{E}(t)$ 驱动的高次谐波产生谱的 x 和 y 分量。作为典型的原子靶，我们选取氢（H），其电离势为 $I_p = 0.5$ a.u.。通过调整相应模型势的参数，可以恰当地模拟其他原子靶。时间延迟 τ 选为 $\tau = \Delta t$。在此选择下，合成 AP 场的峰值强度 $|\boldsymbol{E}(t)|_{\max}$ 在脉冲的中心区域几乎保持恒定，等于 E_0（见补充信息）。

图 2 展示了使用 3D-TDSE 得到的结果，所用阿秒脉冲的时间半高全宽为 $\Delta t = 5$ 个光学周期，全局相位为 $\phi = 0$。图 2(a) 和图 2(b) 分别展示了沿 x 轴和 y 轴的谐波辐射投影（见补充信息）。同时，图 (c) 和图 (d) 展示了上述光谱的小波分析，并叠加了相应的电场分量 $E_x(t)$（白色实线）和 $E_y(t)$（红色实线）。

我们的结果核心如图3所示，其中可以看到扭曲阿秒脉冲列的时间结构。该时间表征是在对上文图2(a)和图2(b)中高于第20次谐波的高次谐波产生光谱进行光谱滤波后得到的。随后，仅展示图2(a)和图2(b)中以红色标出的光谱区域，而这些区域又对应于

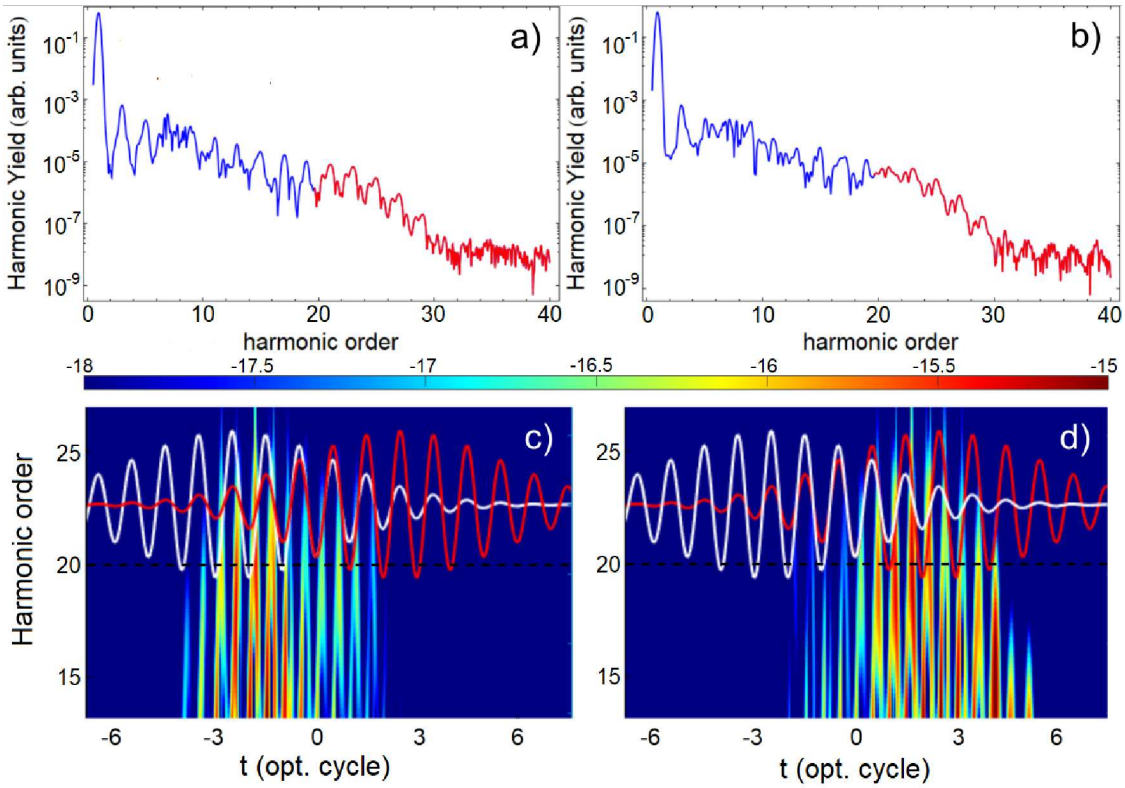

图 2. 高阶　　由振幅-偏振（AP）多

周期脉冲。(a)和(b)图：分别由场分量 $E_x(t)$和$E_y(t)$产生的高次谐波产生光谱。阿秒脉冲的半高全宽为 $\Delta t = 5$ 光学周期，全局相位为$\phi = 0$。光谱中的红色区域表示用于获得扭曲阿秒脉冲列的选定部分（详情见正文）。(c)和(d)图：分别根据偶极加速度$a_x(t)$和$a_y(t)$得到的小波分析。阿秒脉冲的 x (y)分量分别以白色（红色）实线叠加显示。位于第 20th 次谐波处的黑色虚线标示了所选区域的下限。

