



桌面飞秒极紫外光原子超快动力学实验装置

海帮 张少锋 张敏 董达谱 雷建廷 赵冬梅 马新文

A tabletop experimental system for investigating ultrafast atomic dynamics based on femtosecond extreme ultraviolet photons

Hai Bang Zhang Shao-Feng Zhang Min Dong Da-Pu Lei Jian-Ting Zhao Dong-Mei Ma Xin-Wen

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 69, 234208 (2020) DOI: 10.7498/aps.69.20201035

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.69.20201035>

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

基于高次谐波产生的极紫外偏振涡旋光

Extreme ultraviolet polarization vortex beam based on high harmonic generation

物理学报. 2020, 69(4): 044203 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20190834>

分子离子碎裂过程中动能释放的校准方法

Methods of calibrating kinetic energy release in dissociation process of molecular dications

物理学报. 2020, 69(20): 203401 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200901>

基于固体薄片超连续飞秒光源驱动的高次谐波产生实验

High harmonic generation experiments based on solid-state supercontinuum

物理学报. 2017, 66(13): 134207 <https://doi.org/10.7498/aps.66.134207>

极紫外飞秒光学频率梳的产生与研究进展

Generation and research progress of femtosecond optical frequency combs in extreme ultraviolet

物理学报. 2020, 69(22): 224203 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200851>

等离子体光栅靶的表面粗糙度对高次谐波产生的影响

Effect of plasma grating roughness on high-order harmonic generation

物理学报. 2017, 66(24): 244209 <https://doi.org/10.7498/aps.66.244209>

相对论圆偏振激光与固体靶作用产生高次谐波

High order harmonics generation by relativistically circularly polarized laser-solid interaction

物理学报. 2018, 67(21): 214205 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20181574>

桌面飞秒极紫外光原子超快动力学实验装置*

海帮¹⁾²⁾ 张少锋^{1)†} 张敏¹⁾²⁾ 董达谱¹⁾²⁾
雷建廷³⁾ 赵冬梅¹⁾ 马新文^{1)‡}

1) (中国科学院近代物理研究所, 兰州 730000)

2) (中国科学院大学, 北京 100049)

3) (兰州大学核科学技术学院, 兰州 730000)

(2020年7月1日收到; 2020年8月10日收到修改稿)

飞秒极紫外光脉冲是研究原子分子超快动力学过程的重要工具, 是同步辐射及自由电子激光这样的大科学装置的重要补充, 而且具有非常诱人的发展前景. 本工作基于大功率飞秒近红外激光在气体介质中的高次谐波过程, 搭建了一套桌面飞秒极紫外光源. 使用充气的中空波导管产生高次谐波, 增大了驱动光与介质的作用长度, 显著提高了光子产额. 使用了光栅的圆锥衍射模式来实现高次谐波光子能量的选择, 在保证高衍射效率的同时, 减小了光栅衍射对于光脉冲的时间展宽效应. 通过实际测量, 光源的输出光子能量可覆盖 20—90 eV 的范围. 在光子能量为 40 eV 附近, 输出光子流强达 1×10^{10} photons/s, 光子能量分辨约为 0.4 eV. 该光源结合新研制的反应显微成像谱仪, 为研究极紫外光与原子分子的相互作用提供了独特的手段. 目前已成功开展多次原子及分子电离实验, 系统性能稳定.

关键词: 极紫外光源, 高次谐波, 圆锥衍射, 反应显微成像谱仪

PACS: 42.65.Ky, 42.65.Re, 32.80.-t

DOI: 10.7498/aps.69.20201035

1 引言

飞秒 (fs, 10^{-15} s) 激光技术的发展, 使得人们可以在飞秒时间尺度上观测化学反应中原子分子的超快动力学过程^[1], 并在一定程度上实现对反应过程的操控^[2]. 但是, 常用的钛宝石飞秒激光器产生的光子能量仅约为 1.5 eV, 不足以直接电离原子中的电子. 因此, 要研究原子内电子的超快动力学过程, 需要更高光子能量, 即极紫外光波段 (extreme ultraviolet, XUV, 光子能量为 10—124 eV) 的飞秒脉冲. 目前最主要的 XUV 光源, 是同步辐射和自由电子激光, 并且都已实现了飞秒脉冲输出^[3]. 然而, 这样的大科学装置的建造及运营维护成本极高

且体积巨大. 相比而言, 飞秒强激光场中的高次谐波产生^[4], 可以在桌面化尺度内, 产生高度相干的 XUV 光, 且脉冲时间可以达到更短的阿秒 (as, 10^{-18} s) 量级, 是对传统 XUV 光源的有效补充.

