arXiv:2601.01611v1 [quant-ph] 4 Jan 2026

由单色量子光产生圆偏振高次谐波

L. Petrovic, [1,*] P. Stammer, [1,2] M. Lewenstein, [1] 和 J. Rivera-Dean[1,3,†]

[1]*ICFO – Institut de Ciencies Fotoniques*，巴塞罗那科学技术研究所，*08860* 卡斯特尔费尔德斯（巴塞罗那）[2]原子研究所，维也纳工业大学，*1020* 维也纳，奥地利[3]伦敦大学学院物理与天文学系，*Gower Street*，伦敦 *WC1E 6BT*，英国

超强驱动场的原子响应会产生具有特征形态的高次谐波谱：低阶谐波的强度迅速下降，随后出现平台区，最终达到尖锐的截止。对于圆偏振经典驱动场，这种响应会消失；在驱动场中引入量子特征，则可克服这一限制。在本研究中，我们表明，压缩的高椭圆偏振驱动场不仅能在椭圆率较大的经典禁阻区域实现高次谐波产生（HHG），还会产生椭圆率很高、具有显著超泊松光子统计的谐波辐射。此外，我们还表明，高次谐波产生光谱特征包含驱动场量子性质的信息，揭示了其压缩场涨落的存在。通过分析高次谐波产生光谱强度随驱动场椭圆率和压缩方向的变化，我们找到了一种探测驱动场量子性质的方法；这些性质本质上存在于高光子数区域。

引言——近年来，人们对量子光学与强场物理的交汇领域日益关注 [1–3], ，由此形成了通常称为极端量子光学 或强场量子光学的研究方向。这个新兴领域旨在结合强场物理的优势，例如通过高次谐波产生（HHG）生成超快宽带辐射 [4–6], ，以及利用非经典光特性的量子光学技术 [7–11]。这些方法相结合，有望为超快强场量子光学应用开辟新的途径 [12–14]。在这一方向上，近期进展已展现出这种结合在生成高光子数非经典光态方面的潜力 [15], ，其中涉及并可能使广泛的光谱模式彼此纠缠 [16–26]。

同样重要的是，理解这些领域各自如何从这种新联系中受益。近期有研究提出，生成参数足以驱动强场相互作用的明亮压缩光 [27, 28] [29–33] ，可显著改变高次谐波产生特性 [34–36], ，并以非平凡的方式改变其亚周期电子动力学 [35–37]。这些进展开辟了在常规线性光学无法触及的条件下操控 [26,29, 36, 38]和表征 [26, 32] 发射辐射的新途径 [1]。一个特别能说明问题、且与本文密切相关的例子，是在经典条件下原本禁止的情形中产生谐波辐射，例如使用圆偏振驱动场 [39–44]。在圆偏振配置中结合压缩偏振分量，可以深刻改变超快电子动力学，从而使高次谐波产生过程重新成为可能 [35]。

在本文中，我们利用椭圆偏振压缩光驱动的高次谐波产生，将其作为一种多功能工具，用于同时表征——

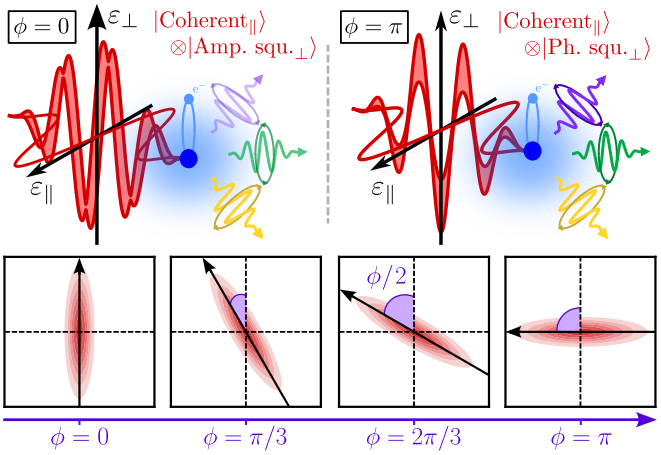


图1. 示意图展示了如何利用明亮椭圆偏振压缩光表征驱动场性质，并产生高度椭圆偏振的谐波辐射。我们考虑这样的配置：一个线偏振分量（此处为 $\perp$ 分量）处于位移压缩真空态，而另一个分量（$\parallel$ 分量）则保持为相干态。通过改变驱动场椭圆率，进而改变压缩方向（由 ϕ 指定），可以控制发射辐射的强度、椭圆率和光子统计。

表征驱动场性质，并利用单色驱动场产生高椭圆偏振谐波辐射 [图 1]。首先，我们证明，谐波响应对压缩类型的敏感性 [35]可用于验证强场压缩驱动场中存在的场涨落。其次，我们分析发射谐波辐射的特性。具体而言，我们表明，该方法能够产生高椭圆偏振谐波——这一特性在经典情况下需要通过精心设计的双色场才能实现 [45, 46]。最后，我们考察产生的谐波的光子统计特性。我们发现存在显著的超泊松行为，而这

* lidija.petrovic@icfo.eu
† physics.jriveradean@proton.me

我们将其归因于压缩引起的场涨落与高次谐波产生过程的强非线性之间的相互作用。

更广泛地说，这项工作凸显了量子光学与强场物理之间的相互促进。量子光学通过控制和表征强场现象，为强场物理提供了新的工具；在此，我们借此利用单色场实现了高度椭圆偏振的谐波。反过来，强场对高强度量子光的响应，则为探测非经典场开辟了新途径，尤其是在强场物理自然适用的极端波长和高光子数范围内。

表征驱动场性质。—在这项工作中，我们研究由如下形式的非经典态驱动的高次谐波产生

$$|\psi\rangle = |\bar{\alpha}\rangle_{\parallel} \otimes \hat{D}_{\perp}(iA\bar{\alpha}) \otimes \hat{S}_{\perp}(\xi)\,|0\rangle_{\perp}\,, \tag{1}$$

其中，一个偏振分量（$\parallel$）处于振幅为 $\bar{\alpha}$ 的相干态，而正交模式（$\perp$）处于位移压缩真空态（DSV）。DSV 通过位移算符 $\hat{D}_{\mu}(\alpha) = \exp\left[\alpha\hat{a}_{\mu}^{\dagger} - \alpha^{*}\hat{a}_{\mu}\right]$ 定义，而压缩算符 $\hat{S}_{\mu}(\xi) = \exp\left[\xi^{*}\hat{a}_{\mu}^{2} - \xi\hat{a}_{\mu}^{\dagger 2}\right]$ 作用于真空态；其中，$\hat{a}_{\mu}$ ($\hat{a}_{\mu}^{\dagger}$) 是 μ 偏振模式的湮灭（产生）算符。在式（1）中，参数 $A \in [0,1]$ 控制相干分量的椭圆率，而压缩参数 $\xi = re^{-i\phi}$ 则为驱动场引入量子特征。当 $\xi = 0$ 时，该态在 $A = 0$ 时退化为经典线偏振场，在 $A = 1$ 时则退化为圆偏振场。引入 $r > 0$ 会沿 $\perp$ 偏振方向产生压缩，而 ϕ 会旋转被压缩的正交分量：$\phi = 0$ 对应振幅压缩，而 $\phi = \pi$ 则产生相位压缩 [图1上排面板]。因此，对于固定的压缩幅度 r，ϕ 的作用是使压缩态在相空间中绕其原点有效旋转 [图1下排面板]。重要的是，在椭圆偏振驱动场中加入压缩会改变其偏振，产生有效椭圆率；在强压缩区域，这一效应尤为明显 [35]。

式（1）的一个关键要求是，压缩必须足够强，才能显著扰动高次谐波产生过程。位移压缩真空态的强度可分解为 $I_{\mathrm{DSV}} = I_{\mathrm{coh}} + I_{\mathrm{sq}}$，其中 $I_{\mathrm{coh}} \equiv \epsilon^2|\bar{\alpha}|$ 和 $I_{\mathrm{sq}} \equiv \epsilon^2\sinh^2(r)$ 分别对应相干分量和压缩分量的贡献。这里，$\epsilon = \sqrt{\hbar\omega_L/(2\epsilon_0 V)}$ 表示光物质耦合，其中 V 为量子化体积。因此，当 $I_{\mathrm{coh}}/I_{\mathrm{sq}} \sim 10^{-2}$ 时，通常可满足上述条件；利用最先进的高增益自发参量下转换 [27, 28]可达到这一数值。这类压缩态已用于在金属针尖中诱发隧穿电离 [33]，、驱动半导体材料中的高次谐波产生 [30]，，以及作为 ω扰动，辅助由强经典（$\omega/2$）电场启动的高次谐波产生固体中的高次谐波产生 [29]，以及气体中的 2ω 电场 [32]。下文中，我们考虑这样的条件：相干分量的电场强度为 $\bar{\varepsilon} = 0.053$ 原子单位，其中$\bar{\varepsilon} = 2\epsilon\bar{\alpha}$；压缩贡献为 $I_{\mathrm{sq}} = 10^{-5}$ 原子单位，使合成场既能以经典方式驱动原子介质中的高次谐波产生过程，又能以非经典方式对其进行调制。接下来，我们聚焦于氢，其电离势为 $I_p = 0.5$ 原子单位，并将其作为高次谐波产生目标系统。

在上述条件下，对于式（1）中对应于圆偏振场的 $A = 1$，此类配置能够在多个谐波阶次 [35]上产生高次谐波辐射；而在经典区间中，若不进行压缩，随着驱动场椭圆率增大，这一过程会受到越来越强的抑制 [39, 44]。尤为重要的是，高次谐波产生光谱会受到所施加压缩类型的显著影响：振幅压缩和相位压缩会使高次谐波截止对压缩强度呈现不同的依赖关系 I_{sq} [35]（见补充材料 I）。这表明，压缩圆偏振光驱动的高次谐波产生有望用作探测驱动场非经典性质的手段，而压缩方向 ϕ 则可作为控制参数。

