

## 桌面式极紫外高次谐波光源的产生及模拟\*

赵蒙龙<sup>1)2)3)</sup> 于尧<sup>3)</sup> 闫鹏宇<sup>2)</sup> 任百惠<sup>2)3)</sup> 刘立<sup>2)3)</sup>孟胜<sup>2)3)</sup> 曾敏<sup>1)†</sup> 张鹏举<sup>2)3)‡</sup>

1) (华南理工大学机械与汽车工程学院, 广州 510641)

2) (中国科学院物理研究所, 北京凝聚态物理国家研究中心, 北京 100190)

3) (松山湖材料实验室, 东莞 523808)

(2026年1月30日收到; 2026年3月6日收到修改稿)

极紫外高次谐波光源是探究超快电子动力学过程的重要工具, 在阿秒及飞秒物理、化学等研究中得到了广泛关注. 本文围绕桌面式高次谐波产生过程的实验特性及其物理机制开展了实验与数值模拟研究. 通过调控气体压强和驱动激光功率, 在有限相互作用长度条件下实现了有效的宏观相位匹配, 显著地增强了谐波辐射强度, 获得了光子能量覆盖 20—40 eV 的极紫外高次谐波辐射. 结合气体介质中谐波场的宏观传播模型, 对高次谐波的产生过程进行了模拟, 通过对计算与实验观测结果比较, 揭示了谐波增强的物理机制, 表明该差分有限气室结构能够实现可重复的 XUV 谐波输出. 上述研究为桌面式极紫外高次谐波光源在超快物理、化学研究中的推广提供了实验与理论依据.

**关键词:** 极紫外光源, 高次谐波产生, 桌面式装置, 相位匹配

**DOI:** 10.7498/aps.75.20260167

**CSTR:** 32037.14.aps.75.20260167

## 1 引言

极紫外 (extreme ultraviolet, XUV) 高次谐波在超快光谱与电子动力学研究中具有重要应用价值, 已被广泛用于原子、分子、液体及固体体系中非线性响应、超快电荷迁移以及相关物理过程的研究<sup>[1-4]</sup>. 在阿秒脉冲生成<sup>[5]</sup>、时间分辨光电子能谱<sup>[6,7]</sup>、极紫外瞬态吸收谱<sup>[8]</sup>等实验中, 稳定且可重复的 XUV 光源是开展超快激发态动力学实验研究的基础条件之一.

基于飞秒激光驱动的高次谐波产生 (high-order harmonic generation, HHG) 过程能够通过强场非线性相互作用将红外或可见波段激光的频

率转换至 XUV 波段, 从而在实验室尺度内获得超短脉冲的极紫外辐射<sup>[9-11]</sup>. 在气体介质中, 高次谐波的产生过程由单原子非线性响应与宏观传播效应共同决定. 单原子层面上, 电子先通过隧穿电离进入连续态, 再在激光场中加速获得动能, 最终复合辐射高次谐波光子, 其特性与原子电离势及电子在强场中的动力学过程密切相关<sup>[12-14]</sup>. 宏观层面上, 不同位置原子辐射场的相干叠加受到相位匹配条件的制约. 相位失配来源包括中性原子与等离子体色散、Gouy 相位以及原子偶极相位等因素, 其相对贡献取决于气体种类、驱动激光强度及相互作用区域结构等实验条件<sup>[15-17]</sup>. 宏观相位匹配条件的实现对于增强高次谐波辐射强度及拓展有效光谱范围具有重要影响, 相关理论与实验研究已对此

\* 国家自然科学基金 (批准号: 12474261, 12450401) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: memzeng@scut.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: pengju.zhang@iphy.ac.cn

进行了系统分析<sup>[18,19]</sup>.

已有研究表明,不同稀有气体在高次谐波产生过程中表现出显著的差异.由于不同气体具有不同的电离势,在相同驱动激光条件下其可支持的谐波截止能量存在差异.同时,不同气体的隧穿电离概率不同,导致参与再碰撞过程的电子数目不同,影响高次谐波的光谱分布和辐射效率.Nefedova等<sup>[20]</sup>通过对氙、氪和氩气中高次谐波光谱特性的实验与理论研究,揭示了单原子偶极相位与等离子体色散在不同气体中对谐波频谱演化的不同作用机制,并指出气体介质特性在宏观相位匹配和谐波光谱形成中的重要作用.

随着 HHG 技术的发展,基于 HHG 的 XUV 光源已在多种实验中得到应用.在高光子能量和宽光谱覆盖方面,Naranjo-Montoya等<sup>[21]</sup>利用中心波长为 1550 nm 的飞秒激光驱动稀有气体靶材,获得了覆盖 70—350 eV 的宽带高次谐波辐射,并成功应用于软 X 射线吸收谱实验.在高重复频率和稳定输出方面,Pupeza等<sup>[22]</sup>构建了紧凑型高次谐波 XUV 光源,在约 100 eV 光子能量范围内实现了稳定输出,并展示了其在光谱学实验中的应用潜力.此外,基于高次谐波产生的 XUV 光源还被成功应用于相干成像与光场调控实验中<sup>[23,24]</sup>.

为改善吸收限制和宏观相位匹配条件,已有研究工作提出通过引入气体密度梯度或空间调制结构来优化高次谐波输出.例如,2002 年 Wang 等<sup>[25]</sup>分析了非均匀气体分布对谐波传播和相位匹配的影响.后来,Tao等<sup>[26]</sup>与 Auguste 等<sup>[27]</sup>分别从时域模型与密度调制角度研究了准相位匹配机制,表明空间密度调制有助于提升特定阶次谐波的输出效率.2021 年,Major 和 Varjú<sup>[28]</sup>在吸收气体模型中指出,通过设计沿传播方向变化的压强分布,可在有限长度内提高谐波通量并优化相位匹配条件.这些研究表明,在吸收介质中通过有限作用长度或压强梯度调控,可以在一定条件下改善宏观相位匹配并提升谐波输出效率.然而,在紧凑桌面装置中实现结构简单、稳定且易调控的非均匀气体分布方案仍具有重要的实验意义.