高次谐波光源相比于同步辐射和自由电子激光, 其光子流强较小, 因而应用受到了一定的限制. 如何提高谐波的产生效率, 一直是相关研究的重点. 传统的高次谐波产生方法一般采用紧聚焦模式, 将驱动激光聚焦至气体射流 (gas jet) 上^[5], 激光场与介质的作用距离较短, 产生的高次谐波不能有效地积累增强, 因此能量转换效率一直较低. 若要提高高次谐波的产生效率, 需要使谐波在较长的一段作用距离上持续积累. 这不仅要求激光与介质的作用距离更长, 还要保证不同位置产生的谐波相

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2017YFA0402300) 和国家自然科学基金 (批准号: 11934004) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: zhangshf@impcas.ac.cn

‡ 通信作者. E-mail: x.ma@impcas.ac.cn

干叠加之后不会出现干涉相消,即满足相位匹配条件. 美国的 Kapteyn 和 Murnane 实验组使用充气中空波导管替代传统的气体射流,可以在很长的作用距离上实现输出谐波的相位匹配,使高次谐波的产生效率提高了两到三个量级^[6]. 得益于这一技术,使用大功率的商业化飞秒激光器即可产生强度满足部分应用需求的高次谐波,极大地促进了高次谐波 XUV 光源的应用推广.

另一方面,高次谐波的输出频谱中,同时包含很多阶次不同能量的光子,在大部分应用中需要对其进行单色化处理. 使用光栅衍射分光的方法,可以实现很宽能谱范围内的能量选择,且具有较高的能谱分辨率,是最常用的单色化方法. 然而,由于衍射过程中的波前倾斜,会导致衍射光脉冲的时间展宽. 为保持飞秒脉冲的超快时间特性,意大利 CNR-IFN 研究所的 Poletto 小组提出了使用光栅的圆锥衍射模式的方法^[7],有效减小了光栅的时间展宽效应. 这一方法得到了业内的广泛认可,并已成功推广到了世界上的多个实验室^[8-11].

国内目前有几家单位进行高次谐波过程的相关研究,但还未见应用高次谐波 XUV 光开展原子分子实验研究的报道. 中国科学院物理研究所的魏志义团队,在高次谐波研究方面,特别是在孤立阿秒脉冲的研究方面,始终处于国际前沿,获得了一系列优秀的成果. 2013 年,该团队利用高次谐波过程成功获得了脉冲宽度 160 as,中心能量在 82 eV 的孤立阿秒脉冲^[12],是国内阿秒脉冲领域的首次

实验测量结果. 基于现有的研究成果,该团队计划在北京怀柔建造基于高次谐波的阿秒激光工作站^[13],为物理、生物、化学等多个领域的相关应用提供脉冲宽度在飞秒至阿秒量级的 XUV 光脉冲. 目前该项目已经完成了整体设计,并开始实际建造,有望在未来几年逐步对用户开放. 吉林大学的丁大军研究组,采用光栅圆锥衍射的方法,搭建了可以保持高次谐波时间特性的 XUV 光源,并研究了其光谱特性^[14,15]. 在高次谐波产生过程中,他们使用外径 3 mm 的充气镍管,经激光聚焦穿孔后作为产生介质,最终得到了 XUV 光子输出,但目前还未见实验应用的报道. 本文报道我们采用充气中空波导管产生高次谐波,并使用光栅的圆锥衍射模式对谐波进行单色化,搭建了高次谐波 XUV 光源. 并与特殊研制的反应显微成像谱仪^[16]相结合,在国内首先实际应用于原子分子光物理实验研究^[17,18]. 光子能量范围可覆盖 20—90 eV,在光子能量 40 eV 附近,输出光子流强可达 10^{10} photons/s,光子能量分辨率约为 0.4 eV.

2 XUV 光源

基于高次谐波的 XUV 光源结构如图 1 所示,主要由 3 部分构成:大功率飞秒近红外激光用于产生驱动高次谐波效应的基频光;高次谐波产生单元负责谐波的产生及优化;单色化传输线路实现对高次谐波的能量选择并将其传输至实验终端.