位于图 2(c) 和图 2(d) 中黑色虚线以上。通过这种光谱滤波，我们可以选出所谓的截止区，在该区域中，谐波的光谱相位几乎恒定，因此相应的阿秒脉冲可视为傅里叶变换极限。相反，众所周知，在高次谐波产生谱的平台区，由于不同电子轨迹的复合时间不同，即辐射的发射时间不同（见图 2(c) 和图 2(d) 中的小波分析），阿秒脉冲的产生具有内禀光谱相位，即所谓的阿秒啁啾。通常，可以通过金属箔在实验上补偿这一相位 [47]。

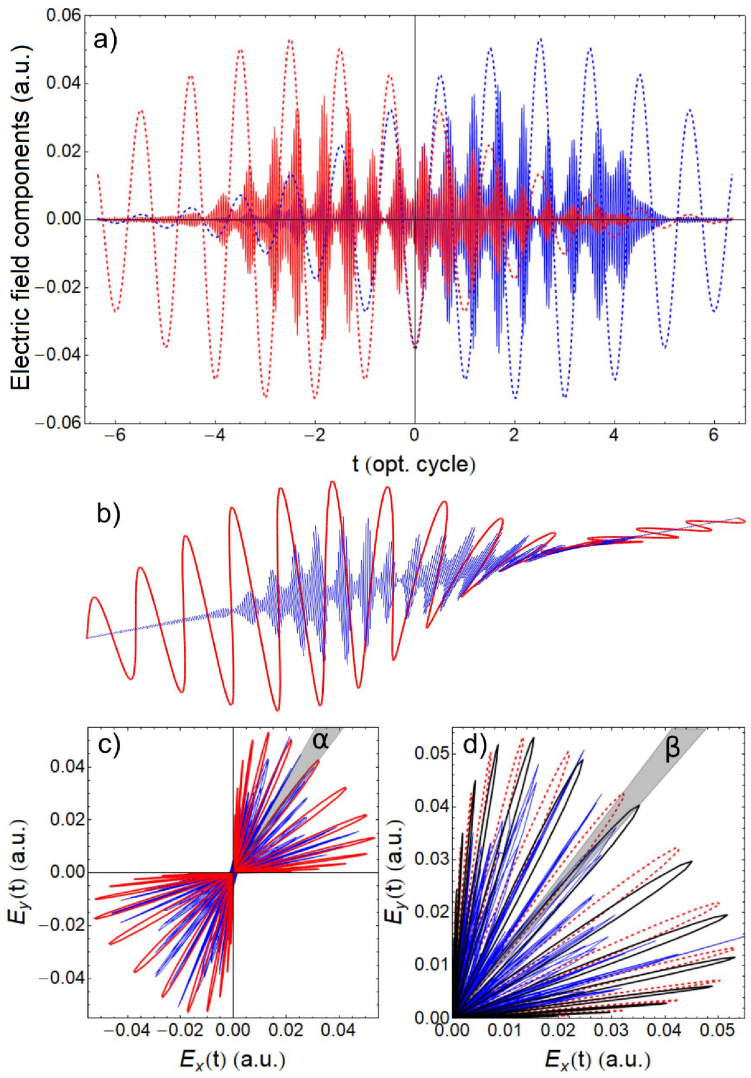

图 3. 扭曲阿秒脉冲列的时间结构：多周期脉冲模式。(a) 投影

扭曲阿秒脉冲列在 x–y 平面中的表示（实线），以及阿秒脉冲的场分量 $E_x(t)$ 和 $E_y(t)$（分别以红色和蓝色虚线表示）。所示结果对应于图 2 中光谱所选区域内的结果。(b) 扭曲阿秒脉冲列的三维表示（蓝色实线）以及阿秒脉冲的激光电场（红色实线）。(c) 阿秒脉冲的激光电场（红色实线）和扭曲阿秒脉冲列（蓝色实线）的李萨如图形。阴影区域表示相邻两个阿秒脉冲偏振方向之间的角间距 α。(d) 与面板 (c) 相同，但对应于全局相位为 $\phi = \pi/2$ 的驱动阿秒脉冲场（仅绘出第一象限）。同时还显示了全局相位为 $\phi = 0$ 的阿秒脉冲激光电场（红色虚线）。阴影区域表示全局相位分别为 $\phi = 0$ 和 $\phi = \pi/2$ 的两个阿秒脉冲偏振方向之间的角间距 β。

