

专题: 超快原子分子谱学仪器与测量方法

基于水窗高次谐波阿秒光源的 瞬态吸收光谱装置*

邓意民^{1) #} 张煜^{1) #} 陆培祥²⁾ 曹伟^{1) †}

1) (华中科技大学物理学院, 武汉 430074)

2) (武汉光电国家研究中心, 武汉 430074)

(2025年4月25日收到; 2025年5月12日收到修改稿)

以软 X 射线相干光源作为超快探针的瞬态吸收光谱技术在化学、生物、材料领域有着广泛的应用前景. 本文介绍一种基于桌面式软 X 射线光源的瞬态吸收装置的设计, 该装置利用短波红外激光来驱动软 X 射线高次谐波阿秒光源的产生, 最大光子能量进入水窗波段 (>300 eV). 产生的阿秒光源与近红外激光通过孔镜合束实现了泵浦探测光路的时空同步, 1 h 内时间稳定性优于 10 fs. 利用该装置开展了氫 L 边及碳 K 边瞬态吸收光谱的初步研究, 为实现元素分辨、时间分辨、跃迁通道分辨的电子动力学测量提供了重要的工具.

关键词: 高次谐波, 软 X 射线, 瞬态吸收, 水窗**PACS:** 32.30.-r, 32.80.-t, 33.20.Xx, 42.65.Re**DOI:** 10.7498/aps.74.20250550**CSTR:** 32037.14.aps.74.20250550

1 引言

瞬态吸收光谱技术是一种用于研究超快动力学过程的先进实验方法, 其原理是利用一束泵浦光作为激励源触发超快过程, 然后通过一束探测光记录该过程的时间演化. 探测光在通过样品后, 其吸收光谱的变化能够揭示超快过程的瞬态信息. 随着激光技术的不断发展, 瞬态吸收光谱技术的时间分辨率持续提升. 特别是近年来, 基于高次谐波的阿秒脉冲产生与测量技术日趋成熟, 使得具备阿秒时间分辨能力的瞬态吸收光谱技术得到了快速发展.

2009年, 德国马普研究所与加州大学伯克利分校的研究团队合作, 首次利用基于内壳层激发的阿秒瞬态吸收光谱技术 (attosecond transient absorption spectroscopy, ATAS), 观测到氮离子

中价电子波包在几个飞秒时间尺度上的周期性运动^[1]. 此后, 多个研究团队将该技术扩展至固体材料领域, 开展了广泛的应用研究. 例如, 研究人员通过这一技术探测了硅晶体中的隧穿电离动态过程^[2]、观察到多晶金刚石中的动态 Franz-Keldysh 效应^[3]、揭示了 VO_2 的光诱导超快相变^[4], 以及研究铁合金中光诱导的超快相干退磁过程^[5].

目前, 阿秒瞬态吸收光谱实验中常用的阿秒探针的光谱主要分布在 10—70 nm 的极紫外 (XUV) 波段, 主要用于研究物质内部的价电子动力学. 如果将阿秒探针的波长进一步扩展至软 X 射线“水窗”波段 (2.3—4.4 nm), 则可以赋予传统的近边吸收光谱技术阿秒时间分辨能力, 实现对有机生物分子、磁性材料等的元素分辨与结构分辨的超快电子动力学探测. 这种技术在生物学、化学以及材料科学等领域具有巨大应用潜力. 然而, 根据高次谐波

* 国家重点研发计划 (批准号: 2023YFA1406800, 2024YFE0205800)、国家自然科学基金 (批准号: 12274158, 12021004) 和光学信息与模式识别湖北省重点实验室开放基金 (批准号: 202304) 资助的课题.

同等贡献作者.

† 通信作者. E-mail: weicao@hust.edu.cn

的产生机制, 水窗波段的高次谐波需要高能量的短波红外激光驱动, 转换效率低. 这些技术限制使得水窗波段阿秒瞬态吸收光谱技术的发展较为缓慢.

直到 2017 年, Pertot 等^[6]首次将基于高次谐波的瞬态吸收光谱技术扩展至水窗波段, 并利用超快光谱技术研究了含碳分子的光化学反应中的非绝热过程. 水窗波段的瞬态吸收具有较宽的带宽和高光子能量的特征, 这使得科学家可以在这个波段对多种原子分子的内壳层结构进行研究. 之后陆续有利用水窗波段的瞬态吸收对气体^[7-13]、液体^[14,15]、有机材料^[16,17]等物质的超快动力学进行研究, 同时科学家们也利用水窗波段的瞬态吸收开展了关于分子结构^[18]、气相化学反应^[19]、电子弛豫过程中分子态^[20]等方面的研究. 这些研究采用了高能量(脉冲能量 >10 mJ)的飞秒激光器配合高功率的光参量放大系统(optical parameter amplifier, OPA)系统, 尽管获得了重要进展, 但其昂贵的设备成本、复杂的维护要求以及占用较大的实验空间, 使得该技术在常规激光实验室中的普及面临挑战.

针对这一问题, 我们设计了一套紧凑型的基于水窗高次谐波阿秒光源的瞬态吸收光谱装置. 该装置利用脉冲能量小于 4.5 mJ 的钛宝石飞秒激光作为主要驱动源, 同时结合光参量放大技术及空芯光纤脉冲压缩技术产生了中心波长 1530 nm, 脉冲能量 400 μ J, 脉冲宽度为 16.5 fs 的少周期短波红外脉冲. 该少周期短波红外脉冲可以与高压的氦气相互作用产生光子能量大于 300 eV 的超连续软 X 射线阿秒光源. 基于此光源我们初步开展了氙气、二氧化碳等气体的瞬态吸收光谱实验. 这一工作为在

常规激光实验室中开展 K 壳层激发的阿秒瞬态吸收光谱实验提供了新思路.