为进一步了解这一点，我们评估了由式（1）产生的高次谐波产生光谱，其一般形式可写为 [34, 35]（见补充材料 I）

$$S_{\mathrm{sq}}(\omega,\phi,A) \propto \int \mathrm{d}\tilde{\varepsilon}_{\alpha}^{(\perp)}\,\mathcal{Q}_{\perp}(\tilde{\varepsilon}_{\alpha}^{(\perp)})\left[|d_{\boldsymbol{\varepsilon}_{\alpha}}^{(\parallel)}(\omega)|^2 + d_{\boldsymbol{\varepsilon}_{\alpha}}^{(\perp)}|^2\right]. \tag{2}$$

这里，$\mathcal{Q}_{\perp}$（$\tilde{\varepsilon}_{\alpha,\perp}$）是 Husimi函数 [47]，的边缘分布，其具体形式编码了驱动场的非经典性质；而 $d_{\boldsymbol{\varepsilon}}^{(\mu)}(\omega)$ 是沿 μ 偏振方向的半经典含时偶极矩在振幅为 $\boldsymbol{\varepsilon} = (\varepsilon_{\parallel}, \varepsilon_{\perp})$ 的场驱动下的傅里叶变换。计算在经典极限下进行，即 $V \to \infty$（等价地，$\epsilon \to 0$），且 $\alpha \to \infty$，使得 ε_{α} 保持有限；这对于包含极大光子数 [34]的自由传播场所涉及的强场问题，是一种适宜的方法。这里，ε_{α} 和 $\tilde{\varepsilon}_{\alpha}$ 通过 $\tilde{\varepsilon}_{\alpha,x} = \cos(\phi/2) - \sin(\phi/2)$ 以及 $\tilde{\varepsilon}_{\alpha,y} = \cos(\phi/2) + \sin(\phi/2)$ 相关，其中 $\varepsilon_{\alpha} = \varepsilon_{\alpha,x} + i\varepsilon_{\alpha,y}$（见补充材料 I）。

更确切地说，我们评估了谐波阶数为 $\omega_q = q\omega_L$ 和 $A = 0.9$ 时的归一化强度差 $\Delta S_{q,A}(\phi) = \left|1 - \frac{S_{\phi}(\omega_q)}{S_{\phi=\pi}(\omega_q)}\right|$，即在不存在压缩的情况下，近似圆偏振的驱动场。实际上，这是将具有压缩参数 $\xi = re^{-i\phi}$ 的椭圆偏振场所产生的第 q 阶谐波强度，与相位压缩（$\phi = \pi$）所产生的谐波强度进行比较；总体而言，后者产生最强信号（见补充材料 I）。

图2(a)展示了截止区域附近的这些结果，此处不同 ϕ 下的强度差更加显著。当 ϕ 在 $[-\pi, \pi]$范围内变化时，每个谐波阶次都呈现出特征性模式；根据定义，相位压缩时$\Delta S_{q,A}(\phi) = 0$，并且随着 ϕ 趋近于零而急剧增大。此时，$\Delta S_{q,A}(\phi)$量化了振幅压缩驱动场与相位压缩驱动场之间的（归一化）强度差

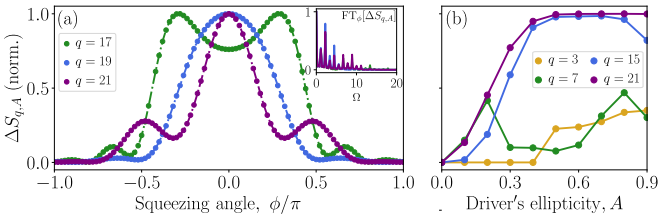


图 2。（a）谐波阶数 $q =$ 17 19 21 $A = 0.9$ 、以及相对于压缩角 ϕ 的归一化强度，其中插图显示了所得信号的傅里叶变换。傅里叶变换考虑到模式 $\Delta S_{q,A}(\phi)$ 由于反复出现的压缩方向而每隔 2π 重复一次。（b）不同谐波阶数下，振幅压缩方向与相位压缩方向之间的归一化强度差相对于驱动场椭圆率 A的变化。计算针对单色场的五个光学周期进行，设定 $\varepsilon_{\parallel} = 0.053$ 原子单位、 $\omega_L = 0.057$ 原子单位、$\bar{I}_{\mathrm{sq},\perp} = 10^{-5}$ 原子单位，并采用 $I_p = 0.5$ 原子单位（氢）作为电离势。

这种增强出现在中间 ϕ处，源于压缩场涨落映射到高次谐波产生光谱的方式，以及这种映射可通过ϕ [35]进行调节，也就是说，可通过在相空间中绕原点旋转压缩态来调节 [图1下方的面板]。这一机制在强场区尤其有用，因为更传统的特征——例如光子数概率分布——难以测量，甚至无法准确测量。特别是，在相空间中均匀分布的光源（如相干态和热态）在相空间旋转下保持不变 ϕ 图1下方的面板 [，因此图2中观察到的特征不会出现。因此，$\Delta S_{q,A}(\phi) \neq 0$的存在，或等价地，其傅里叶变换中存在非零频率 [图2(a)插图]，，使这一量成为不对称强场涨落的基于高次谐波产生的见证量。

有趣的是，压缩方向并非探测驱动场涨落各向异性的唯一手段，椭圆率 A也可以做到。图2（b）展示了 $\Delta S_{q,A}(\phi = 0)$，从而比较相干态分量的偏振从线性（$A = 0$）变化到圆形（$A = 1$）时，振幅压缩光与相位压缩光所获得的强度。对于线偏振情形，当 $\perp$分量处于亮压缩真空（BSV）中时，压缩方向对高次谐波产生光谱没有影响。在此状态下，该过程由相干态 $\|$分量主导，而BSV的贡献几乎不会改变高次谐波产生光谱的特征。在这种情况下，压缩引起的涨落会改变电场的逐发椭圆率，使高次谐波产生效率低于线偏振情形。此外，由于BSV光不具有内禀相位参考（不同于位移压缩真空态），振幅压缩与相位压缩之间并无区别；相空间中的所有压缩方向实际上都等效，因而

其中 $S_{\phi=0}(\omega) = S_{\phi=\pi}(\omega)$，且 $\Delta S_{q,A=0}(\phi) = 0$。A s A i增加 h然而，t he coherent di沿 $\perp$偏振方向的位移抵消了 $\|$贡献，高次谐波产生过程因而主要由压缩诱导的涨落所支配。此时，结果很大程度上取决于施加的是振幅压缩还是相位压缩。对于截止附近的谐波，这一效应最为显著，此处 $\Delta S_{q,A}(\phi = 0)$ 几乎单调递增。在这一区域，相位压缩或振幅压缩所引入的有效椭圆率会更强烈地影响产生高次谐波辐射所依赖的电子轨迹 [35]，，凸显了截止区域对非经典涨落的增强敏感性。

椭圆偏振谐波——在刻画了驱动场对谐波强度的影响之后，我们现在分析谐波本身的偏振特性，并重点关注其椭圆率。在完全经典的驱动场下，可以使用椭圆率适中的椭圆偏振驱动场产生椭圆偏振谐波 [44]。然而，随着驱动场椭圆率增大，高次谐波产率会迅速下降，因此使用单色场产生椭圆偏振高次谐波尤具挑战性。双色构型中，两种颜色分别为旋向相反的圆偏振，可通过强制要求自旋角动量从驱动场守恒至谐波来克服这一限制 [45, 46]。相比之下，我们发现，在一个偏振方向上引入压缩，即使使用单色驱动场，也能产生高度椭圆偏振的谐波，为控制谐波辐射的偏振提供了另一种途径。

为对此进行量化，我们计算第 ˆ ˆ ˆq 阶谐波的椭圆率 Eq $= |\langle S_{3,q}\rangle / \langle S_{0,q}\rangle|$，其中 $S_{0,q}$ $=$ˆ$a^{\dagger}_{\parallel}$,qˆ$a_{\parallel,q}$ +ˆ$a^{\dagger}_{\perp}$,qˆ$a_{\perp,q}$ 以及 ˆ$S_{3,q} = i$(ˆ$a^{\dagger}_{\parallel}$,qˆ$a_{\perp,q}$ −ˆ$a^{\dagger}_{\perp}$,qˆ$a_{\parallel,q}$) 是斯托克斯参数的算符形式。这里，$\langle S_{0,q}\rangle$表示第 q 阶谐波的总强度，而 $\langle$ˆ$S_{3,q}\rangle$ 则编码了其偏振旋向。因此，随着发射分别从线偏振演变为圆偏振，Eq 的范围为 0 到 1。

图 3 展示了在振幅压缩和相位压缩驱动场下，不同谐波阶次的椭圆率随驱动场椭圆率变化的情况，分别见面板 (a) 和 (b)。总体而言，在整个光谱范围内，谐波椭圆率随驱动场椭圆率的增加而增加，对于 $A = 0.9$，其值最高可达 $\mathrm{E}_9 = 0.997$。然而，两种压缩类型表现出显著不同的行为：相位压缩使 Eq 随 A 更平滑、更渐进地增加，而振幅压缩则呈现出更不规则的依赖关系，并涉及更多谐波，因为截止频率随 A 增加（见补充材料 II）。在这两种类型中，振幅压缩产生的 Eq 平均值更高。