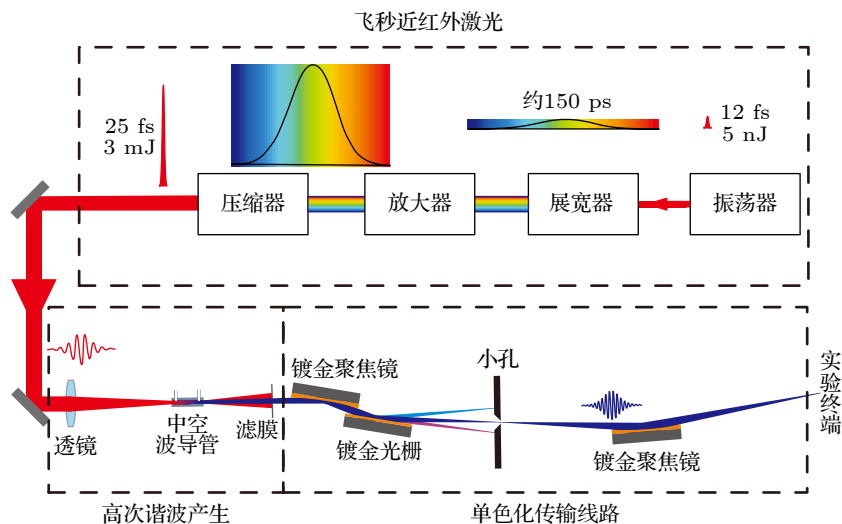


图 1 高次谐波极紫外光源总体示意图

Fig. 1. Schematic of the HHG-based XUV source.

2.1 飞秒近红外激光

我们使用的驱动激光由美国 KMLabs 公司提供, 可输出中心波长约为 800 nm 的大功率近红外激光. 输出重复频率为 1—3 kHz 可调, 最大单脉冲能量可达 3 mJ, 脉冲宽度约为 25 fs. 当此近红外激光被聚焦至约 150 μm 时, 场强可达 $10^{14} \text{ W}\cdot\text{cm}^{-2}$, 足以支持大部分气体中的高次谐波产生.

2.2 高次谐波产生单元

高次谐波产生的基本原理, 可以采用 Corkum 等 [19,20] 提出的半经典“三步模型”来形象地说明. 但是三步模型理论只能描绘高次谐波产生的单原子图像, 无法考虑实际工作气体中大量原子的宏观效应. 而宏观效应则决定了高次谐波的实际输出强度, 只有当不同原子释放的高次谐波相干叠加增强, 即达到相位匹配时, 才能实现输出强度的最大化, 如图 2(a) 所示.

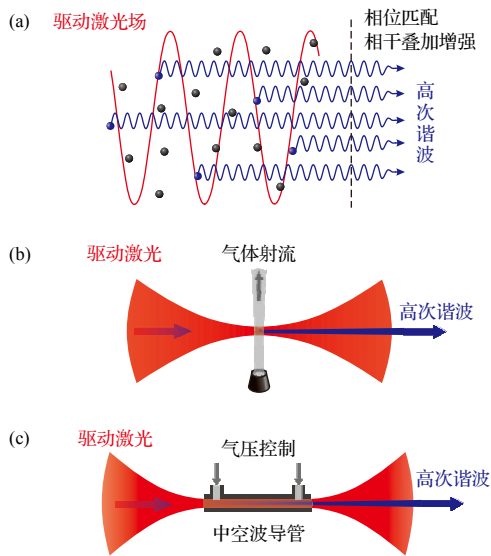


图 2 高次谐波过程中的相位匹配 (a) 在相位匹配条件下, 不同原子释放的谐波相干叠加增强; (b) 使用气体射流产生高次谐波的紧聚焦模式; (c) 使用充气中空波导管产生高次谐波

Fig. 2. Phase matching of the HHG: (a) Radiations from different atoms add up constructively when phase matched; (b) tightly focusing geometry of HHG with a gas jet; (c) HHG in a gas-filled hollow waveguide.

理论分析表明, 实现相位匹配的条件是基频光与高次谐波在介质中传播的相速度相同 [21]. 影响二者相速度之差的实际因素是介质气体的电离率, 而电离率又是由驱动光强度及气体压强决定的. 因此, 可以通过调节驱动光强度和气体压强来实现相

位匹配. 在传统的紧聚焦模式下, 驱动激光先聚焦后发散如图 2(b) 所示, 光束宽度的变化导致激光场强度的变化, 同时气体射流内部压强分布也不均匀. 因而在紧聚焦模式下, 一般只能在焦点附近很短的一段近似准直的范围实现相位匹配, 导致总的输出强度较低.

我们采用充气中空波导管的方式产生高次谐波, 如图 2(c) 所示. 波导管内径约为 150 μm , 长度为 5 cm, 在此范围内, 驱动光保持准直, 激光场强度始终一致, 同时整个波导管内气体压强分布更加均匀且便于调节. 因此可以在很长的作用距离上一直保持相位匹配, 产生的高次谐波可以持续地叠加增强, 相比于紧聚焦模式, 可以将高次谐波输出强度提高两到三个量级 [6]. 同时, 由于驱动光在波导管内近似可以看作平面波, 产生的高次谐波发散度很小, 空间相干性极好, 光束质量也得到显著提高.

2.3 单色化传输线路

由于 XUV 光的电离能力很强, 在大部分材料中的穿透深度都小于 1 μm [15], 因此整个传输线路必须保持高真空, 且无法使用透射式光学元件, 只能使用反射式光学元件. 但即便使用反射式光学元件, 也必须在掠入射模式下 (入射光线与镜面夹角很小) 才能拥有较高的反射率 [22]. 这为单色化传输线路的设计增加了难度.