2 基于软 X 射线阿秒光源的 ATAS 装置介绍

基于水窗高次谐波阿秒光源的瞬态吸收光谱装置如图 1 所示. 整个装置主要有四个部分组成: 少周期短波红外 (IR) 激光的产生与诊断、水窗高次谐波阿秒光源的产生、双波长泵浦探测光路以及软 X 射线光谱仪. 简单来说, 实验首先利用基于空芯光纤的非线性压缩技术将 OPA 输出的 1440 nm 信号光压缩成少周期短波红外 (short-wavelength infrared, SWIR) 激光, 该少周期激光脉冲与高压气体靶相互作用产生水窗阿秒光源. 水窗阿秒光源和 OPA 系统残余的 800 nm 泵浦光经过合束及同步后共同聚焦在待测样品上进行双波长泵浦探测实验. 经过样品后的软 X 射线光谱由自制的高精度 XUV 光谱仪记录. 通过简化光路、削减光学元件缩短光程, 我们的实验装置相较于类似装置^[7,8,21]光程更短, 具有结构简单、光路紧凑的优点. 使用双色泵浦探测光路降低了对脉冲能量的需求同时更容易对实验泵浦光的偏振、能量等参数进行操控. 高次谐波气体靶室采用了多级差分真空设计方案, 可以加入高压气体满足软 X 射线光源产生时的相位匹配条件. 同时实验中用到的啾啾镜、窗片、反射镜等关键光学元件均采购至国内生产商, 降低了实验成本以及装置的维护难度. 下面分部分详细介绍该装置.

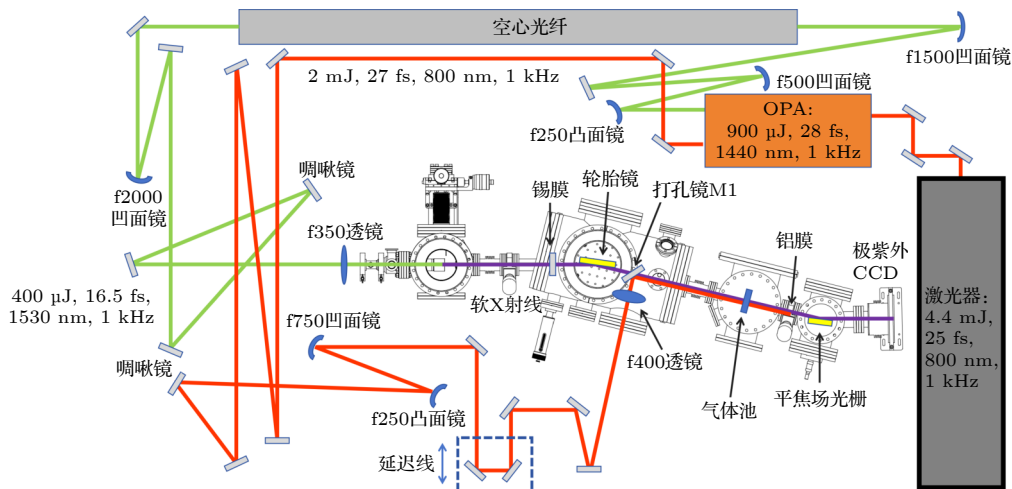


图 1 利用少周期短波红外激光产生软 X 射线进行瞬态吸收实验光路示意图

Fig. 1. Schematic of transient absorption experimental carried by soft X-ray generated by few-cycle infrared laser.

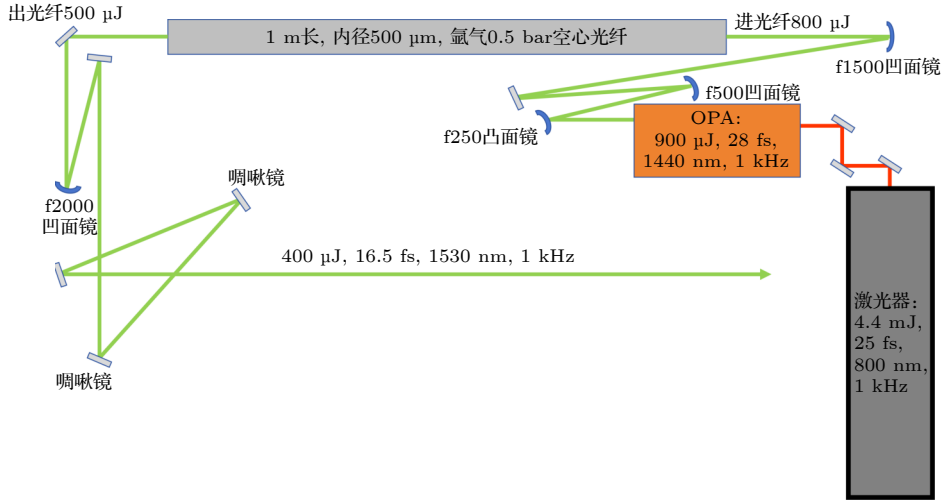


图 2 少周期短波红外激光的产生光路示意图.

Fig. 2. Schematic of few-cycle SWIR laser generation.

2.1 少周期短波红外 (SWIR) 激光的产生与诊断

利用短波红外激光来驱动软 X 射线高次谐波阿秒光源进行软 X 射线光谱瞬态吸收实验首先需要产生少周期短波红外激光, 所采用非线性压缩装置如图 2 所示. 钛: 蓝宝石飞秒激光器 (Coherent Legend) 输出的 4.4 mJ, 25 fs, 800 nm, 1 kHz 的飞秒激光被注入到一套商业 OPA 系统 (TOPAS-Prime) 获得 900 μJ , 28 fs, 1440 nm 的短波红外激光. 该红外激光经过扩束后被 1.5 m 的凹面反射镜耦合进入充有 0.5 bar 氩气 (1 bar = 10^5 Pa), 长度 1 m, 内径 500 μm 的空芯光纤中, 利用非线性效应对红外脉冲光谱进行展宽 (红外光谱如图 3 所示), 得到了能够产生少周期激光的宽带光谱, 其中展宽后的光谱中心波长 1530 nm, 谱宽约 600 nm. 光纤系统两端利用 1 mm 厚的窗片封装, 入射端窗片为 1440 nm 增透窗片, 出射端窗片为 1 mm 厚的氟化钙窗片 (减少材料的色散). 空芯光纤输出脉冲能量约 500 μJ , 光纤耦合效率约 62%. 经过展宽后的脉冲通过凹面反射镜准直后经过定制的宽带啾啾镜 (深圳市海创光学有限公司, HR1170-1800 nm) 对宽带脉冲进行色散补偿, 最终得到了 400 μJ 的少周期短波红外脉冲. 通过我们自己搭建的二次谐波频率分辨光学门 (frequency resolved optical gating, FROG,) 系统测得压缩后的少周期短波红外脉宽半高宽约为 16.5 fs (如图 4 所示). 该少周期红外激光为后续产生超连续软 X 射线阿秒光源提供了必要的驱动光源.