基于上述研究背景,并考虑到便携式 XUV 光源极大的应用前景,本文构建了一种基于差分有限气室结构的紧凑型 XUV 高次谐波实验系统.在有限相互作用长度条件下,通过调节气体压强和飞秒驱动激光功率,实现了有效的宏观相位匹配.实验

中以氩气和氙气作为靶气体,获得了光子能量覆盖 20—40 eV 范围的稳定 XUV 高次谐波输出.在慢变包络近似和傍轴近似条件下,结合气体介质中谐波场的宏观传播模型,模拟了高次谐波的产生过程,为理解桌面式便携 XUV 光源的工作特性提供了参考.

## 2 实验装置

实验装置的整体结构如图 1 所示,飞秒激光脉冲经透镜聚焦后进入 HHG 装置,与气体相互作用产生高次谐波辐射.产生的 XUV 光经过轮胎镜与衍射光栅实现空间分离,并在微通道板 (microchannel plate, MCP) 和荧光屏上成像,最后由相机对其形貌进行记录.

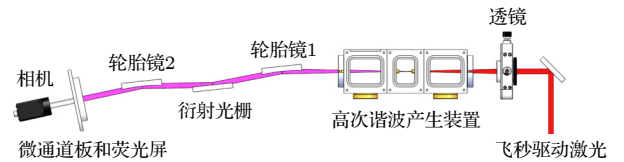


图 1 实验装置示意图

Fig. 1. Schematic diagram of the experimental setup.

### 2.1 飞秒近红外激光

钛蓝宝石固体飞秒激光器因其超短脉冲宽度和高峰值功率的优势,被广泛用作 HHG 的驱动光源.实验中使用的钛宝石激光器可输出中心波长为 800 nm、脉宽为 87 fs、重复频率为 2 kHz 的激光脉冲.透镜聚焦后的焦斑直径约为 153  $\mu\text{m}$ ,焦斑处的峰值功率密度约为  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> 量级,足以驱动气体 HHG.驱动激光光谱及聚焦光斑如图 2 所示.

### 2.2 高次谐波产生装置

气体 HHG 是一种强场非线性光学过程,其物理机制可由三步模型描述:首先,电子在强激光场作用下通过隧穿电离进入连续态.然后电子在振荡电场中被加速并获得动能.最后若电子返回并与母核发生复合,则以光子的形式释放其动能,从而产生高次谐波辐射.谐波的截止能量可表示为

$$E_{\text{cutoff}} = I_p + 3.17U_p, \quad (1)$$

其中  $I_p$  为原子电离势;  $U_p = e^2 E_0^2 / (4m\omega^2)$  为电子在振荡电场中的有质动力能,  $e$  是电子电荷,  $E_0^2$  为激光电场幅值,  $m$  为电子质量,  $\omega$  为激光角频率<sup>[29]</sup>.

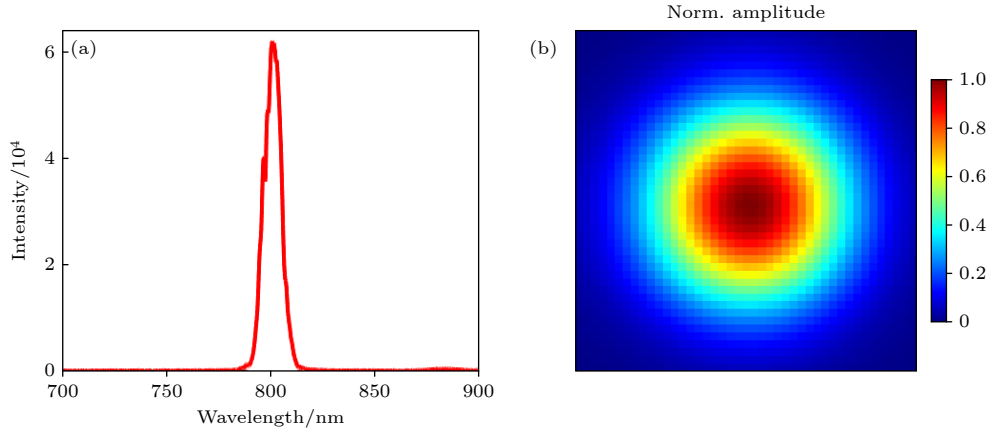


图 2 (a) 驱动激光光谱, 中心波长为 800 nm, 纵坐标为积分光强; (b) 聚焦光斑, 直径约为 153  $\mu\text{m}$ , 光强已归一化处理  
 Fig. 2. (a) Spectrum of the driving laser with a central wavelength of 800 nm, and the vertical axis represents the integrated intensity; (b) focused laser spot with a diameter of approximately 153  $\mu\text{m}$ ; the intensity has been normalized.

气体 HHG 的转换效率较低 ( $10^{-7}$ — $10^{-6}$ ), 主要原因是谐波在传播过程中的相位失配. 实现高效 HHG 的关键在于满足基频光与高次谐波在介质中具有相同的相速度, 即实现相位匹配条件. 只有当大量原子辐射的谐波在传播过程中保持相位一致时, 才能实现宏观强度的有效积累.

基于几何构型, 气体 HHG 装置主要包括三种类型: 瞬态气体射流<sup>[30]</sup>、中等长度的有限气室<sup>[31]</sup>以及可提供长相互作用区的半无限气室<sup>[32]</sup>. 其中, 有限气室结构紧凑, 通过精确控制驱动激光焦点位置, 可调节光场与气体介质的空间重叠体积, 同时利用 Gouy 相移调制相位分布, 从而在针孔附近形成局部相位匹配窗口, 实现谐波场的相干叠加和强度增强. 与均匀长气室结构相比, 差分有限气室在针孔附近形成有限长度的高压区域, 使有效相互作用长度更接近相干长度, 从而减小因过长传播导致的相消干涉. 同时, 谐波在生成后迅速进入低压区域传播, 可降低高压气体中的再吸收以及等离子体沿传播方向的累积效应. 这种有限长度与压强突变的空间调控方式, 有助于在局域区域内形成更有利的宏观相位匹配条件. 本实验采用差分有限气室结构, 如图 3 所示. 聚焦后的驱动激光通过入射窗进入气室, 焦点位于高压区的烧蚀微孔附近, 并与稀有气体相互作用产生高次谐波. 谐波经小孔 2 进入低压区 2, 从而有效地抑制其在传播过程中的再吸收, 同时保证后续真空系统的稳定运行. 实验测量了氮气和氙气在不同气压和激光功率条件下的高次谐波能谱, 并结合模拟结果分析了该装置的输出特性及可重复性.