为实现宽能谱范围内的高次谐波能量选择, 我们采用了光栅分光的单色化方法. 其基本原理为, 来自不同刻线上的衍射光相干叠加, 使不同频率成分的干涉极大 (即光程差等于波长的整数倍) 出现在不同的角度, 从而实现频率成分的空间分离. 但是, 衍射过程中的光程差又会导致衍射光的波前倾斜, 进而导致脉冲展宽. 图 3 为传统的光栅衍射模式 (光栅刻线垂直于反射平面), 假设入射光束宽度为 d , 入射角为 α , 则当光栅刻线密度为 σ 时, 光束照亮的总刻线数为 $N = d\sigma/\cos\alpha$. 若考虑一级衍射, 由于相邻刻线衍射光程差等于 1 倍波长 λ , 则此时总的光程差为 $N\lambda$, 除以光速 c 即可得到脉冲的时间展宽为

$$\delta t = \frac{N\lambda}{c} = \frac{d\sigma\lambda}{c\cos\alpha}. \quad (1)$$

由 (1) 式可知, 在掠入射模式下, 由于入射角 α 接近 90° , 因而分母上的 $\cos\alpha$ 接近于零, 会导致展宽效应被显著放大. 在我们的实际光源中, 高次

谐波在光栅处的宽度约为 2 mm, 使用的光栅刻线密度为 500 gr/mm, 若要保证 XUV 光在材料表面 90% 以上的反射率, 入射角 α 不能小于 88° . 此时若采用传统的光栅使用模式, 对于波长为 30 nm (光子能量约 41 eV) 的高次谐波, 根据 (1) 式可求得脉冲时间展宽高达约 3 ps, 这对于要求飞秒量级时间分辨的超快动力学研究是无法接受的.

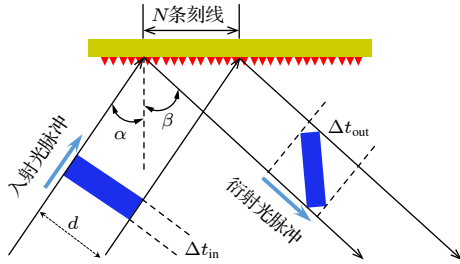


图 3 光栅衍射中的波前倾斜导致脉冲展宽, Δt_{in} 和 Δt_{out} 分别表示入射光和衍射光的脉冲宽度
Fig. 3. Pulse broadening caused by the wavefront tilt during grating diffraction, Δt_{in} and Δt_{out} are pulse widths of the input pulse and diffracted pulse respectively.

为解决这一问题, 我们采用了光栅的圆锥衍射模式. 如图 4 所示, 入射光线与衍射光线都位于以光栅刻线为轴的圆锥面上, 并以不同的方位角 α 和 β 来表征 [7]. 将圆锥顶角的一半记为 γ , 此时只需 γ 角足够小就可以实现掠入射, 从而保证足够的反射率. 因此 α 角的取值将不再受限制, 可以选取很小的 α 角来减小光栅衍射对脉冲时间的展宽效应. 如果取 $\alpha = 0^\circ$, 同样使用前述的参数可求得时间展宽仅为 100 fs, 脉冲的展宽效应得到了显著地限制.

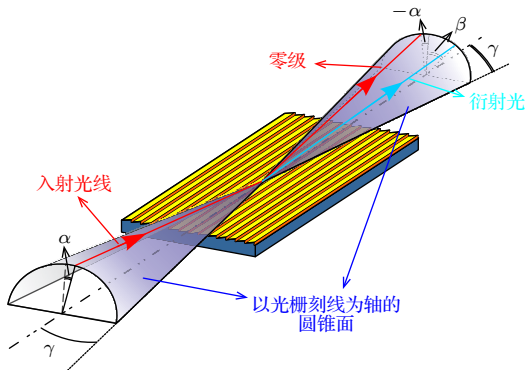


图 4 光栅的圆锥衍射模式
Fig. 4. The conical diffraction geometry of gratings.

经过光栅衍射之后, 不同能量的光子以不同的衍射角 β 出射, 只需在特定的位置加装小孔即可选

择出特定能量的光子. 在实际应用中, 为了保证输出点的位置不变, 我们采用固定选光小孔而调节光栅角度的方法, 使不同能量的光子始终从同一个位置输出, 从而避免实验终端的位置调整.