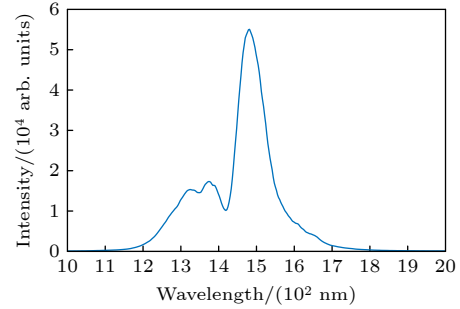


图 3 经过空芯光纤系统展宽后的短波红外光谱

Fig. 3. Spectrum of SWIR laser pulse after spectral broadening in hollow-core fiber.

2.2 水窗高次谐波阿秒光源的产生

利用焦距 35 cm 的透镜直接将压缩后的少周期短波红外激光聚焦到气体靶室上, 可以产生软 X 射线高次谐波. 为了满足产生水窗阿秒光源的相位匹配条件 [22-24], 靶室中需充入数个大气压的稀有气体. 由于水窗阿秒光源在非真空条件下传播时会被快速吸收, 所以需要设计差分真空系统: 在激光焦点附近的相互作用区达到高压环境, 同时在阿秒光源产生后气压迅速降到允许阿秒光源传播的真空条件. 实验中用到的透射光学元件 (如透镜、窗片等) 都采用了氟化钙材料. 氟化钙对实验所用的红外激光波段保证 90% 以上透射率的同时可以引入较少的色散, 尽量减少少周期短波红外激光的时域展宽.

差分真空系统的整体示意图如图 5 所示. 深蓝色腔体为高次谐波产生靶室, 实验中用于产生软 X 射线高次谐波的气体通常是氩气, 根据高次谐波

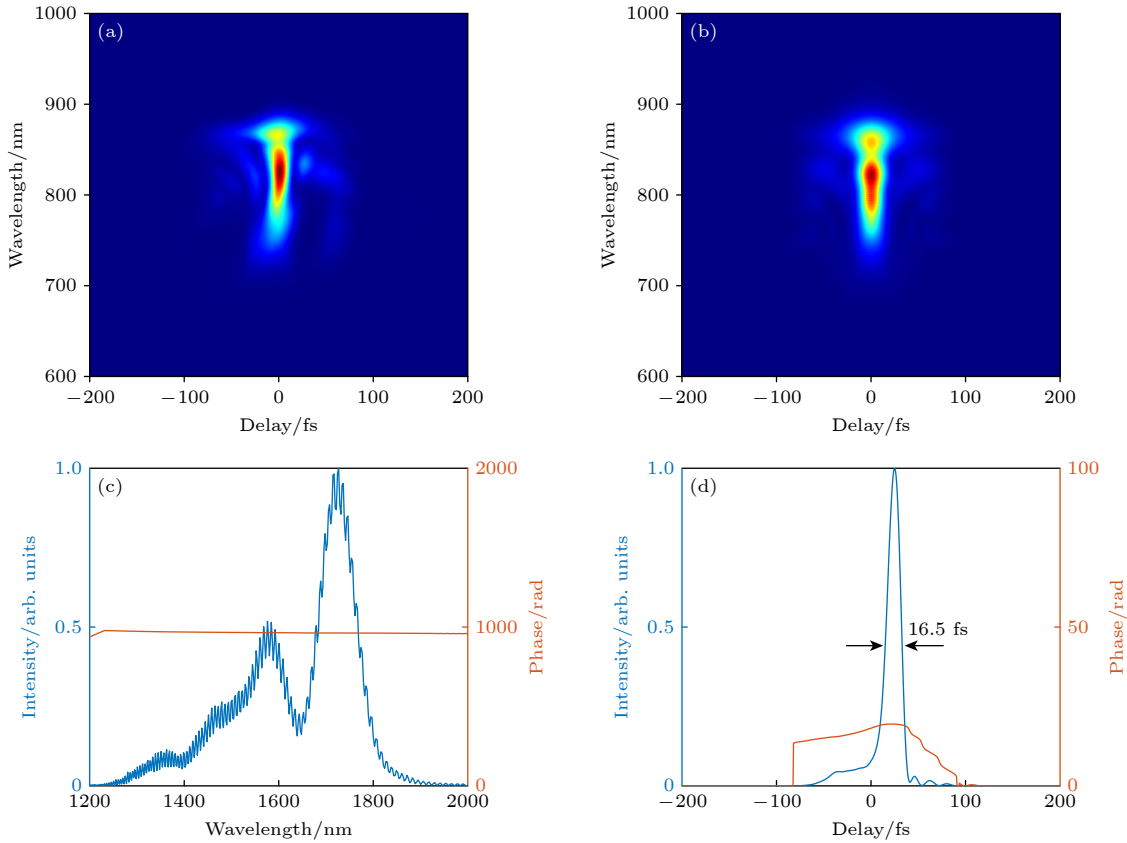


图 4 FROG 脉宽测量结果 (a) 测量得到的 FROG trace; (b) 重构得到的 FROG trace; (c) 重构得到的少周期短波红外光谱强度及相位; (d) 重构得到的少周期短波红外时域结构

Fig. 4. Results of FROG measurement: (a) Measured FROG trace; (b) reconstructed FROG trace; (c) reconstructed spectral amplitude and phase of the few-cycle SWIR laser pulse; (d) constructed temporal structure of the SWIR laser pulse.

效率优化后的气压大概为 3 bar; 橙色腔体套在深蓝色腔体外部, 激光聚焦到深蓝色腔体后端钻出小孔 (直径约为 100 μm) 后使得两部分腔体通过小孔联通, 形成第一级差分真空系统, 通过机械泵抽气可以使橙色腔体部分气压维持在 10 mbar 左右; 橙色腔体外面的黄色腔体与橙色腔体亦通

过 1 mm 小孔 (图 5 中灰色部件) 联通形成第二级差分真空系统, 黄色腔体的气压借助腔上分子泵可维持在 10^{-3} mbar 左右允许水窗阿秒光源几乎无衰减的传播. 差分真空系统的末端同时安放了一个带 2 mm 小孔的挡板, 该挡板一方面有助于光路的传播方向的快速调整, 同时还可以对剩余部分红外激光进行一定的阻挡, 便于后续瞬态吸收实验的开展.