这些特征可以从驱动场的场涨落如何映射到生成的谐波偏振分量的平均强度中理解，尤其是在 {v1}取值较高时（见补充材料 II）。

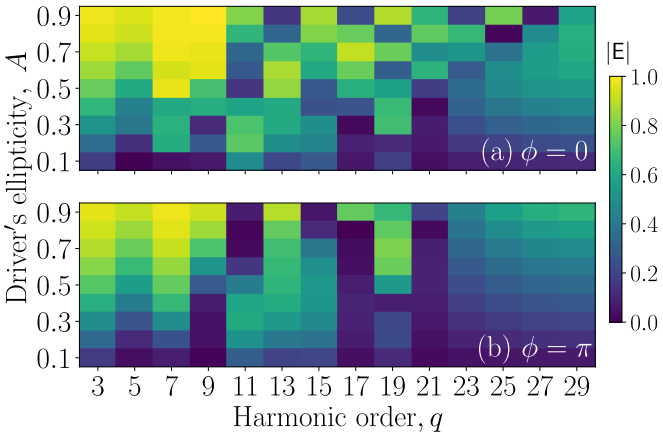


图 3. 在对驱动场施加 (a) 振幅压缩和 (b) 相位压缩时，椭圆率随谐波阶次和驱动场椭圆率的变化。此处考虑的条件与图 2 相同。

对于振幅压缩驱动场，q阶谐波的 $\parallel$ 和 $\perp$ 分量的平均强度几乎相同，但场涨落引起的较强相位噪声使它们无法在所有谐波阶数上实现 $\mathrm{E}_q = 1$ 。相比之下，对于相位压缩驱动场，由于场涨落增强，沿压缩偏振分量方向的强度整体高于正交分量，这不利于满足圆偏振条件——分量强度相等且相位差为 $\pi/2$ 。然而，这些特征主要影响对压缩更敏感的高阶谐波，而低阶谐波（$q \in [3, 9]$）在两种压缩类型下的表现相似。

谐波的光子统计。—使用相干态光源时，文献 [44–46] 中的方法能够产生完全相干的椭圆偏振谐波，前提是驱动场强度足够低，以避免原子系统显著耗尽 [16]。因此，在这些条件下，产生的谐波呈现泊松光子统计 [15, 48, 49]。相比之下，本文研究的配置呈现出截然不同的情形：要产生高度椭圆偏振的谐波，不仅需要较大的驱动场椭圆率，还需要压缩引入的足够场涨落。若没有此类压缩诱导的涨落，谐波产生会受到抑制 [35], ，这表明发射的谐波源自驱动场的场涨落。因此，预计其光子统计将显著偏离使用相干态驱动场时得到的结果 [26, 29, 32, 36]。

为了定量表征谐波的光子统计，我们使用二阶自相关函数，$g^{(2)}(0) = \langle \hat{a}^\dagger \hat{a}^2 \rangle / \langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \rangle^2$，在本例中，对于给定的光学模式（$\mu$，$q$），该函数可明确写为

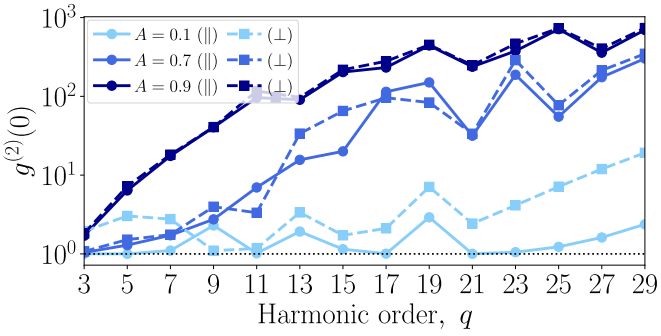


图4. 二阶自相关函数 $g^{(2)}_{\mu,\,q}(0)$ 随谐波阶次 q 的变化，颜色表示驱动场椭圆率。实线（虚线）对应于 $\mu = \parallel$ （$\mu = \perp$）偏振分量，不同颜色表示不同的驱动场椭圆率。黑色细点线标出 $g^{(2)}(0) = 1$ 的值。这里采用与图2相同的条件。

如（见补充材料I）

$$g^{(2)}_{\mu,q}(0) = \frac{\int \mathrm{d}\tilde{\varepsilon}^{(\perp)}_\alpha Q_\perp(\tilde{\varepsilon}^{(\perp)}_\alpha) |d^{(\mu)}_{\boldsymbol{\varepsilon}_\alpha}(\omega)|^4}{\left[\int \mathrm{d}\tilde{\varepsilon}^{(\perp)}_\alpha Q_\perp(\tilde{\varepsilon}^{(\perp)}_\alpha) |d^{(\mu)}_{\boldsymbol{\varepsilon}_\alpha}(\omega)|^2\right]^2}. \qquad (3)$$

这里，$g^{(2)}_{\mu,\,q}(0)$量化了（μ，q）光学模式内的光子数关联：其值大于、等于或小于 1，分别对应超泊松统计、泊松统计和亚泊松统计。后一种情况是判定场为非经典场的充分条件，但并非必要条件 [50]。

图4展示了振幅压缩驱动场下若干谐波阶次对应的 $g^{(2)}_{\mu,\,q}(0)$ 函数，相位压缩情形也呈现出类似趋势。在所有情况下，$g^{(2)}_{\mu,\,q}(0) > 1$，但其大小在很大程度上取决于初始偏振构型。对于近似线偏振的驱动场（$A = 0.1$），谐波呈现中等程度的超泊松统计，截止之后的谐波满足 $1 < g^{(2)}_{\mu,\,q} < 10$ 。相反，对于椭圆率较大的驱动场，$g^{(2)}_{\mu,\,q}(0)$ 呈指数增长，在接近圆偏振时可达到高达 10^3 的值。较小椭圆率时也会出现类似的指数增强，但仅限于截止区域之外的谐波。

这种 $g^{(2)}_{\mu,q}(0)$ 的指数增长源于谐波产生的条件。正如前文所述，在不存在压缩特征时，驱动场中的大椭圆率会抑制谐波产生，这意味着在存在压缩的情况下，驱动场概率分布 $\mathcal{Q}(\varepsilon)$中的罕见高强度事件主导了发射。此外，高次谐波产生是一个强非线性过程，平台谐波的强度按 $I_q \propto |d(\omega_q)|^2 \propto I_L^p$ $(p > 0)$ [51–53] 缩放。这种显著的非线性与强压缩光特有的宽广场涨落相互作用，导致在近乎圆偏振的驱动场下观测到极大的 $g^{(2)}_{\mu,q}(0)$ 值，

——或者等价地说，在线偏振 BSV 场下（见补充材料 IIIA）。然而，在相干分量已足以维持谐波产生的条件下，例如图 4 中的 $A = 0.1$，引入压缩主要会在相干基线周围增加涨落，这与近期在双色高次谐波产生方案中观察到的现象类似，其中一个分量呈现压缩特征 [26, 29, 32, 36]。不过，即使不存在这样的相干基线，在压缩程度极高时，驱动场的耗尽——会导致转换效率降低 [54]——预计将阻止 $g_{\mu}^{(2),q}(0)$ 无限增长（见补充材料 III B）。

结论——本研究探讨了具有显著压缩特征的椭圆偏振场驱动高次谐波产生的多样性：它既可作为探测驱动光场涨落的灵敏探针，也可作为产生高度椭圆偏振谐波辐射的光源。特别是，我们证明，驱动场中的非对称场涨落会显著影响产生的谐波，而压缩角和驱动场椭圆率均可作为可调参数，用于控制对产生谐波的调制 [图 2]。此外，我们展示了在近圆偏振的单色驱动场下产生高度椭圆偏振谐波光 [图 3], ，并证明此类发射表现出显著的超泊松光子统计，其二阶自相关函数的数值极大 [图 4]。这种行为源于强压缩光所特有的大量子涨落与高次谐波产生过程的高度非线性之间的相互作用。

从更广泛的意义上说，我们的工作展示了椭圆偏振压缩光驱动的高次谐波产生如何同时惠及量子光学和强场领域：对于前者，它可作为高光子数区域中非经典特征的诊断工具；对于后者，它则提供了一种利用单色驱动场产生高度椭圆偏振谐波的新方法。关于后者，我们发现，这种构型无法产生近相干谐波辐射。然而，我们的结果表明，强压缩或许能通过引发显著的原子耗尽，在一定程度上克服这一局限；另一方面，近期研究已表明，原子耗尽会显著影响所发射辐射的传播 [54]。即使在相干态驱动场下，也有研究发现类似效应能够在不同谐波阶次之间产生压缩和纠缠 [16, 22]。要充分评估椭圆偏振压缩光驱动的高次谐波产生作为非经典光探针及高度椭圆偏振辐射源的潜力，就必须了解这些机制如何改变谐波的量子光学性质。

致谢。—J. R.-D. 感谢 Misha Ivanov 的宝贵讨论，这些讨论启发了本文报告的部分研究成果；也感谢 Marcin Płodzień 在研究开展过程中给予的所有支持与关注，与支持。

ICFO-QOT小组感谢以下机构的支持：MCIN/AEI (PGC2018-0910.13039/501100011033, CEX2019-000910-S/10.13039/501100011033, 国家计划 STAMEENA PID2022-139099NB，该项目由 MCIN 及“欧盟下一代EU/PRTR”（PRTR-C17.I1）资助，FPI)；西班牙政府数字转型与公务员事务部通过 QUANTUM ENIA 项目征集提供的支持——Quantum Spain项目，以及欧盟通过复苏、转型与韧性计划——NextGenerationEU 在数字西班牙2026议程框架内提供的支持；CEX2024-001490-S[MICIU/AEI/10.13039/501100011033]；Fundació Cellex；Fundació Mir-Puig；加泰罗尼亚政府（欧洲社会基金、FEDER 和 CERCA计划；巴塞罗那超级计算中心 MareNostrum (FI-2023-3-0024)；由欧盟资助（ HORIZON-CL4-2022- QUANTUM-02-SGA、PASQuanS2.1、101113690、欧盟地平线2020 FET-OPEN OPTOlogic，资助编号 899794，QU-ATTO，101168628），欧盟地平线欧洲计划（编号 101080086 NeQST，资助协议 101080086 — NeQST）。