3 光源输出参数

为了对光源的输出光谱特性进行分析, 我们使用专用的 XUV 相机 (Andor DO934P-BN) 安装在选光小孔的位置, 对高次谐波的衍射光谱进行了测量. 从相机测量的图像强度, 可以获得高次谐波的相对流强变化, 因此可用于调节驱动光强度及气体压强以得到最高的输出流强, 即实现相位匹配. 图 5 给出了使用不同惰性气体作为产生介质, 并分别调节至相位匹配时得到的高次谐波能谱. 可见从氦气到氙气, 随着原子第一电离能的降低, 产生的高次谐波能量依次降低. 这与三步模型理论的描述是吻合的. 而通过换用不同的惰性气体, 总的光子能量范围基本可覆盖 20—90 eV. 吉林大学的高次谐波单色化装置 [14] 中, 光子能量范围仅为 20—75 eV. 本工作中, 通过使用电离能更高的氦气作为工作气体, 成功将光谱范围向高能区域进行了一定的拓展, 高能段达到了 90 eV.

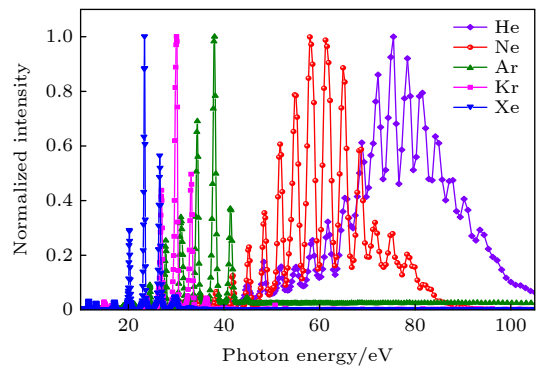


图 5 使用不同惰性气体产生的高次谐波谱
Fig. 5. HHG spectra produced with noble gases.

对于光源的能量分辨, 可以从两方面获得. 首先, 可以直接从能谱上得到高次谐波的单一阶次本身的能量展宽. 如以氙气产生的第 27 阶谐波为例, 其能谱局部放大之后如图 6 所示, 通过对其进行高斯拟合, 可得出中心能量约为 41.9 eV, 半高全宽约为 0.4 eV. 这表明在谐波的产生过程中单一阶次谐波的固有能量展宽为 0.4 eV. 另一方面, 根据相机测量的原始图像, 可以推算出不同能量光子经光

栅衍射之后的空间分辨约为 2.65 eV/mm, 而使用的选光小孔的直径为 150 μm , 对应于 0.4 eV 的能量宽度, 即刚好可实现单一阶次谐波的选择. 因此光源最终输出的光子能量分辨约为 0.4 eV, 刚好实现了对单一阶次谐波的充分利用. 吉林大学研究组使用 300 gr/mm 的光栅配合 50 μm 的狭缝, 在光子能量 35.7 eV 处, 测量得到能量分辨约为 1 eV^[14]. 因此, 本实验系统具有较高的能量分辨. 值得指出的是, 在本工作中如果选用直径更小的小孔, 可以使输出的光子能量分辨更高, 但是同时也会使光子流强降低.

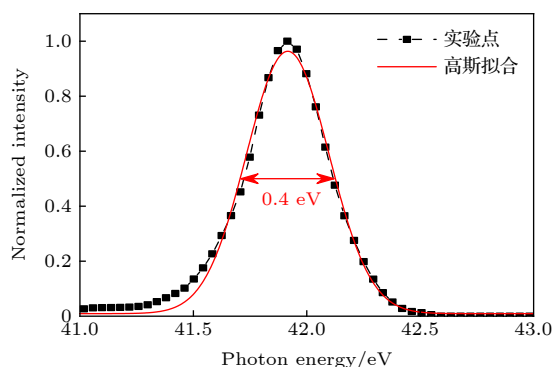


图 6 使用氩气产生的第 27 阶谐波的能谱, 红色实线为高斯拟合, 其中心能量为 41.9 eV, 半高全宽 0.4 eV

Fig. 6. Spectrum of the 27th harmonic produced with Ar gas. The red line is fitted result of Gauss distribution, centered at 41.9 eV with a FWHM of 0.4 eV.

经过小孔选择之后的单一能量光子, 经过再次聚焦之后直接传输到实验终端. 为得到光子的绝对流强, 我们使用光电二极管 (AXUV100 G) 进行了测量. 对于氩气的 27 阶谐波, 测量得到二极管输出电流约为 20 nA, 而光电二极管在这一能量范围内的转换效率为 0.26 A/W, 因此可计算出光子流强约为 1×10^{10} photons/s, 相比于此前吉林大学的实验结果^[14] 提高了 1 个量级. 除了部分反应截面很小的过程外, 这一强度的 XUV 光, 已能满足大部分实验研究的需求. 如在已开展的氦原子电离实验中, 经过多次符合之后得到的有效计数率超过了 30 s^{-1} , 已满足实验需求.

4 XUV 原子分子实验系统

为利用飞秒 XUV 光源开展原子分子超快动力学研究, 我们自主搭建了反应显微成像谱仪. XUV 光在谱仪中心处与超声气体靶相互作用, 产生的光

电子及离子在外加电场的作用下被引出到探测器上, 通过测量粒子从反应点到探测器的飞行时间及在探测器上的二维位置信息, 可以重构粒子在反应末态的三维动量信息.