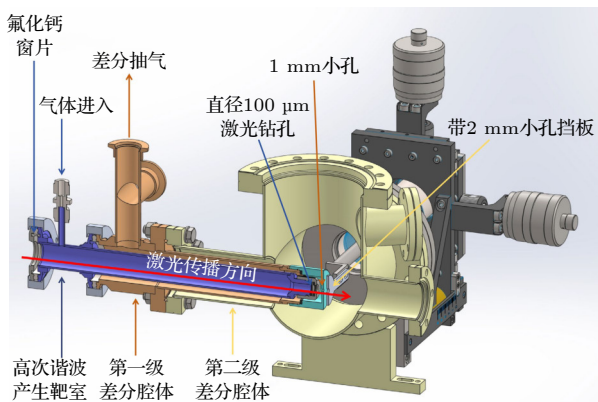


图 5 产生软 X 射线高次谐波的气体靶室截面图

Fig. 5. Cross section view of the gas target for soft X-ray high harmonic generation.

2.3 软 X 射线光谱仪

我们自制了一套软 X 射线光谱仪对实验中产生水窗阿秒光源进行记录分析. 如图 6 所示, 产生的软 X 射线高次谐波光源经过可调节狭缝后掠入射到刻线密度 1200 lines/mm 的平焦场光栅 (岛津光学, 30-006) 上, 经光栅分光后的高次谐波光谱被 X 射线 CCD 相机 (Princeton Instrument, PIXIO 400B) 记录, 其中狭缝前放置了 200 nm 的锡膜和铝膜来滤除掉残余的 SWIR 驱动光, 金属膜同时有抑制背景和保护相机的作用.

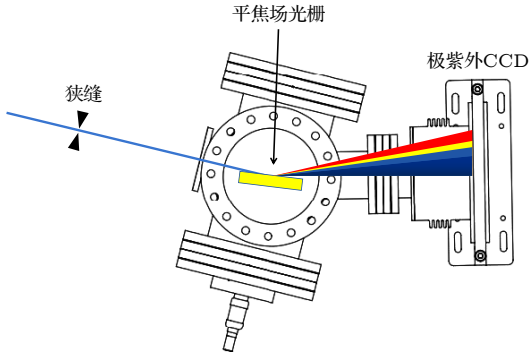


图 6 软 X 射线光谱仪

Fig. 6. Home-built soft X-ray spectrometer.

光谱仪可以利用特定气体的吸收谱线进行能量定标. 图 7 给出了实验上产生的典型的软 X 射线高次谐波光谱, 可以看到氖气和氦气产生的高次谐波都处于软 X 射线波段. 其中氦气产生的谐波最高能量超过碳 K 边 (284 eV) 达到了水窗波段. 通过优化光栅位置角度以及相机位置可以提高软 X 射线光谱仪的分辨率以及效率. 阿秒脉冲的获取主要取决于单原子响应 (即精确控制驱动光的时域波形), 软 X 射线波段的高次谐波需要较高的驱动光峰值功率. 在实验上用少周期短波红外驱动产生软 X 射线连续谱的现象一般表明了仅包含几个阿秒脉冲的阿秒脉冲序列结构的产生, 由于驱动光的 CEP 不稳定从而呈现出超连续谱结构. 气体、金属膜等材料在软 X 射线波段引入的色散比较小, 因此宏观的传播过程虽会引入少量的高阶色散

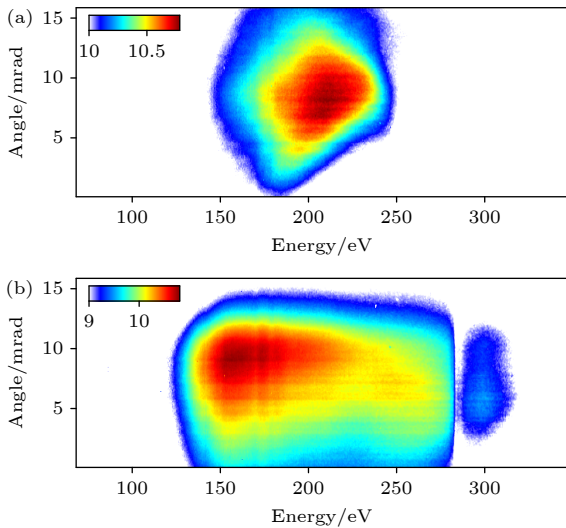


图 7 不同气体产生的软 X 射线高次谐波光谱 (a) 氖气; (b) 氦气

Fig. 7. Soft X-ray high harmonic spectra from different gases: (a) Ne; (b) He.

带来脉冲宽度一定的展宽, 但通常脉宽还是会维持在阿秒尺度, 因此我们实验中产生的软 X 射线高次谐波光源具备用于开展阿秒时间分辨谱学研究的探针条件. 图 8 为经过充氩气吸收靶的高次谐波光谱, 243 eV 附近出现的吸收线型对应氩气 $2p_{2/3}^{-1}4s$ 的 L 壳层激发^[9]. 用氩气的洛伦兹线型和高斯函数的卷积拟合^[8] 图 8(b) 中对空间积分得到的吸收线型, 从而计算出高斯型的响应函数, 最终计算出该软 X 射线光谱仪分辨率约为 334 meV.