P. Stammer 感谢以下资助：欧盟地平线 2020年研究与创新计划通过玛丽·斯克沃多夫斯卡-居里资助协议 No 847517 提供的支持。

参考文献

[1] T. Lamprou、P. Stammer、J. Rivera-Dean、N. Tsatrafyllis、M. F. Ciappina、M. Lewenstein 和 P. Tzallas，《Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics》**58**，132001（2025年）。[2] P. Stammer、J. Rivera-Dean、P. Tzallas、M. F. Ciappina 和 M. Lewenstein，《Colloquium: Quantum optics of in- tense light–matter interaction》（ 2025 2510 19045 ），[ ] arXiv: . quant-ph . [3] N. Rivera，《纳米光子学》**14**，1837（2025年）。[4] P. Antoine、A. L’Huillier 和 M. Lewenstein，《物理评论快报》**77**，1234（1996年）。[5] M. Drescher、M. Hentschel、R. Kienberger、G. Tem- pea、C. Spielmann、G. A. Reider、P. B. Corkum 和 F. Krausz，《科学》**291**，1923（2001年）。[6] P. M. Paul、E. S. Toma、P. Breger、G. Mullot、F. Augé、P. Balcou、H. G. Muller 和 P. Agostini，《科学》**292**，1689 2001( )。[7] N. Gisin 和 R. Thew，《自然·光子学》**1**，165（2007年）。[8] P. Kok、W. J. Munro、K. Nemoto、T. C. Ralph、J. P. Dowling 和 G. J. Milburn，《现代物理评论》**79**，135（2007年）。[9] V. Giovannetti、S. Lloyd 和 L. Maccone，《自然·光子学》**5**，222（2011年）。[10] A. Aspuru-Guzik 和 P. Walther，《自然·物理》**8**，285（2012年）。[11] S. Pirandola、B. R. Bardhan、T. Gehring、C. Weedbrook 和 S. Lloyd，《自然·光子学》**12**，724（2018年）。[12] P. Stammer、T. F. Martos、M. Lewenstein 和 G. Rajchel-Mieldzioć，《量子科学与技术》**9**，045047（2024年）。

[13] L. Cruz-Rodriguez、D. Dey、A. Freibert 和 P. Stammer, Nature Reviews Physics 6，691（2024年）。[14] M. Sennary、J. Rivera-Dean、M. ElKabbash、V. Pervak、M. Lewenstein 和 M. T. Hassan，Light: Science & Ap- plications 14，350（2025年）。[15] M. Lewenstein、M. F. Ciappina、E. Pisanty、J. Rivera-Dean、P. Stammer、T. Lamprou 和 P. Tzallas，Nature Physics 17，1104（2021年）。[16] P. Stammer、J. Rivera-Dean、A. S. Maxwell、T. Lam- prou、J. Argüello-Luengo、P. Tzallas、M. F. Ciappina 和 M. Lewenstein，《物理评论快报》132，143603（2024年）。[17] J. Rivera-Dean、H. B. Crispin、P. Stammer、T. Lamprou、E. Pisanty、M. Krüger、P. Tzallas、M. Lewenstein 和 M. F. Ciappina，《物理评论 A 辑》 110，063118 （ 2024 年）。[18] J. Rivera-Dean，《物理评论A辑》110，063704（2024年）。[19] C. S. Lange、T. Hansen 和 L. B. Madsen，《物理评论A辑》109，033110（2024年）。[20] D. Theidel、V. Cotte、R. Sondenheimer、V. Shiriaeva、M. Froidevaux、V. Severin、A. Merdji-Larue、P. Mosel、S. Fröhlich、K.-A. Weber、U. Morgner、M. Kovacev、J. Biegert 和 H. Merdji，《PRX量子》5，040319（2024年）。[21] D. Theidel、V. Cotte、P. Heinzel、H. Griguer、M. Weis、R. Sondenheimer 和 H. Merdji，《Physical Review Re- search》7，033223（2025年）。[22] C. S. Lange 和 L. B. Madsen，《物理评论A辑》111，013113 2025( )。[23] C. S. Lange、T. Hansen 和 L. B. Madsen，《物理评论快报》135，043603（2025年）。[24] S. Yi、N. D. Klimkin、G. G. Brown、O. Smirnova、S. Patchkovskii、I. Babushkin 和 M. Ivanov，《Physical Review X》15，011023（2025年）。[25] P. Stammer、J. Rivera-Dean 和 M. Lewenstein，《Theory of quantum optics and optical coherence in high harmonic generation》（2025年），arXiv:2504.13287 [quant-ph]。[26] J. Rivera-Dean、L. Petrovic、M. Lewenstein 和 P. Stam- mer，《Attosecond quantum optical interferometry》（2025年），arXiv:2511.01097 [quant-ph]。[27] K. Y. Spasibko、D. A. Kopylov、V. L. Krutyanskiy、T. V. Murzina、G. Leuchs 和 M. V. Chekhova，《物理评论快报》119，223603（2017年）。[28] M. Manceau、K. Y. Spasibko、G. Leuchs、R. Filip 和 M. V. Chekhova，《物理评论快报》123，123606（2019年）。[29] S. Lemieux、S. A. Jalil、D. N. Purschke、N. Boroumand、T. J. Hammond、D. Villeneuve、A. Naumov、T. Brabec 和 G. Vampa，《自然·光子学》19，767（2025年）。[30] A. Rasputnyi、Z. Chen、M. Birk、O. Cohen、I. Kaminer、M. Krüger、D. Seletskiy、M. Chekhova 和 F. Tani，《自然·物理》20，1960（2024年）。[31] J. Heimerl、A. Mikhaylov、S. Meier、H. Höllerer、I. Kaminer、M. Chekhova 和 P. Hommelhoff，《自然·物理》20，945（2024年）。[32] M. Even Tzur、C. Mor、N. Yaffe、M. Birk、A. Rasput- nyi、O. Kneller、I. Nisim、I. Kaminer、M. Krüger、N. Dudovich 和 O. Cohen，《Measuring and control- ling the birth of quantum attosecond pulses》（2025年），arXiv:2502.09427 [physics]。[33] J. Heimerl、A. Rasputnyi、J. Pölloth、S. Meier、M. Chekhova 和 P. Hommelhoff，发表于《自然·物理》，10.1038/s41567-025-03087-1（2025年）。[34] A. Gorlach、M. E. Tzur、M. Birk、M. Krüger、N. Rivera、O. Cohen（2023年）。[35] J. Rivera-Dean、P. Stammer、M. Ciappina 和 M. Lewenstein，《物理评论快报》135，013801（2025年）。[36] P. Stammer、J. Rivera-Dean、M. F. Ciappina 和 M. Lewenstein，《强激光场物理中的弱测量》（2025年），arXiv:2508.09048 [quant-ph]。[37] M. Even Tzur、M. Birk、A. Gorlach、M. Krüger、I. Kaminer 和 O. Cohen，《自然·光子学》17，501（2023年）。[38] M. Even Tzur、M. Birk、A. Gorlach、I. Kaminer、M. Krüger 和 O. Cohen，《物理评论研究》6，033079 2024( )。[39] K. S. Budil、P. Salières、A. L'Huillier、T. Ditmire 和 M. D. Perry，《物理评论A辑》48，R3437（1993年）。[40] P. Dietrich、N. H. Burnett、M. Ivanov 和 P. B. Corkum，《物理评论A辑》50，R3585（1994年）。[41] P. B. Corkum、N. H. Burnett 和 M. Y. Ivanov，《光学快报》19，1870（1994年）。[42] Y. Liang、S. Augst、M. V. Ammosov、S. Lazarescu 和 S. L. Chin，《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》28，2757（1995年）。[43] N. H. Burnett、C. Kan 和 P. B. Corkum，《物理评论A辑》51，R3418（1995年）。[44] P. Antoine、A. L'Huillier、M. Lewenstein、P. Salières 和 B. Carré，《物理评论A辑》53，1725（1996年）。[45] A. Fleischer、O. Kfir、T. Diskin、P. Sidorenko 和 O. Cohen，《自然·光子学》8，543（2014年）。[46] E. Pisanty、S. Sukiasyan 和 M. Ivanov，《物理评论A辑》90，043829（2014年）。[47] W. P. Schleich，《相空间函数》，载于《相空间中的量子光学》（John Wiley & Sons，柏林，德国，2001年）第12章，第321–348页。[48] J. Rivera-Dean、T. Lamprou、E. Pisanty、P. Stammer、A. F. Ordóñez、A. S. Maxwell、M. F. Ciappina、M. Lewenstein 和 P. Tzallas，《物理评论A辑》105，033714（2022年）。[49] P. Stammer、J. Rivera-Dean、A. Maxwell、T. Lamprou、A. Ordóñez、M. F. Ciappina、P. Tzallas 和 M. Lewenstein，《PRX量子》4，010201（2023年）。[50] R. Loudon，《单模量子光学》，载于《光的量子理论》（第三版）（牛津大学出版社，牛津，英国，2001年）第5章，第180–232页。[51] K. Kulander 和 A. L'Huillier，《美国光学学会杂志B辑》7，403（1990年）。[52] A. L'Huillier、P. Balcou、S. Candel、K. J. Schafer 和 K. C. Kulander，《物理评论A辑》46，2778（1992年）。[53] R. Weissenbilder、S. Carlström、L. Rego、C. Guo、C. M. Heyl、P. Smorenburg、E. Constant、C. L. Arnold 和 A. L'Huillier，Nature Reviews Physics 4，713（2022年）。[54] J. Rivera-Dean、D. Kanti、P. Stammer、N. Tsatrafyllis、M. Lewenstein 和 P. Tzallas，《强非线性介质中强压缩真空光的传播》（2025年），arXiv:2509.19608 [quant-ph]。[55] P. D. Drummond 和 C. W. Gardiner，《物理学杂志A：数学与通论》13，2353（1980年）。[56] P. D Drummond 和 S. Chaturvedi，《物理学文稿》91，073007 2016( )。[57] C. Cohen-Tannoudji、J. Dupont-Roc 和 G. Grynberg，载于《光子与原子》（John Wiley & Sons有限公司，1997年）第5–77页。[58] M. Lewenstein、P. Balcou、M. Y. Ivanov、A. L'Huillier 和 P. B. Corkum，《物理评论A辑》49，2117（1994年）。[59] E. Pisanty