现在，让我们来剖析阿秒脉冲列扭曲的时间结构。为此，我们在图3(a)中绘出了场 $\boldsymbol{E}(t)$ 的分量（虚线）和扭曲阿秒脉冲列（实线）。 x分量（y分量）以红色（蓝色）显示。从图中可以看出，每经过阿秒脉冲的半个周期，便会产生一个阿秒脉冲；最重要的是，脉冲列中阿秒脉冲的 x和 y 分量之间的相对振幅会逐个脉冲发生变化。这表明相邻两个阿秒脉冲之间的偏振不同。此外，图3(b)还展示了扭曲阿秒脉冲列完整的时间三维表示（蓝色实线），其中也绘出了阿秒脉冲的激光电场（红色实线）。从图中可以清楚地看到脉冲列中各个阿秒脉冲偏振的时间演化及其旋转方式，只需追踪阿秒脉冲的时间演化即可。

为了更直观地展示各个阿秒脉冲的偏振特性，我们在图3(c)中给出了阿秒脉冲的激光电场（红色实线）和扭曲阿秒脉冲列的电场（蓝色实线）的利萨如曲线。从图中可以得出两个重要结论：首先，每个阿秒脉冲都具有近乎完美的线偏振。其次，每个阿秒脉冲的偏振方向都沿着描述 AP电场偏振的“花瓣”的取向。可以得到相邻两个阿秒脉冲之间偏振方向的差值，α （见阴影区域）；在本例中，该差值为 $\approx 7.5°$。

最后，根据图3(d)，我们可以分析将驱动阿秒脉冲的全局相位改变 $\pi/2$ 后，先前的结果如何变化。考虑到阿秒脉冲的偏振方向由花瓣的位置决定，为了便于清晰比较，我们仅展示第一象限内电场的利萨如曲线。这里，全局相位为 $\phi = 0$ （$\phi = \pi/2$）的阿秒脉冲分别用红色虚线（黑色实线）表示，而扭曲阿秒脉冲列则用蓝色实线表示。全局相位不同的这些 AP场之间的偏振方向变化标示为 β （见阴影区域）。在本例中， $\beta \approx 3.9°$，即 $\beta \approx \alpha/2$。因此，当全局相位 ϕ 变化 $\pi/2$时，阿秒脉冲列整体旋转的角度等于 β。

以上所有分析均在多周期区间内进行。为了完整呈现这一图景，下面我们考察少周期脉冲的动力学。在图4中，我们展示了半高全宽为 $\Delta t = 2$ 光学周期的阿秒脉冲的结果。对于这一半高全宽，阿秒脉冲中相邻两个花瓣之间的角间距显著大于

此前多周期情形中的角间距。为进行一一比较，图4(a)和图4(b)展示了这一少周期情形下对应高次谐波产生光谱的小波分析结果。阿秒脉冲的AP电场 $\boldsymbol{E}(t)$的 x 分量和 y 分量分别以白色和红色实线叠加显示。同样，在图4(c)中，我们绘出了阿秒脉冲的AP场的两个电场分量（虚线）以及阿秒脉冲列（实线）。其中， x分量（y分量）以红色（蓝色）显示。与此前的情形一样，阿秒脉冲各分量之间的相对振幅会随脉冲而变化。从利萨如曲线（图4(d)）可以看出，与图3(d)所示相比，阿秒脉冲的椭圆率略低，且相邻两个脉冲的偏振方向之间的角度 α 更大（$\alpha \approx 20^{\circ}$）。扭曲阿秒脉冲列的完整时间演化如图4(e)所示。与多周期区间的情况一样，高次谐波产生光谱经过了光谱滤波，此处仅展示从第20次谐波开始的部分（见图4(a)和图4(b)中的黑色虚线）。

关于 α 随时间半高全宽和时间延迟 τ变化的进一步分析见补充材料。总之，我们可以指出， α 几乎随 τ线性增加，这使我们清楚地了解如何通过合成驱动红外场来操控相邻两个阿秒脉冲之间偏振方向的变化。此外，补充材料还包含对电离电子再碰撞角 [45], 的计算，以及对连续态中电子轨迹的经典分析。

讨论

在本研究中，我们提出了一种简便的方法来产生阿秒脉冲列，其中每个阿秒脉冲都具有明确的线偏振，但脉冲之间的偏振方向各不相同。通过调控驱动红外场的偏振态，可实现阿秒脉冲列这一引人注目的特性。具体而言，在两个完全相同的红外脉冲副本之间引入可变时间延迟，即可获得阿秒脉冲。从经典角度看，这种扭曲阿秒脉冲列的产生，源于阿秒脉冲的偏振态随时间变化，使连续态中的电子轨迹发生微小偏移。这使电子以不同角度复合，其中“短”轨迹相对于“长”轨迹略有偏移。此外，这种偏移更