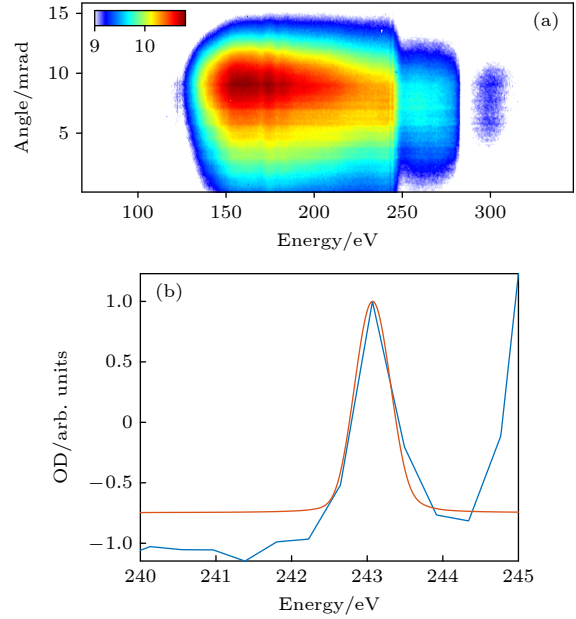


图 8 (a) 氩气的二维静态吸收谱; (b) 在氩的 $2p_{2/3}^{-1}4s$ 吸收线附近对 (a) 进行空间积分后的吸收线型, 红色实线表示利用洛伦兹线型与高斯函数卷积的拟合结果, 结果表明该光谱仪分辨率约为 344 meV

Fig. 8. (a) Two-dimensional static absorption spectrum of Ar gas; (b) spatial integrated absorption spectrum in panel (a) near $2p_{2/3}^{-1}4s$ transition line of Ar (blue), red solid line represents the fitting by convoluting the Lorentz line shape with a Gaussian function, the fitting results indicate that the spectrometer resolution is approximately 334 meV.

2.4 双波长泵浦探测光路

在以上光源产生基础上我们搭建了共线泵浦探测实验光路来实现超快过程的追踪. 传统的 Mach-Zehnder 干涉仪方案将一束高能量的激光脉冲通过分束镜分光来获得实验所需的泵浦光和探测光. 本实验中 OPA 系统输出的信号光能量较低, 因此无法直接采用传统基于单路光的分束方案. 我们使用 1440 nm 和 800 nm 双波长泵浦探测实验方案. 如图 1 所示, 少周期红外脉冲产生的水窗阿

秒光源经过轮胎镜成像到瞬态吸收气体靶上作为探测光使用. OPA 剩余 2 mJ, 27 fs, 800 nm 的近红外激光作为泵浦光经过延迟线后被导入真空腔, 利用焦距为 400 mm 的透镜进行聚焦. 泵浦光 (NIR) 和探测光 (soft X-ray) 利用带有 2 mm 小孔的平面镜进行合束, 孔镜允许软 X 射线探测光通过的同时能反射外路的近红外泵浦光, 合束后的两路光的焦点均处在瞬态吸收气体靶中央. 空心镜后同时安放一个可移动的反射镜 (图 1 中的 M1), 当该反射镜移入光路中时可以将合束后的泵浦光和探测光反射到真空腔外进行时空同步的检测及优化. 对于双波长泵浦探测方案, 无法通过干涉条纹来检测两路光的时空同步. 我们在反射出来的两路光的焦点位置放置一个切割角为 20.5° 、 $100\ \mu\text{m}$ 的 BBO 非线性晶体, 当两束光在时间和空间重合时会在 BBO 中产生合频信号 (约 500 nm 的绿光), 根据该合频信号的强弱可以优化泵浦探测光的时空同步性.

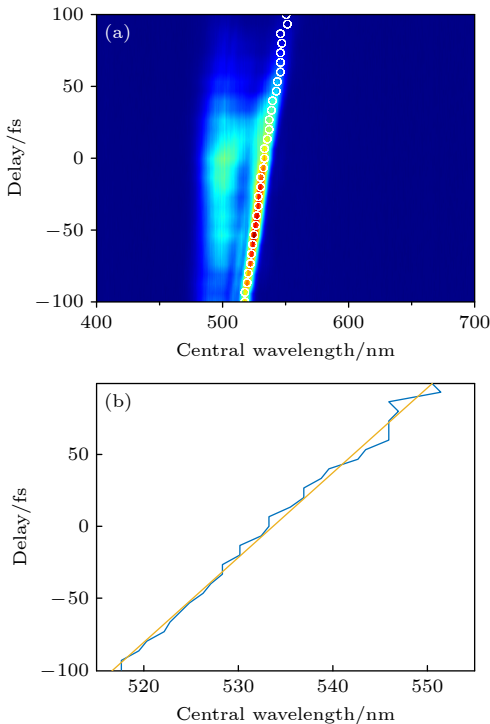


图 9 (a) 合频信号光谱随延时的变化, 白色圆圈线为合频信号中心波长位置; (b) 合频信号中心波长随延时的变化 (蓝线), 黄线是对蓝线的线性拟合

Fig. 9. (a) Sum-frequency generation spectrum as a function of delay, the white circles indicate the positions of central wavelength; (b) central wavelength of the sum-frequency generation as a function of delay (blue), yellow line represents the linear fitting of the blue line.

实验中泵浦光和探测光的相对延时稳定性是影响瞬态吸收实验分辨率的关键指标. 我们通过测量合频信号中心波长随时间的变化来表征两路光的相对延时稳定性^[21]. 图 9(a) 为光谱仪测得的合频信号的光谱随延时的变化, 合频信号能量最强处对应零延时. 可以看出合频信号的光谱随着延时的增加出现红移. 图 9(b) 给出了合频信号中心波长随着泵浦探测光相对延时的变化曲线. 可以看出, 合频信号中心波长随延时的变化近似为一个线性关系, 对曲线进行线性拟合, 获得比例系数为 5.9 fs/nm. 固定位移台位置并记录合频信号中心波长随时间的变化可以反推两路光光程差的时间稳定性.

图 10 是 3 h 的测试结果, 可以看出两路光的相对延时随着时间单调增长. 这主要是泵浦光和探测光的光程较长, 温度及光束指向的变化均能引起相对延时的抖动. 通常一次瞬态吸收实验的采集时间大概为 1 h, 在这个时间范围内两路光的相对延时可以稳定在 10 fs 以内, 可以满足大部分化学反应动力学的需求.

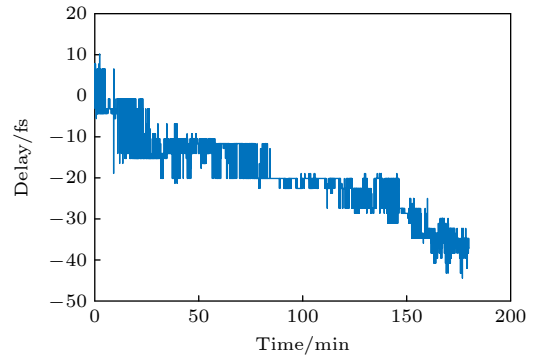


图 10 3 h 内相对延时的漂移曲线
Fig. 10. Relative delay drift over 3 h.