，和 I. Kaminer ，《自然·物理》**19** ，1689

，RB-SFA：高次谐波产生中的

通过 Mathematica 实现的强场近似，GitHub：
https://github.com/episanty/RB-SFA（2020年）。[60] M. V.
Ammosov、N. 8. Delone 和 V. P. Krainov，《苏联物理学报《实验与理
论物理学杂志》》**64**，1191（1986年）。

补充材料

目录

I. 理论背景 8
A. 谐波模上可观测量的计算 B. 坐标变换 C. 数值分析 9
9
10

II. 补充图 11

III. 二阶自相关函数的分析 11
A. 玩具模型 B. 引入基态耗尽 12
13

I. 理论背景

在本文中，我们考虑具有压缩特征的高强度椭圆偏振场与初始处于基态的原子系统之间的相互作用。光物质联合系统的初始量子态可表示为

$$|\Psi(t_0)\rangle = |\mathrm{g}\rangle \otimes \left|\bar{\alpha}_{\parallel}\right\rangle \otimes \hat{D}(\bar{\alpha}_{\perp})\hat{S}(\xi)\,|0\rangle \otimes |\{0\}_{q>1}\rangle\,, \tag{4}$$

其中，$\hat{D}(\alpha) = \exp\left[\alpha\hat{a}^{\dagger} - \alpha^{*}\hat{a}\right]$ 是位移算符，而$\hat{S}(\xi) = \exp\left[\xi^{*}\hat{a}^{2} - \xi\hat{a}^{\dagger 2}\right]$ 是压缩算符，其中 $\xi = re^{-i\phi}$ $(r>0)$表示压缩参数。为描述椭圆偏振光，我们设定 $\bar{\alpha}_{\perp} = -iA|\bar{\alpha}_{\parallel}|$，其中 $0 \le A \le 1$ 定义了驱动场的椭圆率：当 $A=0$ 时，输入场为线偏振；而当 $A=1$ 时，输入场为圆偏振。除基频（$q=1\equiv L$）之外的所有谐波模初始均处于真空态。因此，在密度矩阵表述中，初始态可写为

$$\hat{\rho}(t_0) = |\mathrm{g}\rangle\langle\mathrm{g}| \otimes \hat{\rho}_{\mathrm{driver}}(t_0) \otimes |\{0\}_{q>1}\rangle\langle\{0\}_{q>1}|\,. \tag{5}$$

为方便起见，在本文中，我们使用广义正定P表示 [55]来表示驱动场的量子态

$$\hat{\rho}_{\mathrm{driver}}(t_0) = \bigotimes_{\mu=(\perp,\parallel)} \int \mathrm{d}^2\alpha_{\mu} \int \mathrm{d}^2\beta_{\mu} \frac{P_{\mu}(\alpha_{\mu},\beta_{\mu}^{*})}{\langle\beta_{\mu}^{*}|\alpha_{\mu}\rangle} \left|\alpha_{\mu}\right\rangle\!\left\langle\beta_{\mu}^{*}\right|, \tag{6}$$

其中，$P_{\mu}(\alpha_{\mu},\ \beta_{\mu}^{*})$ 被选为由 [56]给出的正定函数

$$P_{\mu}(\alpha_{\mu},\beta_{\mu}^{*}) = \frac{1}{4\pi}\exp\left[-\frac{\left|\alpha_{\mu}-\beta_{\mu}^{*}\right|^{2}}{4}\right] Q_{\mu}\left(\frac{\alpha_{\mu}+\beta_{\mu}^{*}}{2}\right), \tag{7}$$

其中，$Q_{\mu}(\alpha) = \pi^{-1}\langle\alpha|\,\hat{\rho}_{\mu}|\alpha\rangle$ 表示量子态$\hat{\rho}_{\mu}$ [47]的Husimi函数。

在此框架下，强激光-物质相互作用与原子系统作用后的量子态可表示为 [34, 35]

$$\begin{aligned}\hat{\rho}(t) = \int \mathrm{d}^2\alpha_{\perp} \int \mathrm{d}^2\beta_{\perp} \int \mathrm{d}^2\alpha_{\parallel} \int \mathrm{d}^2\beta_{\parallel} \frac{P_{\perp}(\alpha_{\perp},\beta_{\perp}^{*})}{\langle\beta_{\perp}^{*}|\alpha_{\perp}\rangle} \frac{P_{\parallel}(\alpha_{\parallel},\beta_{\parallel}^{*})}{\langle\beta_{\parallel}^{*}|\alpha_{\parallel}\rangle} \\ \times \left|\phi_{\boldsymbol{\alpha}}(t)\right\rangle\!\left\langle\phi_{\boldsymbol{\beta}^{*}}(t)\right| \left[\hat{D}_{\perp}(\alpha_{\perp}) \otimes \hat{D}_{\parallel}(\alpha_{\parallel})\right] \bigotimes_{q=1} \left|\chi_{\boldsymbol{\alpha},q}(t)\right\rangle\!\left\langle\chi_{\boldsymbol{\beta}^{*},q}(t)\right| \left[\hat{D}_{\perp}^{\dagger}(\alpha_{\perp}) \otimes \hat{D}_{\parallel}^{\dagger}(\alpha_{\parallel})\right],\end{aligned} \tag{8}$$

其中，我们记为 $\boldsymbol{\alpha} = (\alpha_{\perp},\ \alpha_{\mu})$，并定义$|\chi_{\boldsymbol{\alpha},\ q}(t)\rangle \equiv |\chi^{(\perp)}_{\boldsymbol{\alpha},\ q}(t)\rangle \otimes |\chi^{(\parallel)}_{\boldsymbol{\alpha},\ q}(t)\rangle$，其中 $\chi_{\alpha_{\perp},\ q}(t)$ 表示偏振分量 μ [15, 48, 49]中第 q 阶谐波的振幅

$$\chi^{(\mu)}_{\boldsymbol{\alpha},q}(t) \propto \boldsymbol{\epsilon}_{\mu} \cdot \int \mathrm{d}\tau\, \langle\mathrm{g}|\hat{\boldsymbol{d}}_{\boldsymbol{\alpha}}(\tau)|\mathrm{g}\rangle\, e^{-i\omega_{q}\tau}, \tag{9}$$

其中，$\boldsymbol{d}_{\boldsymbol{\alpha}}(t)$ 是在 $\boldsymbol{E}_{\boldsymbol{\alpha}}(t) = \langle\boldsymbol{\alpha}|[\hat{}\boldsymbol{E}_{L,\perp}(t) + \hat{}\boldsymbol{E}_{L,\parallel}(t)]|\boldsymbol{\alpha}\rangle$ 作用下的含时偶极矩算符，其中 $\hat{}\boldsymbol{E}_{q,\mu}(t) = \boldsymbol{\epsilon}_{\mu}[\hat{}a_{q,\mu}e^{-i\omega_q t} + \text{c.c.}]$ 是作用于模式 $(q,\ \mu)$ 的电场算符。最后，在方程（8）中，$|\phi_{\boldsymbol{\alpha}}(t)\rangle$ 表示电子态，其满足

$$i\hbar\frac{\partial\,|\phi_{\boldsymbol{\alpha}}(t)\rangle}{\partial t} = \left[\hat{H}_{\text{atom}} + \mathsf{e}\hat{\boldsymbol{r}}\cdot\boldsymbol{E}_{\boldsymbol{\alpha}}(t)\right]|\phi_{\boldsymbol{\alpha}}(t)\rangle\,. \tag{10}$$

A. 谐波模上物理可观测量的评估

我们的讨论主要围绕作用于谐波模的两个物理可观测量展开：谐波光谱$S(\omega)$和二阶自相关函数 $g^{(2)}(0)$。这两个量都可以表示为物理可观测量 $O_{q,\mu}$ 的期望值，即

$$\langle\hat{O}_{q,\mu}\rangle = \text{tr}\Big[\hat{O}_{q,\mu}\hat{\rho}(t)\Big], \tag{11}$$

其中，$\hat{}\,O_q(t)$表示作用于模（q,μ）上的产生与湮灭算符的某种正规序组合。

将公式（8）代入上述表达式，并注意到在低耗尽高次谐波产生区间 [16]中，可以近似写为 $\langle\boldsymbol{\beta}^*|\boldsymbol{\alpha}\rangle \approx \langle\phi_{\boldsymbol{\beta}^*}(t)|\phi_{\boldsymbol{\alpha}}(t)\rangle\prod_q\langle\boldsymbol{\chi}_{\boldsymbol{\beta}^*,q}(t)|\boldsymbol{\chi}_{\boldsymbol{\alpha},q}(t)\rangle$ [38]，可得

$$\langle\hat{O}_{q,\mu}\rangle = \int\mathrm{d}^2\alpha_\mu\int\mathrm{d}^2\beta_\mu\int\mathrm{d}^2\alpha_{\bar{\mu}}\int\mathrm{d}^2\beta_{\bar{\mu}}\,\frac{P_\mu(\alpha_\mu,\beta_\mu^*)}{\langle\chi^{(\mu)}_{\boldsymbol{\beta}^*,q}(t)|\chi^{(\mu)}_{\boldsymbol{\alpha},q}(t)\rangle}P_{\bar{\mu}}(\alpha_{\bar{\mu}},\beta_{\bar{\mu}}^*)\langle\chi^{(\mu)}_{\boldsymbol{\beta}^*,q}(t)|\hat{O}_{q,\mu}|\chi^{(\mu)}_{\boldsymbol{\alpha},q}(t)\rangle. \tag{12}$$