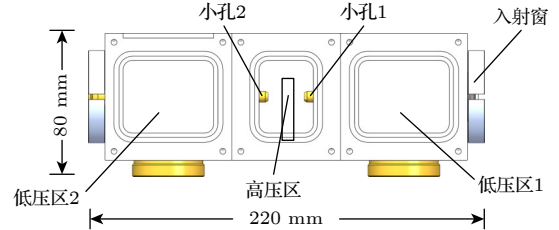


图 3 差分有限气室示意图, 长 220 mm, 宽 80 mm. 高压区为可充气的金属薄管, 激光聚焦后烧蚀微孔并与稀有气体相互作用, 产生高次谐波  
 Fig. 3. Schematic diagram of the differential finite gas cell, with a length of 220 mm and a width of 80 mm. The high-pressure region is a gas-filled metal thin tube, where the focused laser ablates a microhole and interacts with the noble gas to generate high-order harmonics.

### 2.3 光束稳定控制系统

在紧聚焦模式下, 驱动激光的空间位置对 HHG 效率具有重要影响. 为减小空气扰动、机械振动及温度漂移等因素对光路稳定性的影响, 实验采用德国 MRC Systems 公司的光束稳定控制系统对驱动激光进行稳定控制, 如图 4 所示. 两个压电镜分别对入射光斑位置及光束指向进行实时校正, 两个探测器利用透过银镜的激光进行光束稳定反馈.

为验证光束稳定控制系统的性能, 在距光源约 7 m 处使用相机对驱动激光光斑中心位置进行长时间记录. 图 5 为相机记录的光斑中心 3 h 的位置稳定情况. 以初始位置为参考计算标准差,  $x$  方向偏移的标准差为 37.9  $\mu\text{m}$ , 光束指向偏移小于 5.4  $\mu\text{rad}$ ,  $y$  方向偏移的标准差为 102.1  $\mu\text{m}$ , 光束指向偏移小于 14.6  $\mu\text{rad}$ , 能够满足气体 HHG 实验对光束稳定性的要求.

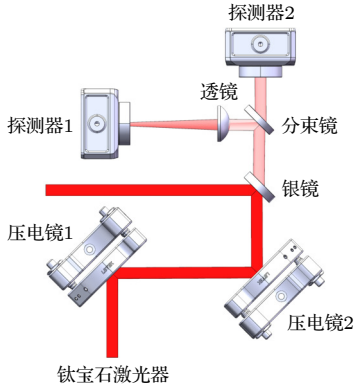


图 4 光束稳定控制系统

Fig. 4. Beam stabilization control system.

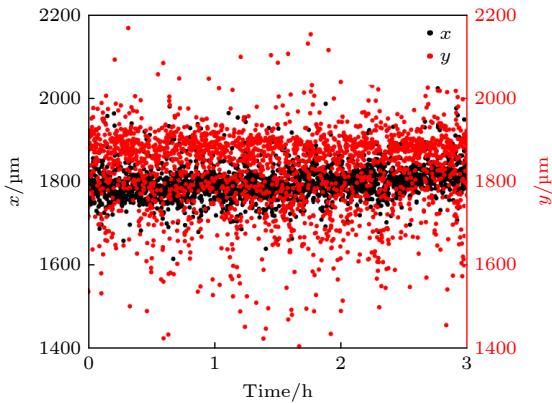


图 5 驱动激光光斑中心的位置稳定情况. 左侧纵坐标 (黑色) 表示  $x$  方向偏移, 右侧纵坐标 (红色) 表示  $y$  方向偏移  
Fig. 5. Stability of the driving laser spot center position. The left vertical axis (black curve) represents the displacement along the  $x$  direction, and the right vertical axis (red curve) represents the displacement along the  $y$  direction.

## 2.4 XUV 光源检测

为获得更高的 XUV 光源输出, 需尽可能提高谐波在光路中的传输效率<sup>[33]</sup>. 发散的 XUV 点光源首先经过轮胎镜 1 后准直为平行光束, 随后被衍射光栅分散为不同阶次谐波, 再由轮胎镜 2 聚焦至

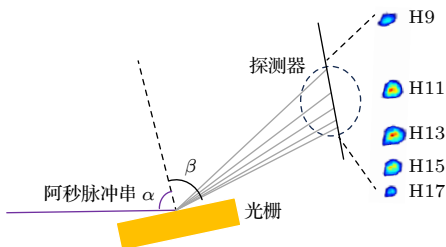


图 6 衍射光栅分光原理示意图.  $\alpha$  为入射角,  $\beta$  为各高阶谐波的衍射角

Fig. 6. Schematic diagram of the diffraction grating principle.  $\alpha$  denotes the incidence angle, and  $\beta$  denotes the diffraction angles of the various high-order harmonics.

MCP 的不同空间位置, 其在荧光屏上的成像由相机记录. 在掠入射条件下, 衍射光栅的分光原理遵循经典光栅方程:

$$M\lambda = d(\sin \alpha + \sin \beta), \quad (2)$$

其中  $M$  为衍射级次;  $\lambda$  为波长;  $d$  为光栅常数;  $\alpha$  和  $\beta$  分别为入射角和衍射角, 如图 6 所示.