3 内壳层激发的瞬态吸收光谱实验结果

3.1 氫原子 L 边瞬态吸收光谱

我们利用搭建的基于软 X 射线高次谐波阿秒光源进行了瞬态吸收实验. 实验中每个延迟点 τ 处采集三张光谱, 每张光谱的积分时间为 30 s, 对三次结果取平均后获得最终的实验数据. 实验得到的吸收谱数据采用吸光度 (OD) 结果, OD 定义为 $A(\tau) = -\log_{10} \frac{I(\tau)}{I_0(\tau)}$, 其中参考光谱 I_0 为未经过吸

收介质的光谱, I 为经过介质后的光谱. 由于高次谐波是高阶的非线性过程, 实验过程中驱动光功率的微弱波动会引起软 X 射线光功率的抖动, 因此原理上应该在每个延迟点都采集一个参考光谱, 降低了实验采集效率. 另外, I_0 也可以直接通过对每一个延迟点上的 I 进行低通滤波来重建, 该方法已被证实可以有效消除实验过程中软 X 射线光源强度的波动带来的影响 [25], 这也是我们在实验中采取的方案. 图 11 为氦原子的瞬态吸收实验结果, 负延时表示近红外激光在软 X 射线之前到达. 对于远离零延时的区间 ($\tau < -40$ fs 或 $\tau > 40$ fs), 软 X 射线和近红外脉冲在时间上很好地分开, 吸收光谱中可以清晰地观察到氦原子 L_{1-} 和 $L_{2,3}$ 的吸收边. 当软 X 射线和近红外脉冲重合时, $2p_{3/2}^{-1}4s$, $2p_{3/2}^{-1}5s/3d$ 和 $2p_{1/2}^{-1}5s/3d$ 态的吸收线位置由于交流斯塔克效应 (AC Stark effect) 均发生了微小的蓝移, 同时由于近红外光的缀饰作用, 这些态的吸光度下降, 这一结果与 Barreau 等 [7] 报道的结果相符. 从图 11 中分别提取 $2p_{3/2}^{-1}4s$, $2p_{3/2}^{-1}5s/3d$ 和 $2p_{1/2}^{-1}5s/3d$ 态吸收峰的强度随软 X 射线和近红外延迟的变化曲线, 结果如图 12 所示. 用高斯函数对图 12 中的三条曲线进行拟合给出的时间宽度均在 20 fs 以内, 这也表明我们实验的时间分辨率在 fs 量级. 下一步我们希望引入干涉仪锁定系统进一步提升延时位移系统的时间稳定性以获得更高的时间分辨率, 探究更快的分子动力学过程.

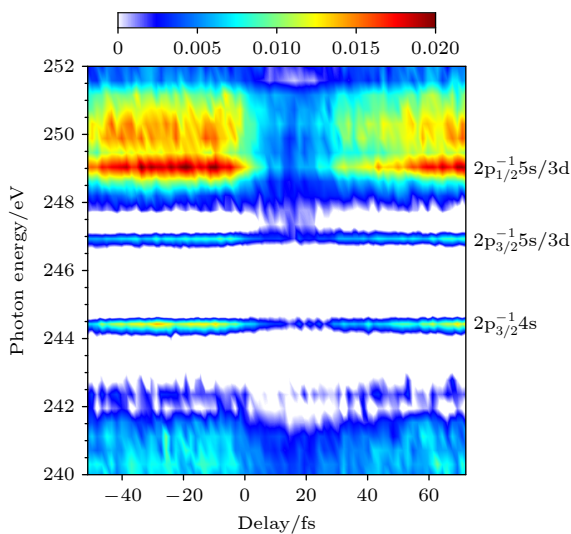


图 11 氦原子的瞬态吸收实验结果

Fig. 11. Experimental results of transient absorption of helium atoms.

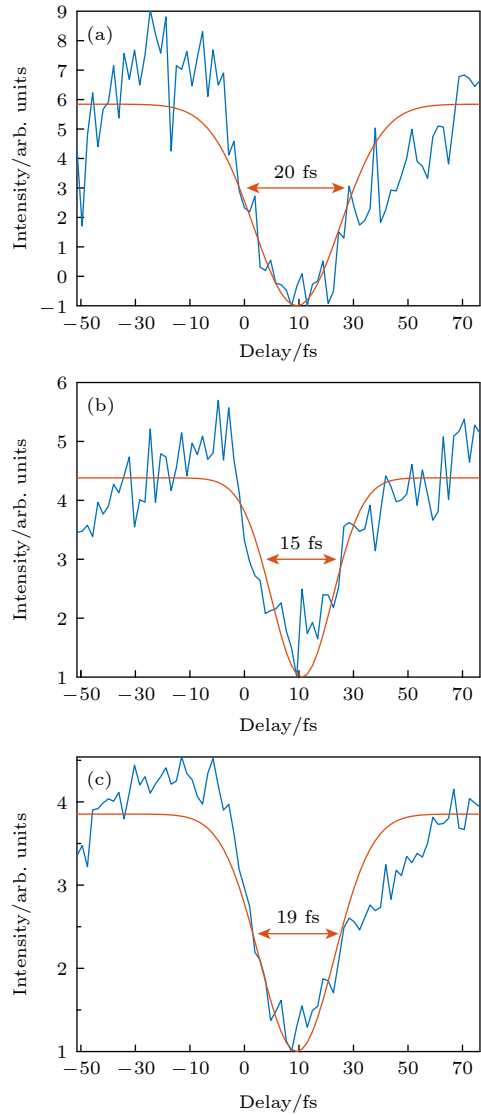


图 12 吸收峰 $2p_{2/3}^{-1}4s$ (a), $2p_{2/3}^{-1}5s/3d$ (b) 和 $2p_{1/3}^{-1}5s/3d$ (c) 的强度随延迟的变化, 其中蓝色实线为实验数据, 红线为高斯拟合结果

Fig. 12. Intensity of the absorption peak $2p_{2/3}^{-1}4s$ (a), $2p_{2/3}^{-1}5s/3d$ (b) and $2p_{1/3}^{-1}5s/3d$ (c) as a function of delay. The solid blue lines are the measured results, and the red lines represent the Gaussian fitting.