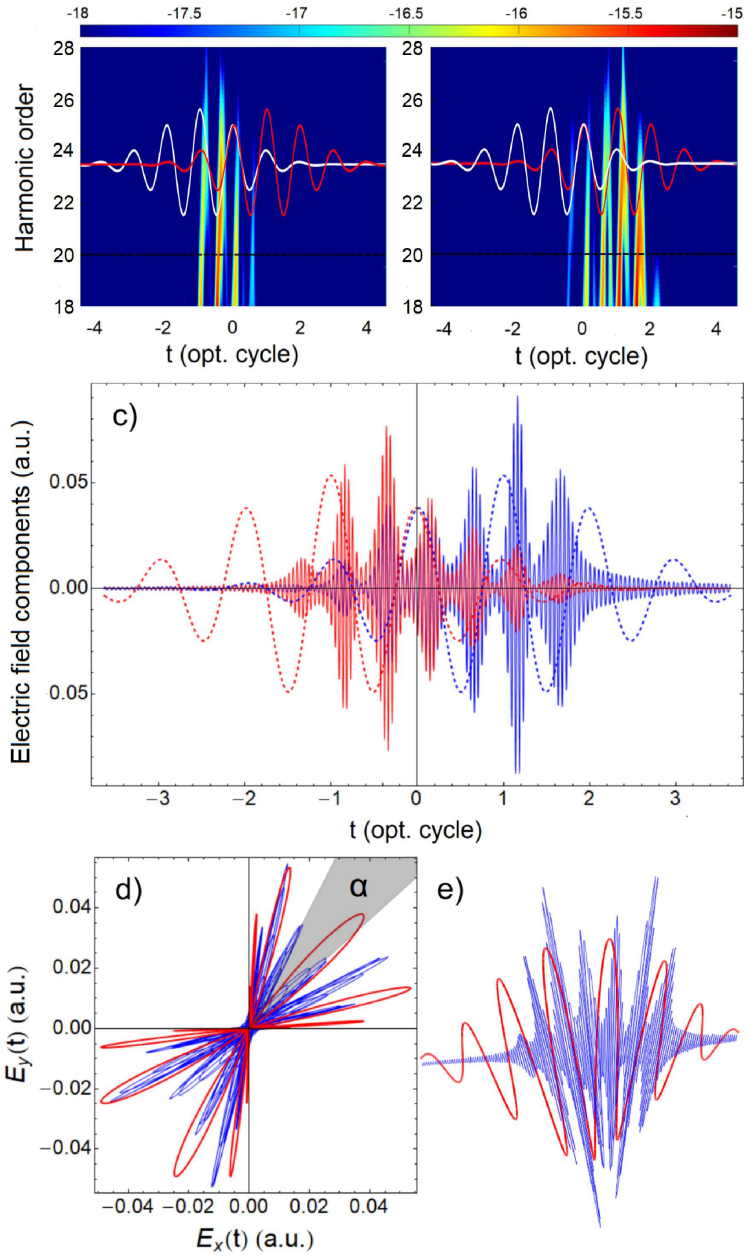

图4。时间结构　　扭曲阿秒脉冲列：少周期脉冲版本。与图中相同　　.

2(c)和2(d)（在该图中分别为面板(a)和(b)），以及图3(a)、3(b)和3(c)（在该图中分别为面板(c)、(d)和(e)），但这些结果是由时间半高全宽为 $\Delta t = 2$ 个光学周期的阿秒脉冲获得的。

在少周期驱动脉冲下尤为显著，这使得实现更大的旋转角成为可能。因此，电子轨迹相对于线偏振脉冲的这种微小偏离，使我们能够通过采用不同的传统光源来扩展当前的研究结果，

从而以高重复频率或不同波长获得阿秒脉冲列（APT），例如使用高能激光源。此外，我们的方案适用性广且稳健，可在多周期和少周期区间内实现。

能够实际操控阿秒脉冲列中各阿秒脉冲之间偏振角的可能性，将使基于阿秒脉冲的光谱技术迈上更高、更先进的台阶 [48–52]。例如，我们可以在明确的角度范围内产生光电子，或设计复杂的泵浦-探测技术。仅举几个例子，我们可以考虑多种泵浦-探测方案，即红外脉冲/扭曲阿秒脉冲列、阿秒脉冲/扭曲阿秒脉冲列，或扭曲阿秒脉冲列/扭曲阿秒脉冲列。后一种方案属于极紫外泵浦-极紫外探测方案，但其中每个脉冲都是由扭曲的孤立阿秒脉冲组成的脉冲列。此外，由于我们能够操控阿秒脉冲列中相邻两个脉冲之间的偏振角，因此可以设想利用单束光实现复杂的基于阿秒脉冲的光谱技术。除光电子能谱外，这种扭曲阿秒脉冲列还可用于 (i) 研究或驱动高度各向异性的系统，例如存在优先方向的系统，如分子系统、低维晶体结构等。 [7] 以及 (ii) 利用众所周知的条纹技术，在时域表征多维激光场；该技术主要用于线偏振场 [53], 等。