## 3 实验结果分析

为分析 XUV 光源的输出特性, 利用 MCP 与荧光屏对高次谐波衍射光谱进行成像. 通过分析相机采集的图像强度, 可获得各阶谐波的相对强度分布, 并据此优化气体压强与驱动激光功率以实现最佳相位匹配条件. 图 7 展示了在气体压强为 20 mbar ( $1 \text{ mbar} = 100 \text{ Pa}$ ) 时, 不同惰性气体在不同驱动激光功率条件下产生的高次谐波谱, 当驱动功率从 200 mW 升至 700 mW 时, 谐波强度增强了 4—5 倍. 可见随着原子电离势的降低, 从氦气到氙气产生的谐波截止能量依次降低. 在驱动激光功率为 200 mW 时, 由于氦气电离势较高, 根据三步模型中的隧穿电离机制, 其隧穿电离概率较低, 从而

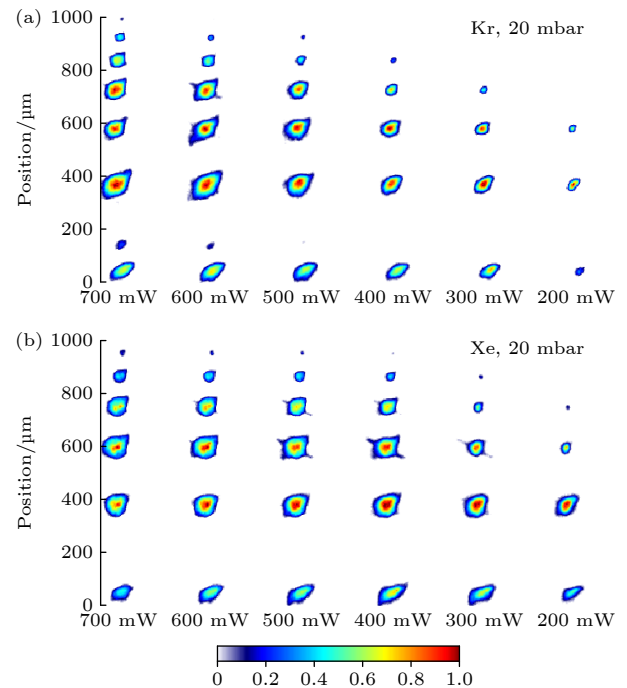


图 7 (a) 氦气和 (b) 氙气在气体压强为 20 mbar 时的高次谐波谱. 横坐标为驱动激光功率, 光强已归一化处理

Fig. 7. High-order harmonic spectra of (a) krypton and (b) xenon at a gas pressure of 20 mbar. The horizontal axis represents the driving laser power, and the intensities have been normalized.

减少了参与后续加速及再碰撞复合过程的电子数目, 导致高次谐波产率降低. 而电离势较低的氙气更易发生隧穿电离, 因此表现出更强的高阶谐波信号. 随着驱动激光功率的提升, 氙气产生的谐波强度显著增强. 而当功率从 400 mW 增至 700 mW 时, 氙气的谐波强度未出现明显提升. 根据 Ammosov-Delone-Krainov (ADK) 隧穿电离模型<sup>[34]</sup>, 在更高的激光场强下氙气的瞬时电离率显著地提高, 并逐渐进入接近电离饱和的区间, 使介质中的中性原子大幅减少. 由此导致的等离子体密度上升会增强等离子体色散项并加剧宏观相位失配, 从而抑制谐波强度的进一步增长.

图 8 展示了不同气体压强条件下的高次谐波谱变化. 随着气体压强增加, 中性原子色散和等离子体色散增强, 使得相干长度缩短. 当介质长度超过相干长度时, 不同位置产生的谐波发生相消干涉, 导致信号下降. 低阶谐波具有较长的相干长度, 其强度随压强增加而持续增强, 直至在较高压强下因相位失配而减弱. 通过优化气体压强, 可使特定阶次谐波强度提升约 1 倍. 通过更换气体介质、调节气体压强及驱动激光功率, 可得到光子能量范围为 20—40 eV 的 XUV 光源.

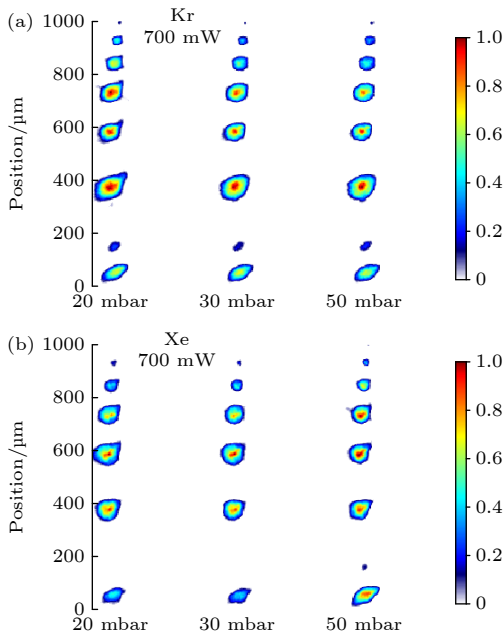


图 8 (a) 氙气和 (b) 氪气在驱动激光功率为 700 mW 时的高次谐波谱. 横坐标为气体压强, 光强已归一化处理

Fig. 8. High-order harmonic spectra of (a) krypton and (b) xenon at a driving laser power of 700 mW. The horizontal axis represents the gas pressure, and the intensities have been normalized.

为了获得较高信噪比的谐波信号并评估系统运行稳定性, 测量了驱动激光功率为 600 mW, 靶气体为 50 mbar 氙气条件下 H11 谐波强度在 15 min 内的变化. 结果表明在该时间尺度内谐波输出保持稳定, 其相对标准偏差 (relative standard deviation, RSD) 约为 3%. 因此, 经多次实验表明该差分有限气室结构能够实现可重复的 XUV 谐波输出.

#### 4 高次谐波产生过程模拟

在有限气室中, 激光与气体介质的相互作用区域较大, 必须考虑谐波在宏观传播过程中所受到的相位匹配效应. 在慢变包络近似和傍轴近似条件下, 并忽略横向衍射效应, 谐波的宏观传播过程可沿传播轴方向由 (3) 式描述<sup>[35]</sup>:

$$\begin{aligned} & \frac{\partial^2}{\partial z^2} E_q(\omega, z) + \frac{\omega^2}{c^2} n(\omega_q, z)^2 E_q(\omega, z) \\ & = -4\pi \frac{\omega^2}{c^2} P_q^{\text{nl}}(E_F(z), \omega), \end{aligned} \quad (3)$$

其中  $E_q(\omega, z)$  是  $q$  阶谐波的频域表示,  $P_q^{\text{nl}}$  是由基频激光场  $E_F(z)$  诱导的非线性极化率,  $n(\omega_q)$  为折射率.