3.2 CO₂ 碳 K 边瞬态吸收光谱

我们利用高压氦气产生最大光子能量大于 300 eV 的水窗软 X 射线光源, 利用该光源作为探测光研究了 CO₂ 分子的瞬态吸收光谱, 实验结果如图 13 所示. 尽管更高光子能量的高次谐波对应更低的转化效率, 在实验吸收光谱中我们仍能在碳 K 边附近识别出 3 个主要特征吸收峰. 这 3 个吸收峰分别对应了 CO₂ 分子中碳原子的 $1s$ 电子的激发: C $1s \rightarrow \pi^*$ (290 eV), C $1s \rightarrow 3s$ (292 eV) 和 C $1s \rightarrow 3p$ (294.5 eV).

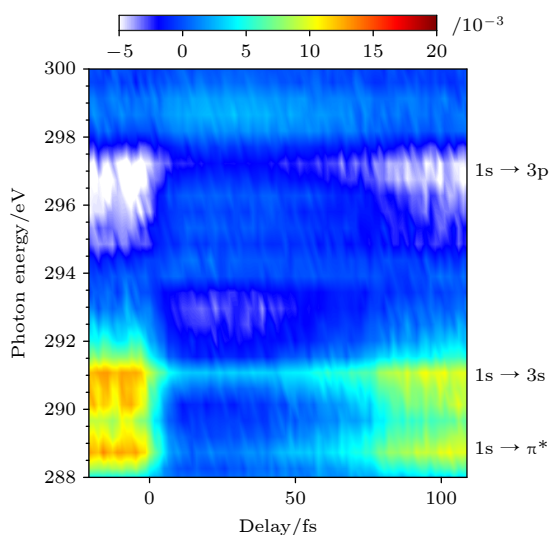
图 13 CO₂ 的瞬态吸收实验结果

Fig. 13. Experimental results of transient absorption of CO₂.

4 结 论

利用中等脉冲能量 (<4.5 mJ) 的飞秒激光作为驱动源, 我们设计并搭建了一套基于水窗高次谐波阿秒光源的瞬态吸收光谱装置. 该装置由少周期短波红外激光、水窗高次谐波阿秒光源、双波长干涉仪及软 X 射线光谱仪等关键部分组成. 其中整套装置结构紧凑, 运行维护简单. 结合光参量放大技术及空芯光纤脉冲压缩技术我们获得了中心波长 1530 nm, 脉冲能量 400 μ J, 脉冲宽度为 16.5 fs 的少周期短波红外脉冲. 利用该少周期脉冲与自制的高压氦气靶相互作用产生了光子能量大于 300 eV 的软 X 射线高次谐波阿秒光源. 采用双波长实验方案实现了泵浦探测光路的时空同步, 1 h 内时间稳定性优于 10 fs. 实验中自制的 X 射线谱仪的光谱分辨率约为 334 meV@243 eV. 利用该装置初步开展了氩气、二氧化碳等原子分子气体的瞬态吸收光谱实验, 结果表明, 该装置在能量分辨率、时间分辨率及光谱范围上满足原子分子内壳层电子激发过程相关的动力学研究.

参考文献

- [1] Goulielmakis E, Loh Z H, Wirth A, Santra R, Rohringer N, Yakovlev V S, Zherebtsov S, Pfeifer T, Azzeer A M, Kling M F, Leone S R, Krausz F 2010 *Nature* **466** 739
- [2] Schultze M, Ramasesha K, Pemmaraju C, Sato S, Whitmore

- D, Gandman A, Prell J S, Borja L J, Prendergast D, Yabana K, Neumark D M, Leone S R 2014 *Science* **346** 1348
- [3] Lucchini M, Sato S A, Ludwig A, Herrmann J, Volkov M, Kasmi L, Shinohara Y, Yabana K, Gallmann L, Keller U 2016 *Science* **353** 916
- [4] Lysenko S, Rua A, Vikhnin V, Jimenez J, Fernandez F, Liu H 2006 *Appl. Surf. Sci.* **252** 5512
- [5] Zhang G P, Hübner W 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 3025
- [6] Pertot Y, Schmidt C, Matthews M, Chauvet A, Huppert M, Svoboda V, von Conta A, Tehlar A, Baykusheva D, Wolf J P, Wörner H J 2017 *Science* **355** 264
- [7] Barreau L, Ross A D, Garg S, Kraus P M, Neumark D M, Leone S R 2020 *Sci. Rep.* **10** 5773
- [8] Zinchenko K S, Ardana-Lamas F, Lanfaloni V U, Luu T T, Pertot Y, Huppert M, Wörner H J 2023 *Sci. Rep.* **13** 3059
- [9] Chew A, Douguet N, Cariker C, Li J, Lindroth E, Ren X, Yin Y, Argenti L, Hill W T, Chang Z 2018 *Phys. Rev. A* **97** 031407
- [10] Saito N, Sannohe H, Ishii N, Kanai T, Kosugi N, Wu Y, Chew A, Han S, Chang Z, Itatani J 2019 *Optica* **6** 1542
- [11] Saito N, Douguet N, Sannohe H, Ishii N, Kanai T, Wu Y, Chew A, Han S, Schneider B I, Olsen J, Argenti L, Chang Z, Itatani J 2021 *Phys. Rev. Res.* **3** 043222
- [12] Zinchenko K S, Ardana-Lamas F, Seidu I, Neville S P, van der Veen J, Lanfaloni V U, Schuurman M S, Wörner H J 2021 *Science* **371** 489
- [13] Li J, Ren X, Yin Y, Zhao K, Chew A, Cheng Y, Cunningham E, Wang Y, Hu S, Wu Y, Chini M, Chang Z 2017 *Nat. Commun.* **8** 186
- [14] Smith A D, Balčiūnas T, Chang Y P, Schmidt C, Zinchenko K, Nunes F B, Rossi E, Svoboda V, Yin Z, Wolf J P, Wörner H J 2020 *J. Phys. Chem. Lett.* **11** 1981
- [15] Van Kuiken B E, Cho H, Hong K, Khalil M, Schoenlein R W, Kim T K, Huse N 2016 *J. Phys. Chem. Lett.* **7** 465
- [16] Garratt D, Misiekis L, Wood D, Larsen E W, Matthews M, Alexander O, Ye P, Jarosch S, Ferchaud C, Strüber C, Johnson A S, Bakulin A A, Penfold T J, Marangos J P 2022 *Nat. Commun.* **13** 3414
- [17] Sekikawa T, Saito N, Kurimoto Y, Ishii N, Mizuno T, Kanai T, Itatani J, Saita K, Taketsugu T 2023 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **25** 8497
- [18] Bhattacharjee A, Pemmaraju C D, Schnorr K, Attar A R, Leone S R 2017 *J. Am. Chem. Soc.* **139** 16576
- [19] Bhattacharjee A, Leone S R 2018 *Acc. Chem. Res.* **51** 3203
- [20] Scutelnic V, Tsuru S, Pápai M, Yang Z, Epshtein M, Xue T, Haugen E, Kobayashi Y, Krylov A I, Møller K B, Coriani S, Leone S R 2021 *Nat. Commun.* **12** 5003
- [21] Lee J P, Avni T, Alexander O, Maimaris M, Ning H, Bakulin A A, Burden P G, Moutoulas E, Georgiadou D G, Brahms C, Travers J C, Marangos J P, Ferchaud C 2024 *Optica* **11** 1320
- [22] Teichmann S M, Silva F, Cousin S L, Hemmer M, Biegert J 2016 *Nat. Commun.* **7** 11493
- [23] Popmintchev T, Chen M C, Bahabad A, Gerrity M, Sidorenko P, Cohen O, Christov I P, Murnane M M, Kapteyn H C 2009 *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* **106** 10516
- [24] Pupeikis J, Chevreauil P A, Bigler N, Gallmann L, Phillips C R, Keller U 2020 *Optica* **7** 168
- [25] Ott C, Kaldun A, Argenti L, Raith P, Meyer K, Laux M, Zhang Y, Blättermann A, Hagstötz S, Ding T, Heck R, Madroño J, Martín F, Pfeifer T 2014 *Nature* **516** 374