同样，与其他孤立阿秒脉冲产生技术（偏振门控、灯塔效应、振幅门控或电离门控 [47]）相比，我们的方法具有明显优势。首先，它能够使用多周期脉冲（而大多数孤立阿秒脉冲产生技术都需要少周期或单周期脉冲）。其次，AP 脉冲的合成在实验上很简单：只需一个单色脉冲，无需复杂的干涉系统；也就是说，我们只使用一条单束光路。第三，如果对谐波的光谱相位进行补偿，例如使用金属箔，就可以利用较大的光谱带宽来产生超短阿秒脉冲。

最后，我们想强调，在所提出的方案中，全局相位 ϕ 发挥着重要作用，可作为一个额外的“调节旋钮”。例如，我们已证明，驱动阿秒脉冲的全局相位发生变化时， $\pi/2$ 扭曲阿秒脉冲列会随之发生全局旋转。这意味着，在泵浦-探测实验中，或当我们希望对某些过程实施相干控制时，必须稳定阿秒脉冲的全局相位（载波包络相位）。相反，扭曲阿秒脉冲列的这种全局旋转可用于检测.....中的变化

全　　阿秒脉冲在少周期和多周期区间中的相位。

方法

为求得量子偶极加速度 $\boldsymbol{a}(t) = a_x(t)\,\check{}e_x + a_y(t)\,\check{}e_y$，我们在偶极近似下，通过将活性电子波函数展开为球谐函数 $Y_l^m(\theta,\phi)$，数值求解了三维含时薛定谔方程 [45, 46], :

$$\Psi(\boldsymbol{r},t) = \sum \frac{R_l^m(\boldsymbol{r},t)}{r} Y_l^m(\theta,\phi), \tag{2}$$

其中，θ 和 ϕ 分别为极角和方位角。根据埃伦费斯特定理，加速度算符 $\hat{}\boldsymbol{a}(t)$ 的 x 和 y 分量可表示为

$$\hat{a}_x = -[\hat{H},[\hat{H},\hat{x}]] = \left[\hat{H},\frac{\partial}{\partial r}\right]\cos(\theta), \tag{3a}$$

$$\hat{a}_y = -[\hat{H},[\hat{H},\hat{y}]] = \left[\hat{H},\frac{\partial}{\partial r}\right]\sin(\theta)\cos(\phi), \tag{3b}$$

$\hat{}$其中，H 为完整的哈密顿量。因此，$\boldsymbol{a}(t)$ 的各分量可表示为：$a_x(t) = \langle\Psi(\boldsymbol{r},t)|\hat{}a_x|\Psi(\boldsymbol{r},t)\rangle$ 以及 $a_y(t) = \langle\Psi(\boldsymbol{r},t)|\hat{}a_y|\Psi(\boldsymbol{r},t)\rangle$。随后，通过傅里叶变换计算出谐波谱振幅在 $x-y$ 平面上的投影 $|\tilde{a}_x(\omega)|$ 和 $|\tilde{a}_y(\omega)|$（图 2(a) 和 2(b) ），以及相应的谱相位 $\gamma_x(\omega)$ 和 $\gamma_y(\omega)$

$$\tilde{a}_x(\omega) = |\tilde{a}_x(\omega)|e^{i\gamma_x(\omega)} = \frac{1}{(t_f-t_i)\,\omega^2}\int_{t_i}^{t_f} e^{-i\omega t}a_x(t)\,dt \tag{4a}$$

$$\tilde{a}_y(\omega) = |\tilde{a}_y(\omega)|e^{i\gamma_y(\omega)} = \frac{1}{(t_f-t_i)\,\omega^2}\int_{t_i}^{t_f} e^{-i\omega t}a_y(t)\,dt, \tag{4b}$$

其中，时间 t_i 和 t_f 定义了积分窗口，既用于求解三维含时薛定谔方程，也用于计算这些积分。对于本文分析的两个情形中的第一种，脉冲的半高全宽为 $\Delta t = 5$ 个光学周期，数值计算在$t_i = -2757$ a.u. 和 $t_i = 2757$ a.u. 进行，时间步长为 1 a.u.。对于第二种情形，脉冲的半高全宽为 $\Delta t = 2$ 个光学周期，积分时间为 $t_i = -1103$ a.u. 和$t_i = 1103$ a.u.，时间步长为 1 a.u.。

一旦得到 $\boldsymbol{a}(t)$，便可通过计算 x 和 y 分量的加博变换进行小波分析，如下所示:

$$G_{x,y}(\omega,t)=\left|\int a_{x,y}(t')\,\frac{\exp[-(t-t')^2/2\sigma^2]}{\sigma\sqrt{2\pi}}\,\exp(i\omega t')\,dt'\right|^2. \tag{5}$$