反应显微成像谱仪包括 3 个主要部分: 超音速冷靶、飞行时间谱仪和位置灵敏探测器, 分别实现气体靶的制备、粒子的引出和探测. 在超音速冷靶部分, 利用高压气体向低压环境的超音速膨胀, 得到单色性极好的低温气体靶. 在超音速膨胀过程中, 气体的热动能转化为整体运动的平动能, 动量分散极小, 从而可以显著减小初始热分散对反应产物动量测量的影响, 提高动量测量精度. 同时, 小动量分散保证了气体靶的发散角很小, 便于反应剩余气体的收集, 从而维持整个反应靶室的高真空度. 飞行时间谱仪由一系列电极片构成, 在其中心处, 气体冷靶与 XUV 光束垂直交叉并发生反应, 产生的带电粒子在电极片电场的作用下运动至两端的探测器. 引出电场分为匀场加速区和无场漂移区两部分, 二者长度比为 1:2, 这一设计可以减小气体靶宽度对粒子飞行时间的影响, 又被称为一维时间聚焦条件. 此外, 由于电子在垂直电场方向极易飞出探测器范围, 因此使用亥姆霍兹线圈在粒子飞行区域施加一个与引出电场方向平行的均匀磁场, 以约束电子的横向运动, 实现完全收集. 最终, 粒子在电场和磁场的共同作用下运动到探测器上. 为实现对时间信息和位置信息的测量, 采用了微通道板 (MCP) 加延迟线阳极的二维位置灵敏探测器, 微通道板给出粒子的飞行时间, 延迟线阳极给出二维位置信息. 由这些信息即可计算出粒子初始时刻的动量信息, 实现对反应过程的动力学重构.

反应显微成像谱仪实验对真空度的要求很高, 特别是 XUV 光的电离能力很强, 在光束传输线路上的真空残余气体原子分子极易被电离, 从而会造成较强的本底噪声. 为抑制本底噪声, 我们对反应显微成像谱仪进行了多项特殊设计. 首先, 气体靶采用了多级差分结构, 最大限度减小靶气体对靶室真空度的影响. 其次, 主腔室材质采用了放气率更低的钛合金取代传统的不锈钢, 以支持更高的极限真空. 同时, 在涡轮分子泵的基础上配备了吸附泵, 当真空度达到分子泵的极限之后, 可以使用吸附泵进一步提高真空度. 特别重要的是, 在光源与谱仪的连接部分也进行了多级差分处理, 在保证 XUV 光传输效率的前提下减小对主靶室真空度的

影响. 最终, 反应显微成像谱仪靶室真空达到了 10^{-11} mbar (1 mbar = 100 Pa), 真空本底电离导致的噪声信号显著减小.

图 7 给出了使用反应显微成像谱仪测量的 Ar 原子光电离激发的部分实验结果. 图 7(a) 中不同的同心圆表示光电子具有不同的动能, 对应于不同的电离通道. 其中最外环为截面最大的 3p 电离通道, 表现出了完美的偶极分布特征. 对电子出射方向与光子偏振方向的夹角进行统计, 可以给出如图 7(b) 所示的光电子的角分布. 红色实线是使用理论上的偶极分布公式拟合的结果, 与实验点符合很好.