SPECIAL TOPIC—Instrumentation and metrology for ultrafast atomic and molecular spectroscopy

Apparatus for transient absorption spectroscopy based on water-window high-order harmonic attosecond light sources*

DENG Yimin^{1) #} ZHANG Yu^{1) #} LU Peixiang²⁾ CAO Wei^{1) †}¹⁾ (*School of Physics, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, China*)²⁾ (*Wuhan National Laboratory for Optoelectronics, Wuhan 430074, China*)

(Received 25 April 2025; revised manuscript received 12 May 2025)

Abstract

Transient absorption spectroscopy using soft X-ray coherent light sources as ultrafast probes holds significant potential applications in chemistry, biology, and materials science. This article presents the design of a transient absorption apparatus based on desktop soft X-ray light sources. A commercial femtosecond laser system (4.4 mJ, 25 fs, 800 nm, 1 kHz) drives an optical parametric amplifier, generating a 900 μ J, 28 fs, 1440 nm short-wavelength infrared (SWIR) pulse. This SWIR pulse is spectrally broadened and temporally compressed into a few-cycle pulse (400 μ J, 16.5 fs, 1530 nm) by a hollow-core fiber compressor. Then, few-cycle SWIR pulse drives the generation of attosecond soft X-ray high-order harmonic radiation, with the maximum photon energy extending into the water window region (>300 eV). The spectral resolution of the soft X-ray spectrometer is determined to be 334 meV at 243 eV. The remaining 800 nm pump pulse from the OPA system is combined with the high-order harmonic soft X-ray probe by using a hole mirror, forming a Mach-Zehnder interferometer with a time jitter of less than 10 fs during the one-hour data acquisition. This setup demonstrates the feasibility of performing time-resolved soft X-ray spectroscopy in a compact experimental configuration. Preliminary studies of transient absorption near the argon L-edge and carbon K-edge are conducted, demonstrating that this system can be used as a powerful tool for element-specific, time-resolved, and transition-channel-resolved investigations of electron dynamics.

Keywords: high order harmonics, soft X-ray, transient absorption, water window**PACS:** 32.30.-r, 32.80.-t, 33.20.Xx, 42.65.Re**DOI:** [10.7498/aps.74.20250550](https://doi.org/10.7498/aps.74.20250550)**CSTR:** [32037.14.aps.74.20250550](https://cstr.cn/32037.14.aps.74.20250550)

* Project supported by the the National Key R&D Program of China (Grant Nos. 2023YFA1406800, 2024YFE0205800), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 12274158, 12021004), and the Open Fund Project of Hubei Key Laboratory of Optical Information and Pattern Recognition of Wuhan Institute of Technology, China (Grant No. 202304).

These authors contributed equally.

† Corresponding author. E-mail: weicao@hust.edu.cn

基于水窗高次谐波阿秒光源的瞬态吸收光谱装置

邓意民 张煜 陆培祥 曹伟

Apparatus for transient absorption spectroscopy based on water–window high–order harmonic attosecond light sources

DENG Yimin ZHANG Yu LU Peixiang CAO Wei

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 74, 153201 (2025) DOI: 10.7498/aps.74.20250550

CSTR: 32037.14.aps.74.20250550

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250550>

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

基于高次谐波X射线光源的三维纳米相干衍射成像技术

Three–dimensional nano–coherent diffraction imaging technology based on high order harmonic X–ray sources

物理学报. 2022, 71(16): 164205 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220976>

$-\text{Ga}_2\text{O}_3$ 晶体本征缺陷诱导的宽带超快光生载流子动力学

Broadband ultrafast photogenerated carrier dynamics induced by intrinsic defects in $-\text{Ga}_2\text{O}_3$

物理学报. 2023, 72(21): 214202 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20231173>

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>

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>

极性分子CO高次谐波产生过程中的不对称性

Asymmetry in high–order harmonic generation of polar molecule CO

物理学报. 2022, 71(23): 234204 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221714>

H离子团簇高次谐波平台展宽与团簇膨胀

High–order harmonic platform extension and cluster expansion of H ion cluster

物理学报. 2023, 72(21): 214203 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230534>