气体压强变化会显著地影响介质的折射率, 因此对相位匹配条件具有重要调制作用. 在有限气体腔室结构下, 假设激光沿  $z$  轴传播, 薄管放置在  $z = 0$  位置处, 则从高压区到两端真空区的压强分布可以由以下误差函数描述:

$$\begin{aligned} p(z) = & \frac{p_t - p_b}{2} \left[ \operatorname{erf}\left(\frac{z - z_{h1}}{\sigma_t}\right) - \operatorname{erf}\left(\frac{z - z_{h2}}{\sigma_t}\right) \right] \\ & + \frac{p_b}{2} \left[ \operatorname{erf}\left(\frac{z - z_{\text{in}}}{\sigma_b}\right) - \operatorname{erf}\left(\frac{z - z_{\text{out}}}{\sigma_b}\right) \right], \end{aligned} \quad (4)$$

其中  $p_t$  和  $p_b$  分别代表薄管的中心充气气压以及远离薄管出气的背景气压;  $z_{h1}$ ,  $z_{h2}$  分别是激光在薄管两端打孔的位置,  $z_{h2} - z_{h1} = d$  即薄管直径约为 2 mm;  $z_{\text{in}}$  和  $z_{\text{out}}$  分别是图 3 中小孔 1 和小孔 2 的位置. 等式右边的第一项代表出气薄管附近的有效压强,  $\sigma_t$  决定了针孔区域的有效长度, 模拟中取值为 0.2 mm; 等式右边第二项代表从高压区到真空区压强的变化, 体现了差分气孔的作用, 模拟中  $\sigma_b$  取值为 4 mm.

对于大多数惰性气体, 在中性介质中通常是正常色散, 即频率越高折射率越大. 并且这种色散需要由等离子体以及 Gouy 相移来补偿, 中性气体产

生的相位失配可以表示为

$$\Delta k_{\text{neu}} = qk_0 (n_{\text{F}} - n_q). \quad (5)$$

气体的折射率  $n$  与密度  $\rho$  有关, 对于稀有气体, 折射率接近于 1, 可以写成  $n(\rho) = 1 + \delta(\rho)$ , 根据 Clausius-Mossotti 关系或简单的极化率近似,  $\delta$  与密度  $\rho$  成正比. 并且可以通过查表得到标准状态<sup>[36]</sup>下的参考折射率  $n_{\text{STP}}$  和参考密度  $\rho_{\text{ref}}$ , 那么任意密度下的折射率可以表示为

$$n(\rho) = 1 + (n_{\text{STP}} - 1) \frac{\rho}{\rho_{\text{ref}}}, \quad (6)$$

其中折射率为复数形式, 实部  $\text{Re}[n(\rho)]$  则决定了谐波传播过程中的相位失配, 而虚部  $\text{Im}[n(\rho)]$  则体现了中性原子对谐波的吸收. 在高压腔室中, 由于激光与气体的相互作用区域很短, 并且依赖于气孔的差分作用使得远离薄管的压强迅速下降, 从而使得介质对谐波的吸收很小, 谐波损耗降低. 将折射率的实部代入中性气体相位失配项后, 可进一步简化得到:

$$\Delta k_{\text{neu}} = qk_0 \frac{\rho}{\rho_{\text{ref}}} (n_{\text{F}}^{\text{STP}} - n_q^{\text{STP}}). \quad (7)$$

等离子体随频率的依赖关系可以近似表示为:  $n(\omega) \approx 1 - \omega_{\text{p}}^2/(2\omega^2)$ , 其中  $\omega_{\text{p}}$  为等离激元频率, 从而导致等离子体引起的相位失配为<sup>[37]</sup>

$$\Delta k_{\text{plasma}} \approx qk_0 \left( -\frac{\omega_{\text{p}}^2}{2\omega_0^2} \right) \left[ 1 - \frac{1}{q^2} \right]. \quad (8)$$

此外, Gouy 相移源于激光聚焦过程中的空间几何约束, 会在传播过程中引入额外的相位积累, 用以补偿中性原子色散, 其表达式为

$$\Delta k_{\text{Gouy}} = -q \frac{d\xi(z)}{dz} = -\frac{q/z_{\text{R}}}{1 + (z/z_{\text{R}})^2}. \quad (9)$$

高次谐波产生过程中, 电子经历了多个量子路径, 不同路径下电子累积的偶极相位可以由强场近似<sup>[38]</sup>来进行计算, 并且单原子层面的偶极相位与驱动光强呈近似线性关系<sup>[39]</sup>  $\phi_d^q \approx -\alpha_q I$ , 因而得到相位失配条件:

$$\Delta k_d = -\alpha_q \frac{\partial I}{\partial z}, \quad (10)$$

其中量子路径系数  $\alpha_q = \frac{\partial \phi_d^q}{\partial I}$ , 直接对应于高次谐波产生的不同量子路径(长轨道与短轨道)体现不同谐波相位对激光强度的依赖性. 系数  $\alpha_q$  的大小严格依赖于电子的动力学轨迹, 在本文的差分气室和长焦距构型中, 长轨道辐射由于具有极大的发散角, 在宏观传播过程中会被自然的空滤波效应强

烈抑制, 因此轴上宏观远场辐射由短轨道主导. 基于此, 在相位匹配计算中选取了系数  $\alpha_q = 1.5 \times 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$ <sup>[40]</sup>.