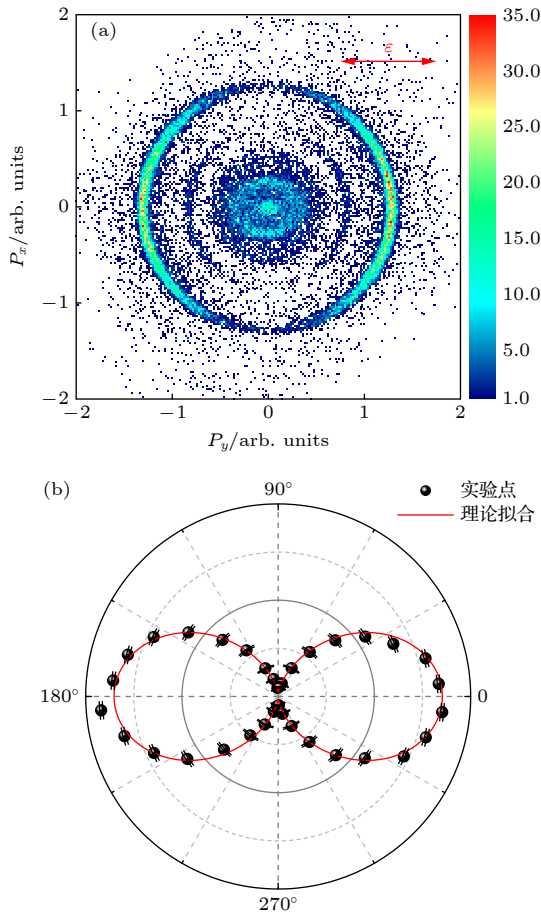


图 7 光子能量 38.5 eV 时, 氩原子电离实验的部分结果 (a) 光电子动量在探测器平面内的分布, 图中红色箭头表示光子偏振方向; (b) 3p 电离通道 (对应于 (a) 中的最外环) 的角分布, 其中的角度为光电子出射方向与光子偏振方向夹角, 红色实线为使用偶极分布公式拟合的理论结果
Fig. 7. Experimental results of Ar ionization with 38.5 eV photons: (a) Photoelectron momentum distribution in the detector plan, and the polarization of the photon is indicated with the red arrow; (b) photoelectron angular distribution of the 3p channel (the outer most ring in (a)), as a function of the angle between the photoelectron emission and the photon polarization. Red line is the theoretical distribution fitted with dipole equation.

这一结果充分验证了 XUV 反应显微成像谱仪系统的可靠性.

目前, 结合新研制的反应显微成像谱仪, 高次谐波 XUV 光源已为近代物理研究所原子物理中心的多次实验成功提供了不同能量的 XUV 光, 并取得了一系列丰富的研究成果 [17,18]. 使用光子能量 34 eV 到 42 eV 的 XUV 光, 开展了 Ar 原子的电离激发过程实验研究, 首次测量了多个反应通道的光电子角分布信息, 为相关研究提供了新的基础数据. 在光子能量为 38.5 eV 的条件下, 研究了 N_2O 分子的电离解离过程, 对不同的解离通道进行了鉴别. 光源稳定的性能在实验中得到了有效验证. 目前, 这是国内首台可实际应用于原子分子光物理实验研究的高次谐波 XUV 光源.

5 总结

基于强激光场中的高次谐波效应, 搭建了国内首台可实际用于原子分子光物理实验研究的桌面飞秒 XUV 光源. 一方面, 使用了充气中空波导管产生高次谐波, 相比于传统的紧聚焦模式极大地提高了 XUV 光子的产生效率, 得到了更高的输出流强; 另一方面, 采用了光栅的圆锥衍射模式对谐波进行能量选择, 显著地减小了光栅衍射对于脉冲时间的展宽, 保持了飞秒脉冲的超快时间特性, 对于超快动力学实验研究具有重要的意义. 经过实际测量, 光源的输出光子能量可覆盖 20—90 eV 的范围. 在光子能量 40 eV 附近, 输出的光子流强达到了 10^{10} photons/s, 光子能量分辨约为 0.4 eV. 基于高次谐波 XUV 光源, 研制了用于原子分子超快动力学研究的 XUV 反应显微成像谱仪系统. 该系统具有稳定的性能, 并已成功开展多次原子及分子电离实验研究.

参考文献

- [1] Zewail H A 1988 *Science* **242** 1645
- [2] Zhang L, Xie X H, Roither S, Zhou Y M, Lu P X, Kartashov D, Schoffler M, Shafir D, Corkum P B, Baltuska A, Staudte A, Kitzler M 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 193002
- [3] Schoenlein R W, Chattopadhyay S, Chong H H W, Glover T E, Heimann P A, Shank C V, Zholents A A, Zolotarev M S 2000 *Science* **287** 2237
- [4] Mepherson A, Gibson G, Jara H, Johann U, Luk T S, McIntyre I A, Boyer K, Rhodes C K 1987 *J. Opt. Soc. Am. B* **4** 595
- [5] Brandi F, Neshev D, Ubachs W 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91**