$\sigma = 1/(3\omega_0)$的取值能够在时间分辨率和频率分辨率之间实现适当的平衡。$G_{x,\ y}(\omega, t)$则使我们能够研究高次谐波产生过程背后的时间动力学，并将其与经典模拟进行比较。

不同阿秒脉冲列的电场的 x–y 分量，通过滤波谐波谱并从 20th ($\omega_i = 20$) 谐波级次开始计算：$E_{XUV,x}(t)$ 和$E_{XUV,y}(t)$

$$E_{XUV,x}(t)=\int_{\omega_i=20\omega_0}^{\infty} e^{i\omega t}\tilde{a}_x(\omega)\,d\omega, \tag{6a}$$

$$E_{XUV,y}(t)=\int_{\omega_i=20\omega_0}^{\infty} e^{i\omega t}\tilde{a}_x(\omega)\,d\omega. \tag{6b}$$

致谢

M. F. C. 感谢广东省科技重大专项（极端条件下的未来功能材料 -2021B0301030005）提供的经费支持。E. G. N. 感谢国家科学技术研究委员会（CONICET）。F. A. V. 感谢布宜诺斯艾利斯省科学研究委员会。

* enriquen@ciop.unlp.edu.ar

† marcelo.ciappina@gtiit.edu.cn

‡ rebon@fisica.unlp.edu.ar[1] F. Krausz 和 M. Ivanov, 《阿秒物理学》, 《现代物理评论》81，163（2009）。[2] F. Krausz, 《阿秒物理学的诞生与成熟》, 《物理学文献》91，063011（2016）。

[3] P.-M. Paul, E. S.Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Aug´e, P. Balcou, H. G. Muller, and P. Agos- tini, 《观察到高次谐波产生中的阿秒脉冲列》, 《科学》292，1689（2001年）。

[4] G. Sansone, E. Benedetti, F. Calegari, C. Vozzi, L. Avaldi, R. Flammini, L. Poletto, P. Vil- loresi, C. Altucci, R. Velotta, 等, 《孤立单周期阿秒脉冲》, 《科学》314, 443（2006年）。[5] M. T. Hassan, T. T. Luu, A. Moulet, O. Raskazovskaya, P. Zhokhov, M. Garg, N. Karpowicz, A. Zheltikov, V. Pervak, F. Krausz, 等, 《光学阿秒脉冲及束缚电子非线性响应的跟踪》, 《自然》530, 66（2016年）。[6] F. Krausz 和 M. I. Stockman, 《阿秒计量学: 从电子捕获到未来的信号处理》, Nat. Photon. 8, 205（2014年）。[7] J. Li, J. Lu, A. Chew, S. Han, J. Li, Y. Wu, H. Wang, S. Ghimire 和 Z. Chang, 《基于气体和固体高次谐波产生的阿秒科学》, Nat. Commun. 11, 1（2020年）。[8] K. Midorikawa, 《桌面式孤立阿秒光源的研究进展》, Nat. Photon. 16, 267（2022年）。[9] K. Amini, J. Biegert, F. Calegari, A. Chac´on, M. F. Ciappina, A. Dauphin, D. K. Efimov, C. F. de Morisson Faria, K. Giergiel, P. Gniewek, 等, 《强场近似交响曲》, Rep. Prog. Phys. 82, 116001（2019年）。[10] H. Timmers, M. Sabbar, J. Hellwagner, Y. Kobayashi, D. M. Neumark 和 S. R. Leone, 《偏振辅助振幅门控: 实现可调谐高对比度阿秒脉冲的途径》, Optica 3, 707（2016年）。[11] F. Calegari, G. Sansone, S. Stagira, C. Vozzi 和 M. Nisoli, 《阿秒科学的进展》, J. Phys. B 49, 062001（2016年）。[12] K. Misawa, 《偏振整形飞秒激光脉冲的应用》, Advances in Physics: X 1, 544（2016年）。[13] A. M. Weiner, 《超快光学脉冲整形: 教程式综述》, 《光学通讯》284, 3669（2011年）。[14] Y. Shen, Q. Zhan, L. G. Wright, D. N. Christodoulides, F. W. Wise, A. E. Willner, Z. Zhao, K.-h. Zou, C.-T. Liao, C. Hern´andez-Garc´ıa, 等, 《时空光场路线图》, arXiv 预印本 arXiv:2210.11273（2022年）。[15] C. Hern´andez-Garc´ıa, A. Pic´on, J. San Rom´an 和 L. Plaja, 《由高次谐波产生获得的阿秒极紫外涡旋》, 《物理评论快报》111, 083602（2013年）。[16] R. G´eneaux, A. Camper, T. Auguste, O. Gobert, J. Caillat, R. Ta¨ıeb 和 T. Ruchon, 《极紫外阿秒光涡旋的合成与表征》, 《自然》