图 9—图 11 展示了氩气在有限气体腔室中宏观传播相位匹配的模拟结果, 模拟参数对应实验条件. 图 9 展示了高次谐波辐射强度对驱动激光焦点位置的显著依赖性. 最佳谐波产率主要集中在高压区烧蚀微孔附近区域. 这是由于在有限气体腔室结构中, 焦点位置不仅决定了高强度激光场与气体介质的有效重叠体积, 同时还通过 Gouy 相移直接调制相位匹配条件. 当焦点位于高压区烧蚀微孔附近时, 激光强度在介质中保持较高水平, 有利于高阶非线性极化的产生, 且该区域内较大的 Gouy 相位梯度可提供显著的负相位失配分量 ( $\Delta k_{\text{Gouy}} < 0$ ), 从而有效补偿中性原子色散引起的正相位失配 ( $\Delta k_{\text{neu}} > 0$ ). 当焦点进一步移入气室内部或移至真空区时, 由于相互作用长度变化及等离子体效应增强, 总体相位失配偏离最优条件, 谐波强度随之显著下降. 其次, 这种强的相位匹配窗口在时间域上具有瞬态特性, 由图 9 中  $z_{\text{f}} < 0$  区域能够看到明显的光谱劈裂, 谐波的瞬时频率和偶极相位有关:

$$\Delta \omega = -\alpha \frac{\partial I}{\partial t}. \quad (11)$$

系统不仅在脉冲上升沿(光强增加, 瞬时频率红移)实现了相位匹配, 在脉冲下降沿(光强减弱, 瞬时频率蓝移)同样维持了高效率发射. 这种瞬态的相位匹配将时间演化映射到了光谱域, 导致上升沿与下降沿的辐射发生叠加, 最终在宏观上表现为显著的光谱劈裂与啁啾特征.

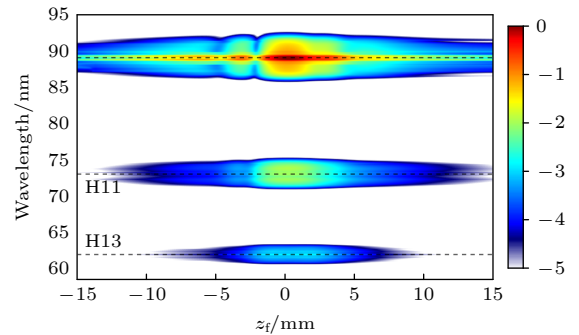


图 9 不同焦点  $z_{\text{f}}$  位置的高次谐波 (H9—H13) 光谱强度  
Fig. 9. Spectral intensity of high-order harmonics (H9—H13) at different focus positions.

沿传播轴方向的各项相位失配贡献如图 10 所示. 在本实验参数下, 中性气体色散在整个相互作用区域内通常提供正的相位失配, 其大小与局部气

体密度成正比, 而等离子体色散及 Gouy 相移均提供负的相位失配贡献. 在烧蚀微孔前后, 由于气体密度梯度和电离率变化, 各相位失配贡献发生部分抵消, 使得总相位失配  $\Delta k$  在局部区域内接近零, 从而形成局部的相位匹配区域. 该区域内相干长度  $L_{\text{coh}} = \pi/\Delta k$  增加, 使得谐波场能够通过相长干涉实现宏观强度的有效积累.

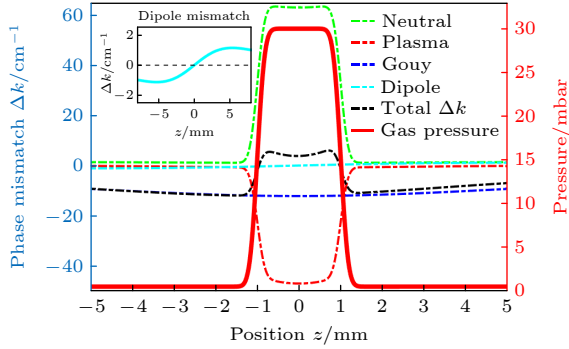


图 10 轴向相位失配. 其中虚线为各项因素导致的相位失配, 绿色、红色、蓝色、亮蓝色以及黑色分别代表中性气体色散、等离子体色散、Gouy 相移、偶极相位以及各项叠加后的总相位失配. 红色实线为模拟中采用的气压模型 (右轴). 内置图为偶极相位失配的放大图

Fig. 10. Axial phase-mismatch contributions. Dashed curves denote the individual phase-mismatch terms originating from neutral-gas dispersion, plasma dispersion, Gouy phase shift, and dipole phase. The black curve represents the total phase mismatch obtained by summing all contributions. The red solid line shows the gas-pressure profile used in the simulation (right axis). The inset presents an enlarged view of the dipole phase mismatch.

在中心波长为 800 nm、脉宽为 87 fs、平均功率为 700 mW 的驱动激光作用下, 氩气和氙气的高次谐波实验结果与模拟结果的对比如图 11 所示, 主要对比谱形及相对强度分布, 而非绝对强度. 高次谐波谱的模拟结果主要成分由短轨道贡献, 其中长轨道通过如下窗函数被抑制:

$$w(t) = \frac{1}{2} \left[ 1 - \operatorname{erf} \left( \frac{t - t_m}{\sigma} \right) \right], \quad (12)$$

模拟中取值  $\sigma = 0.02T$ , 其中  $t_m$  对应电子最大回碰动量时刻,  $T$  为基频光周期. 由于理论结果与实验测量量纲不同, 且未包含实验光路中的传输效率与损耗因素, 个别阶次的相对强度与实验存在一定差异. 然而可以看到, 在不同气体条件下, 各阶谐波的相对强度分布趋势与模拟结果整体符合较好. 这表明所采用的理论模型能够合理描述不同气体体系下谐波谱形变化特征, 同时该 HHG 装置能够在

20—40 eV 光子能范围内实现可重复的 XUV 谐波, 为后续相关实验研究提供可靠光源.

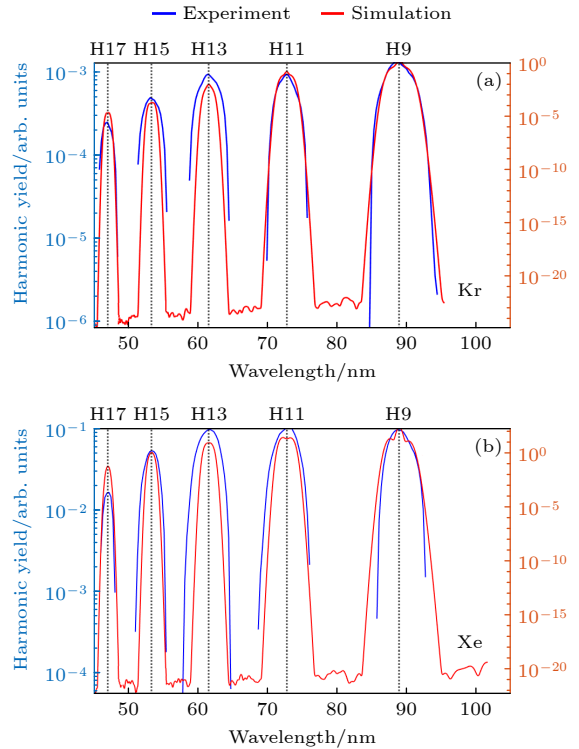


图 11 (a) 氩气和 (b) 氙气的高次谐波实验测量 (蓝色) 与模拟计算 (红色) 对比图

Fig. 11. Comparison between experimental measurements (blue) and simulations (red) of high-order harmonics in (a) krypton and (b) xenon.