为了评估这些物理可观测量，我们在经典极限下进行处理；该极限在参考文献 [34] 中也称为单光子振幅较小极限。在此区间内，相干态振幅通过 $\varepsilon_\alpha = 2\epsilon\alpha$ 与场振幅相关，其中$\epsilon \propto 1/\sqrt{V}$ 和 V 为量子化体积。取极限 $\epsilon\to 0$ $(V\to\infty)$时，对于自由空间传播场 [57], ，这一极限是合理的，但同时必须令 $\alpha\to\infty$ 趋于某值，以确保有限的场强 $\varepsilon_{\alpha\circ}$ 由于我们处理的是平均光子数极大的驱动场，这第二个极限与我们的问题相符。在此极限下，公式（12）变为

$$\langle\hat{O}_{q,\mu}\rangle = \int\mathrm{d}^2\varepsilon_{\alpha,\mu}\int\mathrm{d}^2\varepsilon_{\alpha,\bar{\mu}}\lim_{\epsilon\to 0}\Big[\frac{1}{16\epsilon^4}Q_\mu(\varepsilon_{\alpha_\mu})Q_{\bar{\mu}}(\varepsilon_{\alpha_{\bar{\mu}}})\Big]\langle\chi^{(\mu)}_{\boldsymbol{\alpha},q}(t)|\hat{O}_{q,\mu}|\chi^{(\mu)}_{\boldsymbol{\alpha},q}(t)\rangle, \tag{13}$$

在此情况下，狄拉克δ函数 $\delta(\varepsilon_{\alpha,\mu} - \varepsilon_{\beta,\mu})$ 自然地由所求极限 [34, 35] 产生。

需要强调的是，在该表达式中，极限不会直接影响期望值。然而，一般而言仍需谨慎，因为 $\langle\chi^{(\mu)}_{\boldsymbol{\alpha},q}(t)|\hat{}O_{q,\mu}|\chi^{(\mu)}_{\boldsymbol{\alpha},q}(t)\rangle \propto \epsilon^n$，其中 n 是取决于所研究可观测量的整数。因此，在计算极限 [36] 时必须格外小心。对于此处考虑的量——$S(\omega)$ 和 $g^{(2)}(0)$——则不存在这一问题，因为它们定义为

$$S(\omega)\propto\frac{\partial}{\partial\omega_q}\Big[\sum_{q\neq 1,\mu}\hbar\omega_q\langle\hat{a}^\dagger_{q,\mu}\hat{a}_{q,\mu}\rangle\Big],\quad g^{(2)}(0) = \frac{\langle\hat{a}^{\dagger 2}_{q,\mu}\hat{a}^2_{q,\mu}\rangle}{\langle\hat{a}^\dagger_{q,\mu}\hat{a}_{q,\mu}\rangle}, \tag{14}$$

根据构造，其中对 ϵ 的依赖会相互抵消，这或是由于 $S(\omega)$ 中的连续频率，或是由于 $g^{(2)}(0)$ 本身的结构。因此，极限 $\lim_{\epsilon\to 0}[S(\omega)]$ 和 $\lim_{\epsilon\to 0}[g^{(2)}(0)]$ 仍然定义良好。图 5 展示了 $S(\omega)$ 的一些示例，其中 (a) 为相位压缩驱动场，(b) 为振幅压缩驱动场；不同的颜色和标记样式表示不同的驱动场椭圆率。

B. 坐标变换

公式（13）中所给极限的求值已在文献中得到广泛讨论 [34, 35]。然而，迄今为止的大多数研究仅限于振幅压缩和相位压缩的情形，即 $\xi\in\mathbb{R}$ 的情况。考虑到 ξ 内在的复数性质，需要谨慎处理，才能正确地恢复出与上述研究中所报告结果类似的表达式。

一方面，对于相干态分量，我们发现 [35]

$$\lim_{\epsilon\to 0}\left[\frac{1}{4\epsilon^2}Q_\parallel(\varepsilon_\parallel)\right] = \delta(\varepsilon_{\parallel,x} - \bar{\varepsilon}_x)\delta(\varepsilon_{\parallel,y} - \bar{\varepsilon}_y), \tag{15}$$

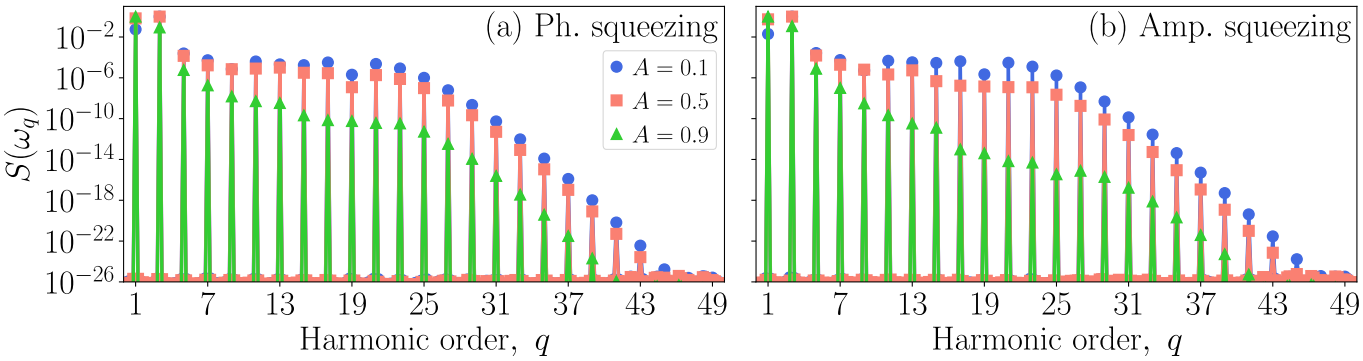


图 5. 不同椭圆率 A 下，(a) 相位驱动场和 (b) 压缩驱动场的高次谐波产生谱。计算采用单色场，参数设为 $\varepsilon_{\parallel} = 0.053$ 原子单位、$\omega_L = 0.057$ 原子单位、$I_{\mathrm{sq},\perp} = 10^{-5}$ 原子单位，电离势为 $I_p = 0.5$ 原子单位（氢）。

其中我们将 $\varepsilon_{\parallel} = \varepsilon_{\parallel,x} + i\varepsilon_{\parallel,y}$ 分解，并引入了 $\bar{\varepsilon}_{\parallel} = 2\epsilon\bar{\alpha}_{\parallel}$。另一方面，对于压缩态，这一计算需要更加谨慎。一般而言，相干态振幅为 $\bar{\alpha}$ 的压缩相干态的 Husimi函数可写为

$$Q(\alpha) = \frac{1}{\cosh(r)} \exp\left[-|\tilde{\alpha}|^2 - \frac{\tanh(r)}{2}\left((\tilde{\alpha})^2 + (\tilde{\alpha}^*)^2\right)\right], \tag{16}$$

其中我们定义 $\tilde{\alpha} = (\alpha - \bar{\alpha})e^{-i\phi/2}$。将指数展开为实部和虚部，即 $\tilde{\alpha} = \tilde{\alpha}_x + i\tilde{\alpha}_y$，Husimi函数可改写为

$$Q(\alpha) = \frac{1}{\cosh(r)} \exp\left[-\frac{\tilde{\alpha}_x^2}{1+e^{2r}} - \frac{\tilde{\alpha}_y^2}{1+e^{-2r}}\right], \tag{17}$$

其中变量 $(\tilde{\alpha}_x,\ \tilde{\alpha}_y)$ 与原始积分变量之间的关系为

$$\tilde{\alpha}_x = (\alpha_x - \bar{\alpha}_x)\cos\left(\tfrac{\phi}{2}\right) - (\alpha_y - \bar{\alpha}_y)\sin\left(\tfrac{\phi}{2}\right), \qquad \tilde{\alpha}_y = (\alpha_y - \bar{\alpha}_y)\cos\left(\tfrac{\phi}{2}\right) + (\alpha_x - \bar{\alpha}_x)\sin\left(\tfrac{\phi}{2}\right). \tag{18}$$

因此，这一变量变换实际上将相空间坐标系平移至压缩原点，并进行旋转，使得该态表示为沿 $\tilde{\alpha}_y$ 所定义的光学正交分量压缩的压缩真空态。在这一坐标系中，应用经典极限变得简单直接，可得

$$\lim_{\epsilon\to 0}\left[\frac{1}{4\epsilon^2}Q_{\perp}(\varepsilon_{\perp})\right] = \frac{1}{\sqrt{8\pi I_{\mathrm{squ}}}} \exp\left[-\frac{\tilde{\varepsilon}_{\perp,x}}{8I_{\mathrm{squ}}}\right]\delta(\varepsilon_{\perp,x} - \bar{\varepsilon}_x), \tag{19}$$

引入变量替换后，后续分析与文献 [34, 35] 类似。

C. 数值分析

在我们的数值分析中，我们设定 $\bar{\varepsilon}_{\parallel,x} = \bar{\varepsilon}_{\perp,y} = 0.053$ 原子单位和 $\bar{\varepsilon}_{\parallel,y} = \bar{\varepsilon}_{\perp,x} = 0.0$ 原子单位，并将 $I_{\mathrm{squ}} = 10^{-5}$ 原子单位作为压缩强度。使用这些参数，在强场近似（SFA） [58] 下，利用 RB-SFA Mathematica 软件包 [59] 对谱振幅 $\boldsymbol{\chi}_{\boldsymbol{\alpha},q}(t)$ 进行了数值计算。具体而言，对于正文中考虑的每个 A 和 θ 值，我们沿胡斯米分布采样了 140 个点，并将其用于分析 $S(\omega)$ 和 $g^{(2)}(0)$。计算采用覆盖五个光学周期的单色驱动场。原子系统选用氢（$I_p = 0.5$ 原子单位），驱动场频率为 $\omega = 0.057$ 原子单位。

II. 补充图

本节将展示一些补充图，以补充正文中的图。图 6(a) 展示了可见度，其定义为

$$V = \frac{\langle \hat{a}^{\dagger}_{q,\parallel} \hat{a}_{q,\parallel} \rangle - \langle \hat{a}^{\dagger}_{q,\perp} \hat{a}_{q,\perp} \rangle}{\langle \hat{a}^{\dagger}_{q,\parallel} \hat{a}_{q,\parallel} \rangle + \langle \hat{a}^{\dagger}_{q,\perp} \hat{a}_{q,\perp} \rangle}, \tag{20}$$