《通讯》7 , 1（2016年）
.[17] L. Rego、K. M. Dorney、N. J. Brooks、Q. L. Nguyen、C.-T. Liao、J. San Rom´an、D. E. Couch、A. Liu、E. Pisanty、M. Lewenstein 等，《生成具有时变轨道角动量的极紫外光束》，《科学》364，eaaw9486（2019年）。[18] B. Minneker、B. B¨oning、A. Weber 和 S. Fritzsche，《高次谐波产生中的扭曲阿秒脉冲的环面结角动量》，《物理评论A》104，053116（2021年）。[19] Y. Fang、S. Lu 和 Y. Liu，《高次谐波产生中光子横向轨道角动量的控制》，《物理评论快报》127，273901（2021年）。[20] O. Neufeld 和 O. Cohen，《非线性光学中的光学手性：在高次谐波产生中的应用》，《物理评论快报》120，133206（2018年）。[21] P.-C. Huang、C. Hern´andez-Garc´ıa、J.-T. Huang、P.-Y. Huang、C.-H. Lu、L. Rego、D. D. Hickstein、J. L. Ellis、A. Jaron-Becker、A. Becker 等，《孤立高次谐波脉冲的偏振控制》，《自然·光子学》12，349（2018年）。[22] J. W¨atzel 和 J. Berakdar，《强矢量光束产生的多极偏振整形高次谐波》，《物理评论A》101，043409（2020年）。[23] D. B. Milo˘sevi´c 和 W. Becker，《具有异常非线性偏振的阿秒脉冲列》，《物理评论A》62，011403（2000年）。[24] D. B. Milo˘sevi´c、W. Becker 和 R. Kopold，《通过双色共面场混合产生圆偏振高次谐波》，《物理评论A》61，063403（2000年）。[25] A. Fleischer、O. Kfir、T. Diskin、P. Si dorenko 和 O. Cohen，《高次谐波产生中的自旋角动量与可调偏振》，《自然·光子学》8，543（2014年）。[26] O. Kfir、P. Grychtol、E. Turgut、R. Knut、D. Zusin、D. Popmintchev、T. Popmintchev、H. Nem-bach、J. M. Shaw、A. Fleischer 等，《明亮相位匹配圆偏振极紫外高次谐波的产生》，《自然·光子学》9，99（2015年）。[27] L. Rego、J. San Rom´an、L. Plaja 和 C. Hern´andez-Garc´ıa，《由时间排序的偏振态结构化的阿秒脉冲列》，《光学快报》45，5636（2020年）。[28] ´A. Jim´enez-Gal´an、G. Dixit、S. Patchkovskii、O. Smirnova、F. Morales 和 M. Ivanov，《记录光偏振态的阿秒记录仪》，《自然·通讯》9，1（2018年）。[29] K. M. Dorney、J. L. Ellis、C. Hern´andez-Garc´ıa、D. D. Hickstein、C. A. Mancuso、N. Brooks、T. Fan、G. Fan、D. Zusin、C. Gentry 等，《双色圆偏振驱动的阿秒高次谐波波形的螺旋度选择性增强与偏振控制》

laser fields, Phys. Rev. Lett. **119**，063 (7)201 .
0[30] ´A. Jim´enez-Gal´an、N. Zhavoronkov、D. Ayuso、F. Morales、S. Patchkovskii、M. Schloz、E. Pisanty、O. Smirnova 和 M. Ivanov，《双色双圆场中阿秒光偏振的控制》，《物理评论A》97，023409（2018年）。[31] D. Miloˇsevi´c，《双圆激光场产生的高次谐波螺旋度控制》，《物理评论A》98，033405（2018年）。[32] A. D. Bandrauk、J. Guo 和 K.-J. Yuan，《圆偏振阿秒脉冲产生及其在超快磁学中的应用》，《光学杂志》19，124016（2017年）。[33] K.-J. Yuan 和 A. D. Bandrauk，《强少周期圆偏振紫外激光脉冲产生阿秒磁场脉冲》，《物理评论A》88，013417（2013年）。[34] T. Fan、P. Grychtol、R. Knut、C. Hern´andez-Garc´ıa、D. D. Hickstein、D. Zusin、C. Gentry、F. J. Dollar、C. A. Mancuso、C. W. Hogle 等，《用于X射线磁圆二色性的明亮圆偏振软X射线高次谐波》，《美国国家科学院院刊》112，14206（2015年）。[35] D. Miloˇsevi´c，《由p态惰性原子气体中的双圆场产生的圆偏振高次谐波：探索手性敏感过程的工具》，《物理评论A》92，043827（2015年）。[36] C. Chen、Z. Tao、C. Hern´andez-Garc´ıa、P. Matyba、A. Carr、R. Knut、O. Kfir、D. Zusin、C. Gentry、P. Grychtol 等，《圆偏振高次谐波场的层析重建：三维阿秒计量学》，Sci. Adv. 2，e1501333（2016年）。[37] G. Karras、M. Ndong、E. Hertz、D. Sugny、F. Billard、B. Lavorel 和 O. Faucher，《通过偏振整形实现分子的单向旋转运动》，《物理评论快报》114，103001（2015年）。[38] I. Tutunnikov、E. Gershnabel、S. Gold 和 I. S. Averbukh，《利用扭曲偏振激光场选择性取向手性分子》，. Phys. Chem. Lett. 9，1105（2018年）。[39] H. Yuan、L. He、S. M. Njoroge、D. Wang、R. Shao、P. Lan 和 P. Lu，《利用单向旋转激光场产生螺旋度可调的近圆偏振阿秒脉冲》，Ann. Phys. (Berlin) 532，1900570（2020年）。[40] K. Lin、I. Tutunnikov、J. Ma、J. Qiang、L. Zhou、O. Faucher、Y. Prior、I. S. Averbukh 和 J. Wu，《激光驱动分子的时空旋转动力学》，Adv. photonics 2，024002（2020年）。