## 5 结 论

本文实现了一种基于差分有限气室结构的桌面便携式极紫外高次谐波光源, 系统地研究了有限相互作用长度条件下高次谐波的输出特性及其相关物理机制. 实验结果表明, 通过合理调节气体种类、气体压强和驱动激光功率, 可在紧凑实验装置中实现较优的相位匹配条件, 从而获得具有良好重复性的极紫外高次谐波辐射, 其光子能量覆盖 20—40 eV 范围, 结合驱动光束的长期指向稳定性测试以及谐波强度的测量结果, 该系统可为后续超快谱学实验提供稳定运行的基础条件.

在不同稀有气体条件下, 高次谐波输出强度对实验参数变化表现出良好的可调性. 基于谐波场宏观传播模型的模拟结果与实验观测在谐波光谱分布及相对强度变化趋势上保持一致. 该研究为后续开展气体、液体和固体的光电子能谱等超快谱学实验提供了一种稳定、紧凑且易于调控的极紫外光源设备.

## 参考文献

- [1] Corkum P B, Krausz F 2007 *Nat. Phys.* **3** 381
- [2] 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
- [3] Ghimire S, Reis D A 2019 *Nat. Phys.* **15** 10
- [4] Cavalieri A L, Müller N, Uphues T, Yakovlev V S, Baltuška A, Horvath B, Schmidt B, Blümel L, Holzwarth R, Hendel S, Drescher M, Kleineberg U, Echenique P M, Kienberger R, Krausz F 2007 *Nature* **449** 1029
- [5] Yu S Y, Li Z, Zhong S Y, Xie B C, Teng H, Zhu J F, Wei Z Y 2025 *Chin. Phys. Lett.* **42** 100401
- [6] Schultze M, Fieß M, Karpowicz N, Gagnon J, Korbman M, Hofstetter M, Neppl S, Cavalieri A L, Komminos Y, Moursis Th, Nicolaides C A, Pazourek R, Nagele S, Feist J, Burgdörfer J, Azzeer A M, Ernstorfer R, Kienberger R, Kleineberg U, Goulielmakis E, Krausz F, Yakovlev V S 2010 *Science* **328** 1658
- [7] Zhu X X, Gao Y T, Wang Y M, Zhao K 2025 *Acta Phys. Sin.* **74** 154202 (in Chinese) [朱孝先, 高亦谈, 王一鸣, 赵昆 2025 物理学报 **74** 154202]
- [8] Wirth A, Hassan M T, Grguraš I, Gagnon J, Moulet A, Luu T T, Pabst S, Santra R, Alahmed Z A, Azzeer A M, Kling M F, Leone S R, Goulielmakis E 2011 *Science* **334** 195
- [9] Lewenstein M, Balcou P, Ivanov M Y, L'Huillier A, Corkum P B 1994 *Phys. Rev. A* **49** 2117
- [10] L'Huillier A, Balcou P 1993 *Phys. Rev. Lett.* **70** 774
- [11] Brabec T, Krausz F 2000 *Rev. Mod. Phys.* **72** 545
- [12] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [13] Song Y, Han S, Yang Y J, Guo F M 2024 *Chin. Phys. B* **33** 123201
- [14] Tao W K, Wang L, Song P, Xiao F, Wang J C, Zheng Z G, Zhao J, Wang X W, Zhao Z X 2023 *Chin. Phys. Lett.* **40** 063201
- [15] Constant E, Garzella D, Breger P, Mével E, Dorrer C, Le Blanc C, Salin F, Agostini P 1999 *Phys. Rev. Lett.* **82** 1668
- [16] Gaarde M B, Tate J L, Schafer K J 2008 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **41** 132001
- [17] Jin C, Li B, Wang K, Xu C, Tang X, Yu C, Lin C 2020 *Phys. Rev. A* **102** 033114
- [18] Tikhomirov I, Sato T, Ishikawa K L 2017 *Phys. Rev. Lett.* **118** 203202
- [19] Popmintchev T, Chen M C, Popmintchev D, Arpin P, Brown S, Ališauskas S, Andriukaitis G, Balčiūnas T, Mücke O D, Pugzlys A 2012 *Science* **336** 1287
- [20] Nefedova V E, Ciappina M F, Finke O, Albrecht M, Váček J, Kozlová M, Suárez N, Pisanty E, Lewenstein M, Nejd J 2018 *Phys. Rev. A* **98** 033414
- [21] Naranjo-Montoya O, Bridger M, Bhar R, Kalkhoff L, Schleberger M, Wende H, Tarasevitch A, Bovensiepen U 2024 *Rev. Sci. Instrum.* **95** 103001
- [22] Pupeza I, Holzberger S, Eidam T, Carstens H, Esser D, Weitenberg J, Rußbüldt P, Rauschenberger J, Limpert J, Udem T 2013 *Nat. Photonics* **7** 608
- [23] Roscam Abbing S D, Kolkowski R, Zhang Z Y, Campi F, Lötgering L, Koenderink A F, Kraus P M 2022 *Phys. Rev. Lett.* **128** 223902
- [24] Hädrich S, Klenke A, Rothhardt J, Krebs M, Hoffmann A, Pronin O, Pervak V, Limpert J, Tünnermann A 2014 *Nat. Photonics* **8** 779
- [25] Wang D W, Liu T T, Yang H, Jiang H B, Gong Q H 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 2034 (in Chinese) [王大威, 刘婷婷, 杨宏, 蒋红兵, 龚旗煌 2002 物理学报 **51** 2034]
- [26] Tao Y, Goh S J, Bastiaens H M J, van der Slot P J M, Biedron S G, Milton S V, Boller K J 2017 *Opt. Express* **25** 3621
- [27] Auguste T, Carré B, Salières P 2007 *Phys. Rev. A* **76** 011802
- [28] Major B, Varjú K 2021 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **54** 224002
- [29] Ren B H, Yu Y, Yan P Y, Wang M Y, Meng S, Zhang P J 2025 *Acta Phys. Sin.* **74** 244204 (in Chinese) [任百惠, 于尧, 闫鹏宇, 王孟阳, 孟胜, 张鹏举 2025 物理学报 **74** 244204]
- [30] Nagyillés B, Földes I B, Tóth G, Czirják A, Varjú K, Kahaly S, Cormier E, Osvay K 2023 *Phys. Rev. Appl.* **20** 054048
- [31] Fu Y, Wang B, Liu X, Chen J, Liu J, Chen J 2009 *Phys. Rev. A* **79** 013802
- [32] Brichta J P, Wong M, Bertrand J, Bandulet H C, Rayner D, Bhardwaj V 2009 *Phys. Rev. A* **79** 033404
- [33] Li J, Li K, Zhang X, Popmintchev D, Xu H, Wang Y, Li R, Zhang G, Tang J, Niu J 2024 *Light Sci. Appl.* **13** 12
- [34] Ammosov M V, Delone N B, Krainov V P 1986 *Sov. Phys. JETP* **64** 1191
- [35] L'Huillier A, Schafer K J, Kulander K C 1991 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **24** 3315
- [36] Henke B L, Gullikson E M, Davis J C 1993 *At. Data Nucl. Data Tables* **54** 181
- [37] Bellini M, Corsi C, Gambino M C 2001 *Phys. Rev. A* **64** 023411
- [38] Reiss H R 1980 *Phys. Rev. A* **22** 1786
- [39] Catoire F, Ferré A, Hort O, Dubrouil A, Quintard L, Descamps D, Petit S, Burgy F, Mével E 2016 *Phys. Rev. A* **94** 063401
- [40] Heyl C M, Gädde J, Höfer U, L'Huillier A 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 033903