对于具有 $A = 0.9$ 的驱动场。该量旨在表征产生的谐波的偏振分量之间平均强度的分布情况。这使我们能够深入了解不同类型的驱动场（相位压缩或振幅压缩）导致 $\mathrm{E}_q < 1$ 的机制，因为圆偏振光满足 $V = 0$，且各分量之间的相位差为 $\pi/2$。

对于相位压缩情形（蓝色曲线，带圆形标记），我们发现平台区内的谐波阶数满足 $V > 0$，这表明阻碍完美圆偏振的主要因素，是驱动场中的场涨落如何转化为沿 $\parallel$ 分量的更高强度。相比之下，对于振幅压缩（红色曲线，带方形标记），我们发现 $V \approx 0$，这表明偏离 $\mathrm{E}_q = 1$ 的原因是相位涨落，它们在偏振分量之间引起了不同于 $\pi/2$ 的相对相移。然而，在这两种情况下，较低谐波阶次均表现出 $V = 0$，其相位差接近 $\pi/2$，因为这会使发射辐射具有较高的椭圆率。

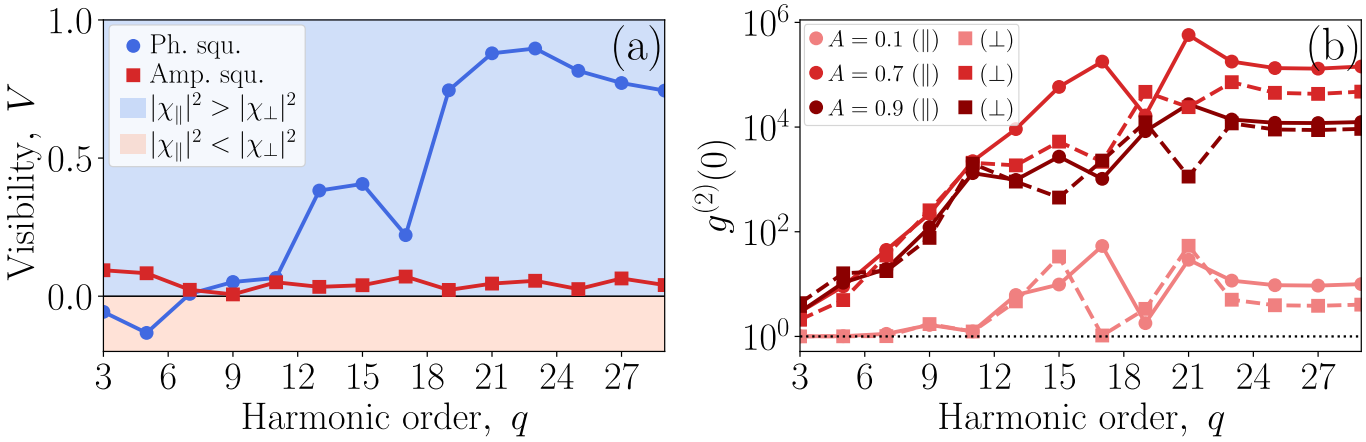


图 6. (a) 不同驱动场条件下的可见度；(b) 对于不同椭圆率值 A 的相位压缩驱动场，二阶自相关函数 $g^{(2)}(0)$ 随谐波阶次 q 的变化。

图 6(b) 展示了相位压缩驱动场的 $g^{(2)}(0)$ 函数。从定性上看，结果与振幅压缩时相似：当 A 较大时，$g^{(2)}$ 随谐波阶次增加而增大；随着 A 减小，$g^{(2)}$ 也随之减小。然而，从定量角度看，两者的数值差异显著——相位压缩产生的 $g^{(2)}(0)$ 值最高可比振幅压缩时观察到的值高出三个数量级。这是因为相位压缩会引起更大的场强涨落。如下文所述，这种增强与高次谐波产生过程的强非线性相结合，解释了所观察到的极大 $g^{(2)}(0)$ 值。

III. 二阶自相关函数的分析

在正文中，我们发现，$g^{(2)}(0)$ 函数的数值比标准超泊松光源通常观察到的数值高出许多个数量级；标准超泊松光源的数值通常约为 $g^{(2)}(0) \approx 2$。本节的主要目的是阐明这些异常大的数值为何出现，它们源于两个因素的共同作用：

- 高次谐波产率随驱动场强度变化的独特标度关系，
- 在足以驱动气态系统产生高次谐波的强度下，与压缩态相关的场涨落特征。

为简化本文所述的计算，我们将计算限定于线偏振驱动场，并考虑多种类型的光源，从亮压缩真空态（BSV）到场振幅非零的一般位移压缩真空态（DSV）。这种情况类似于从线偏振转向圆偏振，因为在压缩趋于零的情况下，无论是圆偏振光源还是亮压缩真空光源，都不会产生高次谐波辐射。

A. 玩具模型

研究发现，在强压缩条件下，谐波辐射的性质与混合态 [34–36, 38] 的性质相符

$$\hat{\rho}_q = \int \mathrm{d}\varepsilon_\alpha \mathcal{Q}(\varepsilon_\alpha, \bar{\varepsilon}_\alpha) \left|\bar{\chi}_q(\varepsilon_\alpha)\right\rangle\!\left\langle\bar{\chi}_q(\varepsilon_\alpha)\right| , \tag{21}$$

其中，$\mathcal{Q}(\varepsilon_\alpha, \bar{\varepsilon}_\alpha)$ 对应于式（19）中出现的极限。需要注意的是，在写出这一表达式时，必须考虑热力学极限 [36] 等其他因素。具体而言，我们假设当 $V \to \infty$ 时，高次谐波产生相互作用区中的原子数 $N_{\mathrm{at}} \to \infty$，使得 $\varrho = N_{\mathrm{at}}/\sqrt{V}$ 保持不变。因此，我们定义 $\bar{\chi}_q(\varepsilon_\alpha) \equiv \varrho \int \mathrm{d}\tau \langle \mathrm{g}| \hat{d}_{\varepsilon_\alpha}(\tau) |\mathrm{g}\rangle e^{-i\omega_q t}$。

为了深入了解这一状态的性质，我们引入一个简单的玩具模型，其中 $\bar{\chi}_q(\varepsilon_\alpha) = \varepsilon_\alpha^p$。这一选择的动机是，高次谐波产生强度，尤其是在平台区，通常按驱动场的某个幂次 $p > 0$ 缩放 [51–53]。在此模型中，相应的状态可写为

$$\hat{\rho}_q = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma}} \int \mathrm{d}\varepsilon_\alpha \exp\left[-\frac{(\varepsilon_\alpha - \bar{\varepsilon})^2}{2\sigma}\right] \left|\varepsilon_\alpha^p\right\rangle\!\left\langle\varepsilon_\alpha^p\right| . \tag{22}$$

在此框架下，设定 $\bar{\varepsilon} = 0$ 会再现一个由亮压缩真空驱动过程的类比，而 $\bar{\varepsilon} \neq 0$ 则对应于一般的位移压缩真空态。为简便起见，我们将积分路径取为实轴，因此 $g^{(2)}(0)$ 函数变为

$$g^{(2)}(0) = \sqrt{2\pi\sigma} \frac{\int \mathrm{d}\varepsilon_\alpha \exp\left[-(\varepsilon_\alpha - \bar{\varepsilon})^2/2\sigma\right] \varepsilon_\alpha^{4p}}{\left[\int \mathrm{d}\varepsilon_\alpha \exp[-(\varepsilon_\alpha - \bar{\varepsilon})^2/2\sigma] \varepsilon_\alpha^{2p}\right]^2} . \tag{23}$$

由柯西-施瓦茨不等式可立即得到 $g^{(2)} \geq 1$。更明确地说，分母的下界可写为

$$\langle \hat{a}_q^\dagger \hat{a}_q \rangle^2 = \left[\int \mathrm{d}\varepsilon_\alpha \mathcal{Q}(\varepsilon_\alpha) \alpha^{2p}\right]^2 \leq \left[\int \mathrm{d}\varepsilon_\alpha \mathcal{Q}(\varepsilon_\alpha) \alpha^{4p}\right] \left[\int \mathrm{d}\varepsilon_\alpha \mathcal{Q}(\varepsilon_\alpha)\right] = \int \mathrm{d}\varepsilon_\alpha \mathcal{Q}(\varepsilon_\alpha) \alpha^{4p} = \langle \hat{a}_q^{\dagger 2} \hat{a}_q^2 \rangle, \tag{24}$$

其中我们利用了 $\mathcal{Q}(\varepsilon_\alpha)$ 已归一化为 1 这一事实。

然而，从更一般的角度来看，对于特殊情形 $\varepsilon_\alpha = 0$，对公式（23）中的积分进行显式计算可得

$$g^{(2)}_{\mathrm{BSV}}(0) = \sigma\sqrt{\pi} \frac{\Gamma(\frac{1}{2} + 2p)}{\Gamma(\frac{1}{2} + p)^2}, \tag{25}$$

由此我们发现 $\lim_{p\to\infty}[g^{(2)}{}_{\text{亮压缩真空}}(0)] = \infty$。这一结果在图7(a)中得到了进一步说明，该图展示了 $\langle \hat{a}_q^{\dagger 2} \hat{a}_q^2 \rangle$（蓝色曲线）和 $\langle \hat{a}_q^\dagger \hat{a}_q \rangle^2$（红色曲线）随 p 变化的行为。随着 p 的增加，两条曲线之间不断扩大的间距凸显了 $g^{(2)}(0)$ 的发散。

从这项分析中得到的重要结论是，谐波转换效率抵消了大场振幅出现概率的快速下降。因此，谐波发射中会出现强烈的强度关联，因为分布中那些罕见的极端值会成为主要贡献者。在转换效率趋于无穷大的极限下，只要场分布的宽度大于零，它就不再影响该态的光子统计。然而，在现实情形中，一旦场强超过临界值，耗尽效应便会开始发挥作用，并可能导致 $g^{(2)}(0)$达到饱和值。