[41] S. Pan、C. Hu、Z. Zhang、P. Lu、C. Lu、L. Zhou、J. Wang、F. Sun、J. Qiang、H. Li 等，《氢分子在大键长处通过偶极跃迁发生强场解离产生的低能质子》，Ultrafast Science 2022（2022年）。[42] E. Prost、E. Hertz、F. Billard、B. Lavorel 和 O. Faucher，《用于测量旋转转子的基于偏振的转速计》，Opt. Exp. 26，31839（2018年）。[43] L. Xu、I. Tutunnikov、L. Zhou、K. Lin、J. Qiang、P. Lu、Y. Prior、I. S. Averbukh 和 J. Wu，《单向旋转分子中的回波》，《物理评论A》102，043116（2020年）。[44] Q. Ji、S. Pan、P. He、J. Wang、P. Lu、H. Li、X. Gong、K. Lin、W. Zhang、J. Ma 等，《利用偏振倾斜飞秒激光脉冲对氢分子解离电离进行定时》，《物理评论快报》123，233202（2019年）。[45] M. Murakami、O. Korobkin 和 M. Horbatsch，《双色互相正交激光场驱动氢原子产生高次谐波》，《物理评论A》88，063419（2013年）。[46] M. Murakami、O. Korobkin 和 M. Horbatsch，《勘误：双色互相正交激光场驱动氢原子产生高次谐波》［《物理评论A》88，063419（2013年）］，《物理评论A》95，059909（2017年）。[47] M. Chini、K. Zhao 和 Z. Chang，《宽带孤立阿秒脉冲的产生、表征及应用》，Nat. Photon. 8，178（2014年）。[48] W. Jiang、G. S. Armstrong、J. Tong、Y. Xu、Z. Zuo、J. Qiang、P. Lu、D. D. Clarke、J. Benda、A. Fleischer 等，《通过阿秒符合计量学测量原子分波》，《自然·通讯》13，1（2022年）。[49] X. Gong、W. Jiang、J. Tong、J. Qiang、P. Lu、H. Ni、R. Lucchese、K. Ueda 和 J. Wu，《分子形状共振中的不对称阿秒光电离》，Physical Review X 12，011002（2022年）。[50] D. Busto、J. Vinbladh、S. Zhong、M. Isinger、S. Nandi、S. Maclot、P. Johnsson、M. Gisselbrecht、A. L'Huillier、E. Lindroth 等，《角分辨阿秒泵浦-探测光电离中的Fano倾向规则》，《物理评论快报》123，133201（2019年）。[51] S. Beaulieu、A. Comby、A. Clergerie、J. Caillat、D. Descamps、N. Dudovich、B. Fabre、R. G´eneaux、F. L´egar´e、S. Petit 等，《手性分子的阿秒分辨光电离》，《科学》358，1288（2017年）。[52] J. Joseph、F. Holzmeier、D. Bresteau、C. Spezzani、T. Ruchon、J. Hergott、O. Tcherbakoff、P. D'Oliveira、J. Houver 和 D. Dowek，《极紫外-红外双光子电离的角分辨研究》

在RABBITT方案中，《B辑物理学杂志：原子、分子与光学物理》53，184007（2020年）。

[53] E. Goulielmakis、M. Uiberacker、R. Kienberger、A. Baltuska、A. S. V. Yakovlev、T. Wester- walbesloh、U. Kleineberg、U. Heinzmann、M. Drescher和F. Krausz，《光波的直接测量》，《科学》305，1267（2004年）。