163901

- [6] Rundquist A, Durfee C, Chang Z H, Herne C, Backus S, Murnane M M, Kapteyn H C 1998 *Science* **280** 1412
- [7] Frassetto F, Cacho C, Froud C A, Turcu I C E, Villoresi P, Bryan W A, Springate E, Poletto L 2011 *Opt. Express* **19** 19169
- [8] Grazioli C, Callegari C, Ciavardini A, Coreno M, Frassetto F, Gauthier D, Golob D, Ivanov R, Kivimaki A, Mahieu B, Bucar B, Merhar M, Miotti P, Poletto L, Polo E, Ressel B, Spezzani C, De Ninno G 2014 *Rev. Sci. Instrum.* **85** 023104
- [9] Plogmacker S, Terschlusen J A, Krebs N, Svanqvist M, Forsberg J, Cappel U B, Rubensson J E, Siegbahn H, Soderstrom J 2015 *Rev. Sci. Instrum.* **86** 123107
- [10] Ojeda J, Arrell C A, Grilj J, Frassetto F, Mewes L, Zhang H, Van Mourik F, Poletto L, Chergui M 2016 *Struct. Dyn.* **3** 023602
- [11] Von Conta A, Huppert M, Worner H J 2016 *Rev. Sci. Instrum.* **87** 073102
- [12] Zhan M J, Ye P, Teng H, He X K, Zhang W, Zhong S Y, Wang L F, Yun C X, Wei Z Y 2013 *Chinese Phys. Lett.* **30** 093201
- [13] Teng H, He X K, Zhao K, Wei Z Y 2018 *Chin. Phys. B* **27** 074203
- [14] Niu Y, Liang H J, Liu Y, Liu F Y, Ma R, Ding D J 2017 *Chin. Phys. B* **26** 074222
- [15] Niu Y 2017 *Ph. D. Dissertation* (Jilin: Jilin University) (in Chinese) [牛永 2017 博士学位论文 (吉林: 吉林大学)]
- [16] Ullrich J, Moshhammer R, Dorn A, Dörner R, Schmidt L P H, Schmidt-Böcking H 2003 *Rep. Prog. Phys.* **66** 1463
- [17] Hai B, Zhang S F, Zhang M, Najjari B, Dong D P, Lei J T, Zhao D M, Ma X W 2020 *Phys. Rev. A* **101** 052706
- [18] Zhang M, Najjari B, Hai B, Zhao D M, Lei J T, Dong D P, Zhang S F, Ma X W 2020 *Chin. Phys. B* **29** 063302
- [19] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [20] Lewenstein M, Balcou P, Ivanov M Y, Lhuillier A, Corkum P B 1994 *Phys. Rev. A* **49** 2117
- [21] Popmintchev T, Chen M C, Arpin P, Murnane M M, Kapteyn H C 2010 *Nat. Photonics* **4** 822
- [22] Henke B L, Gullikson E M, Davis J C 1993 *At. Data Nucl. Data Tables* **54** 181

A tabletop experimental system for investigating ultrafast atomic dynamics based on femtosecond extreme ultraviolet photons*

Hai Bang¹⁾²⁾ Zhang Shao-Feng^{1)†} Zhang Min¹⁾²⁾ Dong Da-Pu¹⁾²⁾

Lei Jian-Ting³⁾ Zhao Dong-Mei¹⁾ Ma Xin-Wen^{1)‡}

1) (*Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China*)

2) (*University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*)

3) (*School of Nuclear Science and Technology, Lanzhou University, Lanzhou 730000, China*)

(Received 1 July 2020; revised manuscript received 10 August 2020)

Abstract

Femtosecond extreme ultraviolet (XUV) light pulses play an important role in investigating the ultrafast dynamics of atoms and molecules, and are complementary to the conventional large facilities like synchrotron radiation and free electron laser. We build a table-top femtosecond extreme ultraviolet light source based on the high-order harmonic generation (HHG) process of gaseous medium in a strong laser field. We implement HHG by focusing an intense IR laser into a 5 cm long gas-filled hollow waveguide, instead of the conventional tightly focusing geometry with gas jet. Inside the waveguide, the laser peak intensity is nearly constant and the gas pressure is well-controlled, making it possible to maintain the phase matching condition over an extended distance. And a fully coherent high harmonic beam builds up along the waveguide, leading to a dramatically higher HHG efficiency. Monochromatic XUV light pulses are obtained by spectral selection of the HHG through employing the conical diffraction method of grating. With this geometry used, the pulse broadening caused by wave front tilting during the diffraction can be strongly suppressed, especially for the case of grazing incidence. And the femtosecond temporal character of the light pulse can be preserved while keeping a high reflectivity. The temporal broadening of the XUV light pulse in our setup is estimated to be within 100 femtosecond. By using different noble gases, photons with energy values ranging from 20 eV to 90 eV are produced. For the 27th-order harmonic centered at 41.9 eV, the flux is measured to be 1×10^{10} photons per second, with an energy spread of 0.4 eV. In order to investigate the ultrafast dynamic behaviors of gaseous atoms and molecules with an HHG-based XUV source, we develop a reaction microscope with ultrahigh vacuum of about 10^{-11} mbar. The combination of HHG-based XUV with the newly developed reaction microscope provides a unique tool for studying the XUV photon and atom/molecule interaction. A series of experiments has been successfully carried out on the platform and the system shows good performance.

Keywords: extreme ultraviolet (XUV) photon source, high order harmonic generation (HHG), conical diffraction, reaction microscope

PACS: 42.65.Ky, 42.65.Re, 32.80.-t

DOI: [10.7498/aps.69.20201035](https://doi.org/10.7498/aps.69.20201035)

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. 2017YFA0402300) and the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11934004).

† Corresponding author. E-mail: zhangshf@impcas.ac.cn

‡ Corresponding author. E-mail: x.ma@impcas.ac.cn