含有 $\bar{\varepsilon} \neq 0$ 的更一般情形如图 8（b）所示。我们观察到，增大 α_0 会降低 $g^{(2)}(0)$对 p （此处记为 n）的依赖陡峭程度。与 BSV 类比情形不同，考察极限 $\sigma \to 0$时，谐波强度 $|\varepsilon|^{2p} \neq 0$仍为有限值。因此，高次谐波产生光谱的主要贡献来自相干 α_0 场。在此极限下，$g^{(2)}(0) \to 1$；这与 $\varepsilon_0 = 0$ 情形形成鲜明对比，在后者中，随着$\sigma \to 0$，$g^{(2)}(0)$变得未定义。

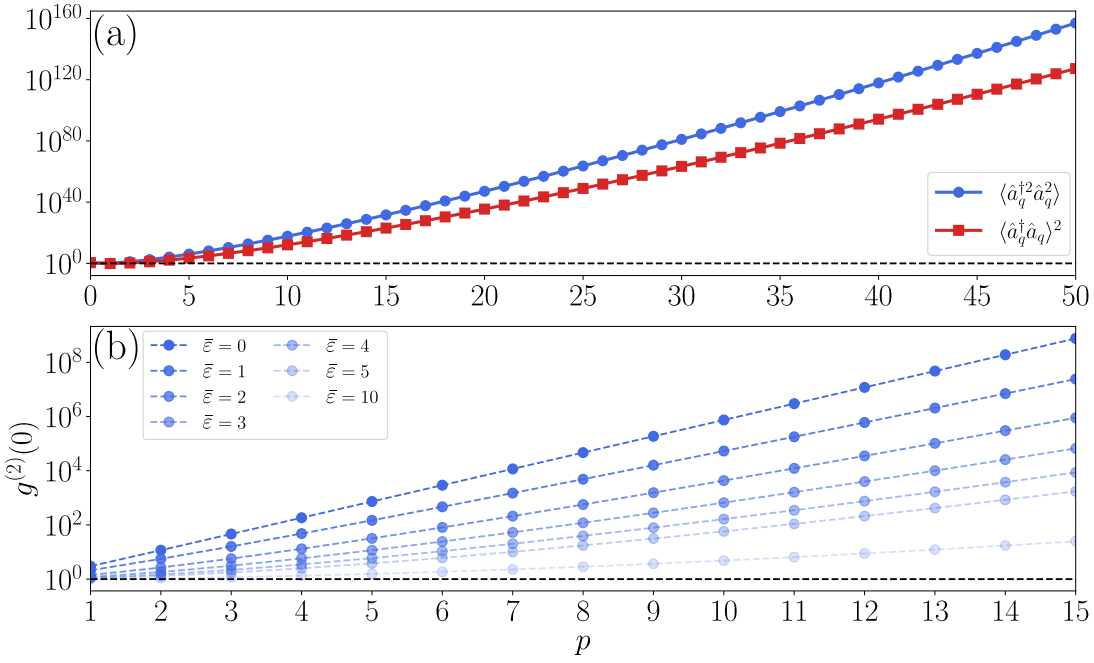


图7. (a) 当设定 $\bar{\varepsilon} = 0$ 时，式（22）中的玩具模型里 $\langle \hat{a}_q^{\dagger 2} \hat{a}_q^2 \rangle$（蓝色圆形标记曲线）和 $\langle \hat{a}_q^{\dagger} \hat{a}_q \rangle^2$（红色圆形标记曲线）的变化。(b) 不同 $\bar{\varepsilon}$ 值下的结果。为简单起见，此处设定 $\sigma = 1$ 。

B. 引入基态耗尽

然而在实际中，高次谐波产生转换效率并不会随驱动场强度均匀变化。对于强度足够高的相干态，基态耗尽会成为主导效应，从而大幅降低高次谐波产生效率。一旦将耗尽考虑在内，前文引入的玩具模型便不再适用：当 ε_α超过某个值后，产额不再呈指数增长，反而会急剧下降。

为了研究耗尽如何影响 $g^{(2)}$ 函数，我们在计算谐波光谱时明确将其纳入。我们的方法遵循文献 [54]，该文献在强场近似 [58]，下计算用于求取 χ_q 的含时偶极矩（ε_α（t）为

$$d(t) = \langle \psi(t) | \hat{d} | \psi(t) \rangle \approx \int \mathrm{d}v \int_{t_0}^{t} \mathrm{d}t_1 e^{-\frac{1}{2}\int_{-\infty}^{t} \mathrm{d}\tau \Gamma_{\mathrm{ADK}}(\tau)} e^{-iS(p,t,t_1)} d\big(p + A(t)\big) E(t_1) d\big(p + A(t_1)\big) e^{-\frac{1}{2}\int_{-\infty}^{t_1} \mathrm{d}\tau \Gamma_{\mathrm{ADK}}(\tau)}, \quad (26)$$

其中，S（p，t，t_1）是半经典作用量，E（t）是电场，而 d（v）表示基态与连续态 $|v\rangle$ 之间的跃迁矩阵元。电离率 Γ_{ADK}（t）采用 Ammosov-Delone-Krainov（ADK）模型 [60] 计算。数值上，偶极矩使用 RB-SFA Mathematica 软件包 [59]，计算；该软件包因能高效地在 SFA 框架内生成高次谐波产生光谱而被选用。我们按照文献 [54] 中的流程进行了少量修改，以纳入耗尽效应。

图 8 展示了在各种条件下考虑耗尽效应时 $g^{(2)}$ 的取值。图 (a) 中，压缩强度固定为 $I_{\mathrm{squ}} = 10^{-5}$ 原子单位，与正文相同，而 $\bar{\varepsilon}$ 则有所变化。尽管不同谐波的数值存在定量差异，但它们都遵循与图 4 相同的总体趋势。具体而言，当 $\bar{\varepsilon} = 0.053$ （对应于具有非零平均振幅的线偏振场）时，我们发现 $g^{(2)} \in [1, 10]$。随着 $\bar{\varepsilon} \to 0$ 增大——在图 4 中，这对应于偏振从线偏振转变为圆偏振——$g^{(2)}$ 呈指数增长。此外，与椭圆偏振的情况类似，我们发现较高谐波阶次对应的 $g^{(2)}$ 更大。

图 (b) 则考察固定谐波阶次的情况，即第 13 次谐波（其他阶次也观察到类似行为），并展示了若干 $\bar{\varepsilon}$ 取值下，$g^{(2)}(0)$ 随压缩强度的变化情况。与之前相同，最大值出现在 $\bar{\varepsilon} = 0$ 时。在这种情况下，随着 I_{squ} 增大，场涨落也随之增大，因此耗尽效应变得更加显著。我们观察到，当超过约 $I_{\mathrm{squ}} \approx 5 \times 10^{-5}$ 原子单位后，$g^{(2)}(0)$ 的数值趋于饱和，并且在所有 $\bar{\varepsilon}$ 下大致相当。

通过上述分析，我们得出以下结论：

- 高次谐波产生的强非线性与高强度压缩光宽广的场涨落，是导致 $g^{(2)}(0)$ 数值较大的主要因素；

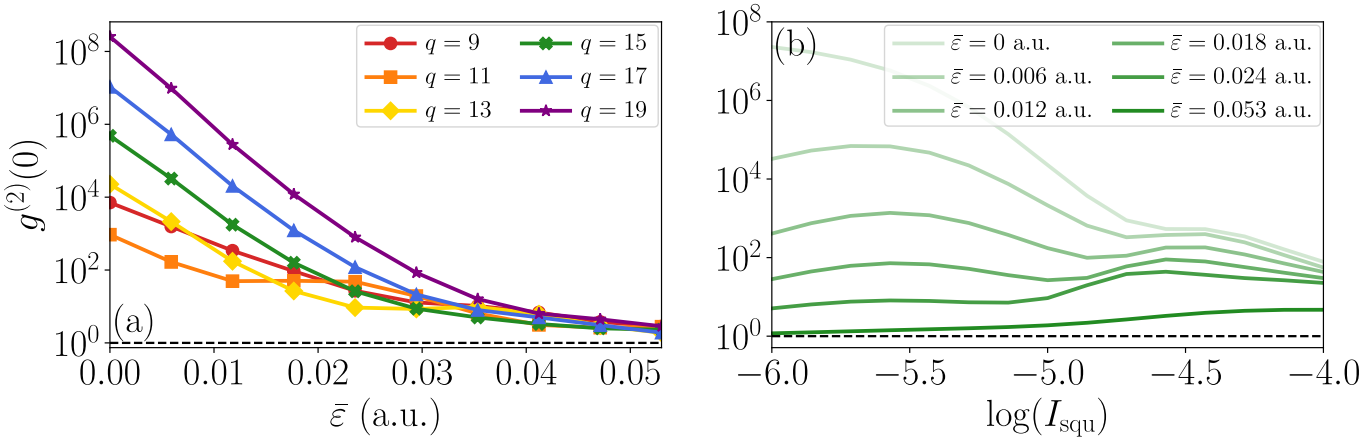


图 8. 二阶自相关函数：(a) 在固定的 $I_{\mathrm{squ}} = 10^{-5}$ 原子单位下，随 $\bar{\varepsilon}$ 变化时不同谐波阶数对应的函数；(b) 在第13阶谐波处，随 I_{squ} 变化时不同 $\bar{\varepsilon}$ 取值对应的函数。与正文不同，为简化耗尽效应的处理，此处驱动场采用持续时间为 13 fs 的 $\sin^2$ 包络，中心频率为 $\omega_L = 0.057$ 原子单位。

- 这种效应在亮压缩真空或圆偏振驱动场下最为显著，因为若不存在场涨落，高次谐波产生便会消失，而仅靠涨落就能维持发射；
- 耗尽起到稳定机制的作用，当场振幅超过临界阈值 $\bar{\varepsilon}_{\mathrm{crit}}$时，抑制高次谐波产生转换效率，从而防止 $g^{(2)}(0)$ 无界增长。