# Generation and simulation of tabletop extreme ultraviolet high-order harmonics<sup>\*</sup>

ZHAO Menglong<sup>1)2)3)</sup> YU Yao<sup>3)</sup> YAN Pengyu<sup>2)</sup> REN Baihui<sup>2)3)</sup>  
 LIU Li<sup>2)3)</sup> MENG Sheng<sup>2)3)</sup> ZENG Min<sup>1)†</sup> ZHANG Pengju<sup>2)3)‡</sup>

1) (*School of Mechanical & Automotive Engineering, South China University of Technology, Guangzhou 510641, China*)

2) (*Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China*)

3) (*Songshan Lake Materials Laboratory, Dongguan 523808, China*)

( Received 30 January 2026; revised manuscript received 6 March 2026 )

## Abstract

Tabletop extreme ultraviolet (XUV) sources based on high-order harmonic generation (HHG) play a crucial role in ultrafast and attosecond science. In this work, a compact HHG system employing a differentially finite gas cell is developed, and XUV harmonic generation with a limited interaction length is systematically investigated.

The system is driven by an 800 nm titanium-sapphire femtosecond laser, and efficient macroscopic phase matching is achieved through coordinated optimization of gas species, gas pressure, and driving laser power. Using krypton and xenon as target gases, stable XUV radiation covering photon energies of 20–40 eV is obtained. The harmonic yield clearly depends on gas pressure and laser intensity. In low-ionization-potential gases, increased ionization enhances plasma dispersion and aggravates phase mismatch, thereby limiting further growth of the harmonic intensity.

Numerical simulations based on a macroscopic propagation model, which incorporates neutral-gas dispersion, plasma dispersion, Gouy phase shift, and dipole phase, reveal the formation of a localized phase-matching region near the pinhole. This localized condition facilitates the coherent buildup of harmonic emission and reduces reabsorption. The simulated spectra agree well with experimental results, validating the model. The proposed scheme provides a simple and robust approach for generating stable, reproducible tabletop XUV sources, with potential applications in ultrafast spectroscopy.

**Keywords:** extreme ultraviolet source, high-order harmonic generation, tabletop device, phase matching

DOI: [10.7498/aps.75.20260167](https://doi.org/10.7498/aps.75.20260167)

CSTR: [32037.14.aps.75.20260167](https://cstr.cn/32037.14.aps.75.20260167)

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 12474261, 12450401).

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

<sup>‡</sup> Corresponding author. E-mail: [pengju.zhang@iphy.ac.cn](mailto:pengju.zhang@iphy.ac.cn)



## 桌面式极紫外高次谐波光源的产生及模拟

赵蒙龙 于尧 闫鹏宇 任百惠 刘立 孟胜 曾敏 张鹏举

### Generation and simulation of tabletop extreme ultraviolet high-order harmonics

ZHAO Menglong YU Yao YAN Pengyu REN Baihui LIU Li MENG Sheng ZENG Min ZHANG Pengju

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 75, 100405 (2026) DOI: 10.7498/aps.75.20260167

CSTR: 32037.14.aps.75.20260167

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.75.20260167>

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

固体高次谐波产生、调控及应用

Generation, manipulation, and application of high-order harmonics in solids

物理学报. 2022, 71(23): 234205 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221319>

低密度SnO<sub>2</sub>靶激光等离子体极紫外光及离带热辐射

Radiation of extreme ultraviolet source and out-of-band from laser-irradiated low-density SnO<sub>2</sub> target

物理学报. 2023, 72(6): 065201 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20222385>

双激光脉冲打靶形成Gd等离子体的极紫外光谱辐射

Characteristics of extreme ultraviolet emission from Gd plasma produced by dual pulse laser

物理学报. 2022, 71(3): 035202 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211450>

基于水窗高次谐波阿秒光源的瞬态吸收光谱装置

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

物理学报. 2025, 74(15): 153201 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250550>

基于匀光管的极紫外消相干和光强均匀化仿真研究

Simulation study of decoherence and light intensity uniformization for extreme ultraviolet of uniform light pipe

物理学报. 2024, 73(11): 114201 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240335>

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>